

K-Ar 年代測定のための鉱物分離マニュアル

Manual of mineral separation for K-Ar age dating

八木 公史

Koshi Yagi

株式会社蒜山地質年代学研究所

Hiruzen Institute for Geology and Chronology, Co. Ltd., 161-1 Sai, Okayama 703-8248, Japan

yagi@geohiruzen.co.jp

1. はじめに

筆者が地質について本格的に勉強を始めたのは、広島大学理学部 3 年時に山口県大津郡油谷町 (現長門市) で行われた進級論文のための調査の時である。調査のメインである油谷湾層群 (岡本・今村, 1964) よりも、断層などの地質現象やハンマーで力一杯叩いてもなかなか割れない基盤の硬い岩石 (溶結凝灰岩) に興味をもった。

断層と岩石をキーワードに自ずと地球造構学グループへ進むことが決定したように思える。卒業研究では竹下 徹教授 (現: 北海道大学教授) の指導の下で、高知県長岡郡本山町の汗見川地域の三波川変成帯中に発達する正断層群の記載及びそれらに伴って貫入する石英脈の微細組織から古応力場解析を行った (八木, 1997 卒業論文; 竹下ほか, 1997; 八木・竹下, 1997; Takeshita and Yagi, 2004)。

学部 4 年後半から修士課程 1 年前半では阪神淡路大震災を引き起こした野島断層付近のボーリングコアを用いて、変形石英中に発達するマイクロクラックから古応力場解析を行った (竹下・八木, 1998; Takeshita and Yagi, 2001)。この頃までは断層解析を中心に研究を行ってきたが、1997 年 10 月から研究地域を愛媛県伊予三島市 (現四国中央市) 富郷町の猿田川地域に移し、石英の変形微細構造から三波川変成帯の上昇テクトニクスについての研究を行った (八木・竹下, 1998; 八木ほか, 1998; Yagi, 1999 修士論文; Takeshita and Yagi, 2004)。

1999 年 4 月に博士課程に進学し、三波川変成帯の上昇テクトニクスについてさらに精査するために、四国中央部の北側の猿田川地域と南側の汗見川地域において、南北 (異

なる変成グレード) 及び東西 (同じ変成グレード) 方向で系統的に試料採取を行った。岩石変形学の分野から変成帯上昇時の変形物理条件を、一方で変成岩岩石学の分野から昇温期及び降温期の圧力-温度履歴の地域差を明らかにし、これらが互いに密接な関係を持つことを示した (八木・竹下, 1999; 八木ほか, 2001; Yagi and Takeshita, 2002)。さらに、変成帯上昇に関する時間軸を挿入するために、2001 年 10 月に岡山理科大学の板谷徹丸教授及び株式会社蒜山地質年代学研究所の岡田利典前所長の下で鉱物分離及び K-Ar 年代測定の指導を受けた。以上により、岩石変形学、変成岩岩石学及び放射年代学から独立に得られたデータに相互関係があることを見出して、三波川変成帯の上昇テクトニクスの解明に重要な制約条件を与えることができた (Yagi, 2002 博士論文, 八木ほか, 2002)。この時に行った鉱物分離及び K-Ar 年代測定が筆者の現在の仕事の礎であり、鉱物分離の出来不出来が年代測定結果に大きな影響を及ぼすことを強く意識した始まりであった。

年代測定において重要な事は、最適な試料の選定を行い、目的の鉱物を測定に支障のない方法で分離することである。測定機器は日々進歩し、かなりの部分が自動化されてきているため、初心者でもマニュアルに従えばある程度は使いこなせる場合が多い。一方で、鉱物分離は自動化が困難なために手作業の比率が高く、従って、数多くの分離を行って培われる経験的な要素を多く含んでいる。しかしながら、分離の伝統的な方法でさえ、書籍や論文中に詳細な記述があまり無く、あってもまとまったものが無いのが現状である。今回、年代測定を行う者が分離作業を円滑に進める手助けになるように、本特集号の場を借りて、K-Ar 年代測定

のための鉱物分離の方法を詳述する。

2. K-Ar 年代測定の対象となる試料

2-1. 火山岩

火山岩の K-Ar 年代測定は、噴出年代を決定し、火山活動のサイクル及び層序を解明することに用いられる。溶岩の場合は全岩での測定が多い。ここで言う全岩とは斑晶鉱物を除去した残り、つまり「石基の濃集物」を意味する。マントルや地殻内では ^{40}K から壊変した ^{40}Ar の存在により、普通は過剰アルゴン状態であると考えられ (Nagao and Takahashi, 1993), マントルで生じたマグマが上昇し、火道中やマグマ溜まりで結晶化した斑晶鉱物 (特に、径 1cm を越えるような巨大斑晶) には過剰アルゴンが存在することがある (板谷・長尾, 1988; 高岡ほか, 1989; 高岡, 1989; 板谷・岡田, 1995)。従って、火山岩の石基の K-Ar 年代測定の確度は斑晶鉱物を可能な限り除去することで高めることができる。但し、石基部分に変質していることが多いため、石基を用いた K-Ar 年代測定は第四紀試料などの新鮮な若い火山岩で行われることがほとんどである (例えば, Kaneoka *et al.*, 1980; Itaya *et al.*, 1984; 高岡ほか, 1989)。一方で、数 Ma 程度より古い火山岩試料の場合、変質しやすい石基部分ではなく、比較的新鮮な斑晶鉱物 (長石類・雲母類・角閃石類・輝石類) による年代測定が行われる (例えば, Imaoka and Itaya, 2004)。また、過剰アルゴンの存在が指摘されている巨大斑晶の除去が可能なら、第四紀試料の年代測定にも斑晶鉱物が適用できる (例えば, 板谷・長尾, 1988; 岡, 2006 卒業論文)。

火砕岩や火山砕屑物の場合は異質岩片・鉱物片を取り込むことがあるので、軽石中の鉱物あるいは本質マグマからの斑晶鉱物が年代測定に用いられる (例えば, 鳥居ほか, 2000)。火山ガラスは変質しやすく、また過剰アルゴンの存在が指摘されているため、K-Ar 年代測定には適さない (例えば, Itaya *et al.*, 1984; 板谷・長尾, 1988)。

2-2. 深成岩

地下深部で長い時間をかけて冷却する深成岩では、構成鉱物がそれぞれ異なる閉鎖温度 (普通角閃石: 550–450°C (Hunziker *et al.*, 1992), 黒雲母: 350–250°C (Armstrong *et al.*, 1966), カリ長石: 300–120°C (参考文献は Harrison *et al.* (1979) や Harrison and McDougall (1982) など多数あるが, 柴田 (1991) によれば, パーサイト構造をもつカリ長石の閉鎖温度は 200°C を超すことはない) とされる) をもつために、各鉱物種で異なる年代を示す (Dodson, 1973)。つまり、深成岩の場合は異なる複数の鉱物について K-Ar 年代測定を行うことにより、岩体の冷却過程を明らかにできるという醍醐味がある。一昔前によく行われた深成岩に対する全岩 K-Ar 年代測定の結果は複数の鉱物の平均年代を求めているに過ぎず、近年は行われていない。

2-3. 変成岩

系統的に試料採取を行い、変成鉱物 (白雲母 (パラゴナ

イト, フェンジャイトを含む)・黒雲母・角閃石・斜長石など) を用いて年代測定を行うことにより、変成作用のピーク、冷却過程及び変形作用の時期を明らかにできる。変成岩はその形成過程の複雑さから K-Ar 年代測定を行う際に注意すべき点が多い。例えば、源岩が堆積岩であるか火成岩であるかによって過剰アルゴンの問題を検討する必要が生じる (板谷, 1997; 板谷, 1998)。Gouzu *et al.* (2006) はヨーロッパアルプスの超高压変成岩中の白雲母について $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ 年代測定を試み、不一致年代を示す試料は源岩が大陸地殻物質起源であるのに対し、他の手法と調和的な年代が得られる超高压変成岩の源岩は海洋性堆積物起源であることを指摘している。また、高压変成岩は一般的にその上昇過程で塑性変形を受け、その変形の程度及び期間によって単純な冷却過程での鉱物の閉鎖温度で放射年代が決定されるとは限らないとされる (Itaya and Takasugi, 1988; Itaya and Fujino, 1999)。

2-4. 変質岩

母岩及び変質鉱物の年代を測定することによって、熱水活動の時期を特定できる。熱水変質鉱物には氷長石・セリサイト・明礬石などがある。硫酸塩鉱物である明礬石を分析する際には、ガス抽出時に発生する硫酸物質がアルゴン質量分析装置の抽出系及び精製系の金属部分を侵すため、特別な配慮が必要である (岡田・板谷, 1994)。変質岩の分離に関しては、本特集号の沢井先生 (山口大学理学部) の執筆文を参照されたい。

2-5. 断層岩

断層中の雲母粘土鉱物 (主に、イライト) を抽出し、K-Ar 年代測定を行うことで、断層活動の時期を推定できる。断層活動に伴う熱水がイライトの閉鎖温度 (290–230°C; Hunziker *et al.*, 1986) を超えていれば、たとえ母岩の砕屑鉱物が混入していたとしても年代はリセットされる。通常、母岩の岩石が断層活動で破碎され、熱水変質により雲母粘土鉱物 (イライト) が生成するまでの時間は地質学的時間スケールでは極めて短いと考えられるので、得られた年代が断層活動年代と見なすことができる。しかしながら、年代がリセットされる温度に達していない場合は、母岩の砕屑鉱物と断層活動で形成された自生鉱物の両者の年代の混合年代となる。一般に温度条件は XRD を用いて、鉱物組み合わせやポリタイプを決定することで検討される。断層岩の総合的な解析法については、柴田・高木 (1988)、高木・柴田 (1992)、田中ほか (1992)、Tanaka *et al.* (1995) を参考にさせていただきたい。雲母粘土鉱物の分離に関しては、本特集号の沢井先生の執筆文や鶴田 (1995) を参照されたい。

3. 試料採取時の注意点と分離に必要な岩石量

当然の事ではあるが、風化・変質の程度がより低い試料を採取することが最も重要である。

溶岩流から試料採取する場合、異常なアルゴン同位体比

をもつことがある急冷周縁部（ガラス質）ではなく、溶岩流の中心部から採取するようにする（Funkhouser *et al.*, 1968; Dalrymple and Moore, 1968）。これは大規模な岩脈の試料採取の場合でも同じである。

K-Ar 年代測定用に採取すべき岩石量は分離対象物の含有量及び新鮮な部分の割合に依る。一般的には、火山岩中の石基を濃集させる場合は握りこぶし大 1 個（300 グラム程度）で充分である。鉱物の濃集の場合、肉眼観察のみで予想される必要岩石量よりも少し多めに岩石処理を行った方がよい。これは分離の際に得られる、異なるサイズのフラクション（例えば、#60-100, #100-150 あるいは #150-200）中で最も純度の良いフラクションのみを K-Ar 年代測定に使用するためである。フラクションによっては濃集した分離鉱物が予想よりも少量となる場合がある。

4. K-Ar 年代測定に必要な分離済み試料の量

K-Ar 年代測定に必要な分離済み試料の量は年代及びカリウム (K) 含有量に依存している。年代が若く、K 含有量が低い程、測定に必要な量が増える。表 1 には石基及び代表的な鉱物について一般的な K 含有量を仮定した時の K-Ar 年代測定に必要な量を挙げた。必要量は第四紀～数 Ma 及び 100Ma の 2 種類の年代で分けた。なお、この必要量は K-Ar 年代測定 1 回分に必要な分離済み試料の最低限の量である。測定中に機器のトラブルが生じることも考えられるため、表 1 の最低限の量の 2～3 倍は準備しておいた方が無難である。

5. 分離前作業

K-Ar 年代測定のための分離を行う前に、まず最初に行うことは薄片作製である。我々が手にする岩石試料は多かれ少なかれ風化・変質を被っている。従って、肉眼では新鮮に見える岩石試料においても薄片を作製し、鏡下観察を行うことで、測定対象物の状態を確認する必要がある。特に確認すべき事の一つは測定対象物が風化・変質していないかどうかである。例えば、ガラス部分が風化・変質して粘土化しているにもかかわらず、ガラス質の石基を濃集させたり、長石がパーサイト化しているにもかかわらず、長石を測定対象鉱物にすることは避けたい（兼岡, 1998）。但し、どの程度まで風化・変質すると年代測定は行わない方がよいのかという判断は、上述したような明らかな場合を除いて、かなり主観的な面があり難しい。次に、鏡下観察により年代測定に必要な量が得られ、かつ不純物が少ない測定対象鉱物の最適な粒径を決定することである。例えば、測定対象鉱物中に包有物があったり、あるいは測定対象外の鉱物が表面に付着している場合、測定対象鉱物の本来の粒径より小さいものを濃集させた方がよい。これは分離の過程で粉砕により包有物や表面に付着した測定対象外の鉱物をできるだけ独立させて減らすことで、測定対象鉱物の純度が上がることを期待している。

最後に、分離作業を行う部屋の清掃である。手抜きしが

表 1. K-Ar 年代測定 (1 測定分) に必要な分離済み試料の量。

試料	K含有量 (wt.%)	第四紀～数Ma	100Ma程度
石基	1	1.3g	—
斜長石・角閃石	0.3	1.5g	0.6g
イライト・黒雲母・白雲母	5～8	1.0g	0.3g
カリ長石	10	0.6g	0.2g
輝石	0.02	3.0g	2.0g

ちであるが、非常に重要な事である。清掃後、部屋の中は微粒子が舞っているため、コンタミネーションを避けるために数時間は作業を行わないようにする。作業直前に再度机などを濡れたキムタオルなどで拭く。

6. 分離作業の手順

6-1. 火山岩中の石基の濃集

(1) 岩石試料を水道水で洗浄後、岩石切断機を使用して、岩石試料を厚さ約 5mm～1cm 程度の薄い板状にスライスする（この段階で異質岩片・鉱物片、巨斑晶及び風化・変質部分の除去を可能な限り行う）。

(2) 岩石スライス試料を水道水で洗浄後、超音波洗浄を行い、乾燥させる。

(3) 岩石スライス試料を洗浄済み鉄板の上でハンマーを用いて 1 cm 角程度の大きさに砕き、(1) で除去できなかった比較的粗粒な異質岩片・鉱物片、巨斑晶、及び風化・変質部分を取り除く。

(4) 残った試料を鉄乳鉢で粉砕しながら、ステンレス製の篩（杵のみ）と使い捨ての布製ナイロンメッシュ（ステンレス製の杵と一体化した篩は、コンタミネーションの危険があり、第四紀試料では使用を避けたい）を用いて 60-80（開口径約 190-250 μ m）あるいは 80-100（開口径約 150-190 μ m）メッシュ・サイズに整粒する。60 メッシュサイズより粒径が大きくなると一般に石基に数多くの斑晶鉱物が付着することが多くなる。これは試料の不均質性をもたらすことになる。K-Ar 年代測定はカリウム分析及びアルゴン同位体比測定をそれぞれ独立した分析法で求めて年代を算出するため、試料の不均質性は致命的な問題である。一方、100 メッシュ・サイズより粒径が小さくなると、総表面積が大きくなる分、試料表面に吸着する大気アルゴンが多くなる可能性がある。大気起源の ^{40}Ar が増えることは年代の誤差が大きくなる要因になり（Itaya *et al.*, 1984）、特に第四紀などの若い年代の試料では大きなデメリットである。大気吸着アルゴンを除去するために、アルゴン測定の前段階では数日間試料を焼き出ししながら排気を行うが、大気吸着アルゴンを完全に除去できるとは限らない。以上の理由から経験的に上記メッシュ・サイズで整粒するのが妥当と考えられる。

試料粉砕に使用する道具であるが、第四紀試料のようなコンタミネーションを特に注意する必要がある若い年代の試料、あるいは試料が少量で粉砕の際に出来るだけ希望の

粒径以下にならないように手加減をする必要がある場合は鉄乳鉢を用いるのが最適である。その他にジョークラッシャー及びスタンプミルも試料の粉碎に使用されるが、複雑な構造をもつ道具ほど細粒になった試料が付着しやすくコンタミネーションの危険が大きい。また、試料を粉碎すると必ず使用した道具の微破片が試料に混入するため、特殊な材料ではなく、鉄乳鉢の鉄破片のようなハンド磁石などで簡単に除去できる乳鉢を使用する方が手間はかからない。

鉄乳鉢の使用後は、まずは水道水で洗浄し、その後 10 分間超音波洗浄を行う。キムタオルなどで十分に水分を拭き取り、さらに、鉄乳鉢が錆びつかないようにエタノールでよく拭く。その後、乾燥機で乾燥させる。鉄乳鉢の使用前にはこれから分離を行う試料の一部を使って共洗い（要らない部分を粉碎して付着している物質の除去）をすることを薦める。

(5) 60-80 (あるいは 80-100) メッシュ・サイズの試料を水道水で濁りがなくなるまで攪拌棒で混ぜながら洗浄する。その後、超音波洗浄器を用いて微粒子を取り除く。超音波洗浄を 3 分程度行うと再び濁るので、脱イオン水で濁りがなくなるまで攪拌棒で混ぜながら洗浄する。再度、超音波洗浄を 3 分程度行い、脱イオン水で濁りがなくなるまで洗浄し、乾燥させる。

(6) 鉄乳鉢で粉碎する際に混入した鉄片や強磁性鉱物（磁鉄鉱など）を希土類磁石で除去する。(5) の前に行っても良い（(5) の乾燥中に鉄片が錆びてビーカーの底に付着することがよくあるため）。

(7) 超音波洗浄を行うことで、微粒子除去に加えて、粒子表面の付着物が分離して、粒径が小さくなることもある。測定対象物の粒径がばらつくと、以下に述べる電磁分離器の効果が弱くなる。そのため、再度ふるいをかけて粒径を揃える。

(8) 帯磁率の違いを利用して固体粒子を分離する電磁分離器（アイソダイナミック・セパレーター）を用いて、斑晶と強磁性鉱物を除去する。電磁分離器を使用する際は湿度を低め（40%以下）で一定にした方が良い。エアコンで湿度調整ができればベストである。もし、湿度調整ができない環境に電磁分離器が設置されている場合は日中湿度が低い日に分離を行うようにする。また、電磁分離器でうまく分離するためには、篩い分けによって試料のサイズの幅を絞る方が良い（例えば、60-100 メッシュサイズよりも 60-80 メッシュサイズの方がうまく分離できる）。電磁分離器の使用で、左右及び前後にそれぞれどのくらい傾斜させて、どの程度の電流値にすると分離できるのかとしばしば尋ねられることがある。これらは試料によって異なるため、自らが試行錯誤して最適の条件を見い出さなければならない。

(9) 分離した石基に付着した塩分を取り除く（脱塩処理）。石基の入ったビーカーに温めた脱イオン水（60-70℃程度）を注ぎ、軽く攪拌する。その後、60-70℃程度に設定したホットプレート上、あるいは恒温槽内に置く。この時、温脱イオン水が蒸発し過ぎないようにビーカーの口はアルミ箔などで覆う。試料が入ったビーカーの他に、もう一つ入

れ替え用の脱イオン水を入れたビーカーを準備しておく効率が良い。このビーカーもまたアルミ箔で蓋をし、試料が入ったビーカーと同様に加熱しておく（60-70℃程度）。一日 2~3 回程度の温脱イオン水の入れ替えを 3 日間行って洗浄する。特に、海岸付近で採取された試料の場合、海水からの塩化ナトリウムの混入があり、カリウム分析及びアルゴン同位体比測定において、精度の高い測定のためになるので注意が必要である（例えば、長尾・板谷、1988；板谷、1999）。

(10) 脱塩処理した試料の水を切った後、乾燥させる。

6-2. 火山岩中の斑晶鉱物及び花崗質岩中の鉱物分離

(1) 「火山岩中の石基の濃集の (1)」と同じ。

(2) 「火山岩中の石基の濃集の (2)」と同じ。

(3) 「火山岩中の石基の濃集の (3)」と同じ。

(4) 第四紀試料の場合、残った試料を鉄乳鉢で粉碎しながら、ステンレス製の篩（枠のみ）と使い捨ての布製ナイロンメッシュを用いて整粒する。第四紀より古い年代の試料の場合は、残った試料を鉄乳鉢、ジョークラッシャー、またはスタンプミルなどを用いて粉碎し、分離者の好みでステンレス製の篩（枠のみ）と使い捨ての布製ナイロンメッシュ、あるいはステンレス製の枠と一体化した篩を用いて整粒する。その際、水道水で水洗しながら篩い分けを行うと効率的であり、篩い分けの時に舞い上がる粉塵を吸い込む危険性が少ない。篩の水の流れが悪い場合は試料の量を減らすか、あるいは脱イオン水を使うと流れやすくなる。使用するふるいのメッシュ・サイズは、まず薄片で鏡下観察を行い、目的の鉱物の粒径より小さいもので整粒する。これは目的の鉱物の本来の粒径で濃集させると、その粒子の周りに別の鉱物が付着して純度が低下するためである。また、粒子内に包有物が存在する場合は、かなり細粒にして整粒することで、包有物を独立させて除去できるので、目的の鉱物の純度が上がることを期待できる。

篩は#30-60, #60-100, #100-150, #150-200, #200-250, #250-300 あたりで分ける。これは粒径にばらつきがあると、前述したように電磁分離器の効果が弱くなるからである。使用する篩は、鏡下観察で決定したメッシュ・サイズ（例えば、#100-150 とすると）とその前後 1 フラクション（#60-100 と #150-200）の 3 段重ねくらいにする。篩い分けで集まったすべてのフラクションをそれぞれ脱イオン水で洗浄し、水を切った後に乾燥させる。

(5) 実体顕微鏡で観察を行い、年代測定対象鉱物の純度が最も良く、かつ測定に必要な量が得られそうな 1 フラクションを選択する。測定に必要な量が得られそうな場合は、最も純度の高いフラクションとその他のフラクションをむやみに混ぜ合わせることは純度を下げるだけでなく、不均質になる原因となるため避けた方がよい。測定に必要な量が得られそうにない場合は、純度の良い複数のフラクションについて別々に以下の作業を進める。

(6) 粉碎する際に混入した鉄片や強磁性鉱物（磁鉄鉱など）を希土類磁石で除去する。

(7) 電磁分離器（アイソダイナミック・セパレーター）

を用いて、磁性の有る鉱物（雲母類・角閃石類など）と磁性の無い鉱物（長石類・石英・ジルコンなど）を分別する。

(8) 重液、タッピング及び酸処理で目的の鉱物を分離濃集させる。

(9) それぞれの鉱物の純度をさらに高めるために、ハンドピックで目的の鉱物以外のものを除去する。測定に必要な量が得られている場合は異なるフラクションを混ぜ合わせる必要はないが、実体顕微鏡で観察を行い、同程度の純度のフラクション同士を混ぜ合わせることは問題ない。

(10) 「火山岩中の石基の濃集の (9)」と同じように、目的の鉱物が濃集した試料は、付着した塩分を取り除くために、温めた脱イオン水の入替えを3日間行って洗浄する。

(11) 脱塩処理した試料の水を切った後、乾燥させる。

6-3. 鉱物種別の分離法

6-3-1. 雲母類

6-2. の (7) の後、タッピングを行う。タッピングとは鉱物の形状を利用した分離法の一つで、雲母鉱物などの平板な形状をもつ鉱物の分離に有効である。薬包紙の上に試料を少量載せて、こぼれ落ちないように薬包紙上で試料を左右に滑らせた後、別の薬包紙上で試料が載った薬包紙をゆっくりと傾ける。雲母類などの板状鉱物は静電気で薬包紙に残り、柱状鉱物などは滑り落ちる。薬包紙に残った雲母類を実体顕微鏡で観察し、純度が最も良い傾斜角度を決める。タッピングに用いる道具としては薬包紙の他に、上質コピー紙や表面が滑らかな OHP 用シートなども使用できる。薬包紙の場合、しわが出来たらすぐに新しいものに交換する。OHP 用シートはタッピング中にしわが出来ず、洗浄して乾燥させれば、何回も使用できる。また、乾燥したピーカーに試料を入れ、傾けて回転させることで、雲母類が静電気でピーカーの壁面に付く。付着した雲母類を回収し、この操作を繰り返すことで雲母類を濃集させることもできる。形状による水中での沈降速度の差を利用した水簾によって雲母類を分離することも可能である。簡便な方法にはピーカーに試料を入れ、水を入れて攪拌した後、水中で沈みにくい雲母類が多く含まれる上層部を回収する方法がある。応用例として、特別に工夫されたガラス製の水簾装置が島根大学で開発され、その後、金沢大学（現在は岡山理科大学に移設）や広島大学でも改良版が作製されている。

6-3-2. 普通角閃石

試料によっては 6-2. の (7) の電磁分離器の設定条件次第でかなり純度良く普通角閃石が集まる場合がある。通常、普通角閃石と黒雲母が共生する場合、しばしば両者の分離には有害な重液を用いる必要がある。しかし、電磁分離器の設定条件に依ってはこれらを精度よく分離することができる場合がある。まず磁性の強い側に普通角閃石と黒雲母のみが流れてくるように調整する。この時、鉱物の形状を利用して両者を分離する。すなわち受け皿を少し傾げることで板状の黒雲母は落下場所に溜まるが、柱状の普通角閃石は転がって黒雲母とは別の位置に溜まるようにすることができる。最終的には重液あるいはタッピングにより黒雲

母をさらに除去し純度を高めるのが良い。荒技としては塩酸処理により黒雲母を分解（一部分解）させた後、電磁分離器あるいは重液を用いて普通角閃石の純度を高めることもできる。但し、塩酸処理を行った場合は後述する洗浄方法を実施しなければならない。

6-3-3. 長石類

6-2. の (7) の後、長石類は重液を用いて回収する。長石類は比較的比重が軽いので、無毒で扱いやすい SPT（ポリタングステン酸ナトリウム）を使用するのが良い。SPT の扱いは、檀原ほか（1992）で詳しく紹介されているので参照されたい。

7. 軽石中の鉱物の分離

火砕流堆積物の K-Ar 年代測定を行う場合、測定試料が本質物質であることが重要である。特に、1) 堆積時に下位の地層の異質物質を巻き込んでいないかどうか、2) 測定対象である層準が上位または下位の地層との混合を示す堆積構造を示さないかどうかという二点を注意しなければならない。以上の条件を比較的容易に満たすのは、軽石中から得られる鉱物（斜長石、カリ長石、黒雲母及び普通角閃石など）である。以下に分離手順を記す。

(1) 軽石の表面に付着する遊離結晶を除去するために、水道水で一つ一つ洗浄後、超音波洗浄を 10 分間行う。超音波洗浄の際、ピーカーに軽石を入れ過ぎると洗浄効率が落ちるため注意する。

(2) 試料の乾燥後、出来るだけ軽石中の鉱物を粉砕しないようにハンマーあるいは乳棒で丁寧に粉砕する。

(3) 篩を積み重ねて（例えば、60、100 及び 200 メッシュ・サイズ）、粉砕した試料を適量入れ、水道水を流し込みながら篩い分けを行う。試料が流れ落ちにくい場合は試料の量を減らすか、あるいは脱イオン水を流し込むと良い。水がスムーズに流れ落ちるようになったら篩い分けは終了する。

(4) 篩い分けで集まった試料を入れたピーカーに脱イオン水を入れ、攪拌棒で攪拌しながら濁りがなくなるまで洗浄する。この段階では超音波洗浄は特に行う必要はない。

(5) 以下、鉱物の分離法は「鉱物分離」の章と同じである。

8. 塩酸処理の方法

塩酸処理は K-Ar 年代測定の対象となる鉱物の純度を上げるための有効な手段の一つである。緑泥石や黒雲母は希塩酸と反応して分解するが、白雲母、イライト（セリサイト）、普通角閃石及び斜長石は希塩酸だけでは分解しない。塩酸処理の濃度及び時間は鉱物種やその粒径によって異なるため、状況を見ながら試行錯誤で行うことが望ましい。一例として、セリサイトと共存する緑泥石を分解するために、6 規定塩酸処理を行った後、後述する洗浄方法を実施すれば、年代への影響はないことが確認されている (Sawai *et al.*, 1989; Itaya *et al.*, 1991)。しかしながら、他

の鉱物を用いて塩酸処理の有無で年代を比較した例は無く、今後の課題である。

一般的な塩酸処理方法を以下に述べる。

(1) ドラフト内にホットプレートを設置し、温度を 60-70°C 程度（沸騰しない程度）に設定する。

(2) ホットプレート上に試料が入ったビーカー（100cc あるいは 200cc）を置き、ゆっくりと希塩酸を注ぐ。

(3) 溶液がある程度熱せられてから 15 分程度反応させる。攪拌棒で溶液をこまめに攪拌する。通常、反応時の溶液の色は黄色～黄緑色を呈する。

(4) 溶液の色が濃い緑色を呈する場合は、一度溶液を捨て、新たに上記の希塩酸を注いで反応させる。溶液が薄い黄色あるいは色をほとんど呈しなくなったら終了する。塩酸処理の合計時間は最大 30 分程度を目安とする。これは塩酸処理時間があまり長くなると、測定対象鉱物自体がダメージを受ける可能性があるからである。

9. 塩酸処理後の洗浄方法

塩酸 ($^1\text{H}^{35}\text{Cl}$, $^1\text{H}^{37}\text{Cl}$) とアルゴン (^{36}Ar , ^{38}Ar) とは同重体となる。これらを分別するためには高い分解能を必要とするが、年代測定用の質量分析計では分別できないことが多い。また抽出後のガスの精製段階でも塩素及び塩酸の濃度が高い場合にはこれらを完全に除去できない。従って K-Ar 年代測定用の試料については予め出来るだけ塩素及び塩酸を除いておく必要がある。塩酸処理後は以下の手順で洗浄を行う。

(1) 試料の入ったビーカー（洗浄効率を良くするため 500cc 以上の大きなビーカーを使用する）に脱イオン水を注ぎ、攪拌した後、試料が沈降したことを確認してから上澄み液を捨てる。これを 5 回行う。

(2) 試料の入ったビーカーに脱イオン水を注ぎ、1~3 分程度超音波洗浄する。

(3) ホットプレート（60-70°C 程度に設定）に試料の入ったビーカーをのせて、温脱イオン水を注ぎ、こまめに攪拌する。30 分から 1 時間毎に新しい温脱イオン水に入れ替える。上記の温脱イオン水の入れ替えを 15~20 回程度行う。都合により作業を長時間中断する時は、温脱イオン水があまり蒸発し過ぎないように、アルミ箔などでビーカーの口を覆ってから放置する。恒温槽内に放置してもよい。

(4) 乾燥後、篩い分けを行い整粒する。これは塩酸処理後、粒子に付着した不純物などが分解あるいは分離することで、試料の粒径が若干変化するためである。

(5) 念のため、再度、希土類磁石で鉄鉱物を除去する。

10. おわりに

上記の鉱物分離マニュアルに従って分離を行い、K-Ar 年代測定を実施することで今までに大きな問題は生じていない。しかしながら、今回の鉱物分離マニュアルはベストなものではないかもしれない。他の研究者や他機関の方々にも本稿を読んでいただき、ご意見をいただくことで、今後よ

り一層充実した鉱物分離マニュアルを作成・改訂していきたい。

謝 辞

上述した分離法は筆者の今までの分離作業の経験からいくらか改良を加えているものの、主に岡山理科大学の板谷徹丸教授並びに株式会社蒜山地質年代学研究所の竹下浩征所長にご指導していただいたものである。スタンフォード大学（現：金沢大学）の辻森 樹博士には岡山理科大学にあるガラス製の水籤装置の使用法をご指導いただいた。弊社の郷津知太郎博士には初稿を読んでいただき有益なコメントをいただいた。末筆ながらここに記して厚くお礼申し上げる。

文 献

- Armstrong, R. L., Jäger, E. and Eberhardt, P. (1966) A comparison of K-Ar and Rb-Sr ages on Alpine biotites. *Earth and Planetary Science Letters*, **1**, 13-19.
- 檀原徹・岩野英樹・糟谷正雄・山下透・角井朝昭 (1992) 無毒な重液 SPT (ポリタングステン酸ナトリウム) とその利用. *地質ニュース*, **455**, 31-36.
- Dalrymple, G. B. and Moore, J. G. (1968) Argon 40 excess in Submarine pillow basalts from Kilauea volcano, Hawaii. *Science*, **161**, 1132-1135.
- Dodson, M. H. (1973) Closure temperature in cooling geochronological and petrological systems. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, **40**, 259-274.
- Funkhouser, J. G., Fisher, D. E. and Bonatti, E. (1968) Excess argon in deep-sea rocks. *Earth and Planetary Science Letters*, **5**, 98-100.
- Gouzu, C., Itaya, T., Hyodo, H. and Matsuda, T. (2006) Excess ^{40}Ar -free phengite in ultrahigh-pressure metamorphic rocks from the Lago di Cignana area, Western Alps. *Lithos*, in press.
- Harrison, T. M. and McDougall, I. (1982) The thermal significance of potassium feldspar K-Ar ages inferred from $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ age spectrum results. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **46**, 1811-1820.
- Harrison, T. M., Armstrong, R. L., Naeser, C. W. and Harnakal, J. E. (1979) Geochronology and thermal history of the Coast Plutonic Complex near Prince Rupert, British Columbia. *Canadian Journal of Earth Sciences*, **16**, 400-410.
- Hunziker, J. C., Desmons, J. and Hurford, A. J. (1992) Thirty-two years of geochronological work in the Central and Western Alps: a review on seven maps. *Mémoires de Géologie (Lausanne)*, **13**, 1-59.
- Hunziker, J. C., Frey, M., Clauer, N., Dallmeyer, R. D., Friedrichsen, H., Flehmig, W., Hochstrasser, K., Roggwiler, P. and Schwander, H. (1986) The evolution of illite to muscovite: mineralogical and isotopic data from the Glarus Alps, Switzerland. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, **92**, 157-180.
- Imaoka, T. and Itaya, T. (2004) K-Ar geochronology of a middle Miocene submarine volcano-plutonic complex in southwest Japan. *Geological Magazine*, **141**, 1-13.
- 板谷徹丸 (1997) アルプスと西南日本：二つの代表的造山帯の年代学的特徴. *地学雑誌*, **106**, 699-706.
- 板谷徹丸 (1998) 地質学に貢献する放射年代学—日本の現状と展望

- 一. 地質学論集, 49, 107-120.
- 板谷徹丸 (1999) カリウム・アルゴン法. 考古学と自然科学④「考古学と年代測定学・地球科学」(編者: 松村秀治・上杉 陽・藁科哲男). 同成社, 353p.
- Itaya, T., Ito, H. and Nagao, K. (1991) Degassing of argon from young geological materials by low temperature stepwise heating. *Mineralogical Journal*, 15, 309-320.
- Itaya, T. and Fujino, M. (1999) K-Ar age-chemistry-fabric relations of phengite from the Sanbagawa high-pressure schists, Japan. *Island Arc*, 8, 523-536.
- 板谷徹丸・長尾敬介 (1988) 100 万年より若い火山岩類の K-Ar 年代測定. 地質学論集, 29, 143-161.
- Itaya, T., Nagao, K., Nishido, H. and Ogata, K. (1984) K-Ar age determination of late Pleistocene volcanic rocks. *Journal of the Geological Society of Japan*, 90, 899-909.
- 板谷徹丸・岡田利典 (1995) 第四紀研究における K-Ar 法の過去・現在・未来. 第四紀研究, 34, 249-259.
- Itaya, T. and Takasugi, H. (1988) Muscovite K-Ar ages of the Sanbagawa schists, Japan and argon depletion during cooling and deformation. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 100, 281-290.
- 兼岡一郎 (1998) 年代測定概論. 東京大学出版会, 315p.
- Kaneoka, I., Mehnert, H., Zashu, S. and Kawachi, S. (1980) Pleistocene volcanic activities in the Fossa Magna region, central Japan—K-Ar age studies of the Yatsugatake volcanic chain. *Geochemical Journal*, 14, 249-257.
- 長尾敬介・板谷徹丸 (1988) K-Ar 法による年代測定. 地質学論集, 29, 5-21.
- Nagao, K. and Takahashi, E. (1993) Noble gases in the wedge mantle and lower crust: an inference from the isotopic analyses of mantle xenoliths from Oki-Dogo and Ichinomegata, Japan. *Geochemical Journal*, 27, 233-244.
- 岡 美緒 (2006) 韓国全谷里考古遺跡の年代学. 平成 17 年度岡山理科大学卒業論文.
- 岡田利典・板谷徹丸 (1994) 明礬石 K-Ar 年代測定のためのガラス製ガス抽出精製装置. 岡山理科大学自然科学研究所研究報告, 20, 59-61.
- 岡本和夫・今村外治 (1964) 山口県油谷湾付近の第三系. 広島大学地学研究報告, 13, 1-42.
- Sawai, O., Okada, T. and Itaya, T. (1989) K-Ar ages of sericite in hydrothermally altered rocks around the Toyoha deposits, Hokkaido, Japan. *Mining Geology*, 39, 191-204.
- 柴田 賢 (1991) カリ長石の K-Ar 年代と閉鎖温度. 地質ニュース, 437, 7-14.
- 柴田 賢・高木秀雄 (1988) 中央構造線沿いの岩石および断層内物質の同位体年代—長野県分岐峠地域の例—. 地質学雑誌, 94, 35-50.
- 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, 343-351.
- 高岡宣雄・今野幸一・大場与志男・今田 正 (1989) 蔵王火山溶岩の K-Ar 年代測定. 地質学雑誌, 95, 157-170.
- 高木秀雄・柴田 賢 (1992) 断層ガウジの K-Ar 年代測定—中央構造線における例—. 地質学論集, 40, 31-38.
- 竹下 徹・直本啓祐・八木公史 (1997) 広島大学理学部地球惑星システム学教室蔵変形岩試料の研究 (3) エシユロン石英脈中の古応力場解析と形成温度. 広島大学博物館研究報告, 第 3 号, 41-49.
- 竹下 徹・八木公史 (1998) 野島断層ボーリングコアを構成する変形石英中のマイクロクラックの 3 次元方位分布に基づく古応力場の推定. 月刊地球 (号外), 21, 191-195.
- Takeshita, T. and Yagi, K. (2001) Paleostress orientation from 3-D orientation distribution of microcracks in quartz from the Cretaceous granodiorite core samples drilled through the Nojima Fault, south-west Japan. *Island Arc*, 10, 495-505.
- Takeshita, T. and Yagi, K. (2004) Flow patterns during exhumation of the Sambagawa metamorphic rocks, SW Japan, caused by brittle-ductile, arc-parallel extension. In: *Vertical Coupling and Decoupling in the Lithosphere, Special Publications* (eds. Grocott, J., McCaffrey, K. J. W., Taylor, G. and Tikoff, B.), 227, 279-296. The Geological Society of London.
- 田中秀美・坂 幸恭・阿部武史・小浜俊介・板谷徹丸 (1992) 赤石裂線の断層ガウジとその K-Ar 年代. 地質学雑誌, 98, 39-48.
- Tanaka, H., Uehara, N. and Itaya, T. (1995) Timing of cataclastic deformation of the Akaishi Tectonic Line, central Japan. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 120, 150-158.
- 鳥居真之・尾田太良・板谷徹丸 (2000) 宮崎層群に挟在する凝灰岩層とその K-Ar 年代. 火山, 45, 131-148.
- 鶴田忠彦・池田幸喜・檀原 徹・山下 徹・岩野英樹・飯田義正 (1995) SPT を用いた粘土鉱物の重液分離—不整合関連型ウラン鉱床に伴う変質帯の鉱物共生関係解析への応用—. 資源地質, 45, 145-156.
- 八木公史 (1997) 変形石英中の微細構造に基づく古応力場解析. 平成 8 年度広島大学卒業論文.
- Yagi, K. (1999) Microstructural analyses in quartz schist from the Sambagawa metamorphic belt in the Saruta-gawa river area, central Shikoku, Japan. 平成 10 年度広島大学修士論文.
- Yagi, K. (2002) Exhumation tectonics revealed by amphibole zoning, quartz microstructures and phengite K-Ar ages of the Sambagawa metamorphic rocks in central Shikoku, southwest Japan. PhD Thesis, University of Hiroshima, Japan.
- 八木公史・田上雅彦・竹下 徹 (1998) 四国中央部三波川帯猿田川ルートにおける石英片岩中の変形微細構造と運動像. 地球惑星科学関連学会合同大会 (東京代々木国立オリンピック記念青少年総合センター), Le-p003.
- 八木公史・竹下 徹・田上雅彦 (2001) 四国中央部三波川帯における上昇速度の地域差. 日本地質学会第 108 年学術大会 (金沢), 講演要旨, 0-319.
- 八木公史・竹下 徹 (1997) 四国中央部三波川帯における低角正断層群とその意味. 日本地質学会第 104 年学術大会 (福岡), 講演要旨, 225.
- 八木公史・竹下 徹 (1998) 石英ファブリックに基づく四国三波川帯猿田川地域の変形条件と運動像. 日本地質学会第 105 年学術大会 (松本), 講演要旨, 438.
- 八木公史・竹下 徹 (1999) 四国中央部における三波川変成岩の累進および後退過程の地域差. 日本地質学会第 106 年学術大会 (名古屋), 講演要旨, P-85.
- Yagi, K. and Takeshita, T. (2002) Regional variation in exhumation and strain rates of the high-pressure Sambagawa metamorphic rocks in central Shikoku, south-west Japan. *Journal of Metamorphic Geology*, 20, 633-647.
- 八木公史・竹下 徹・板谷徹丸 (2002) 三波川帯上昇末期の低温下での大規模脆性—塑性流動による構造改変. 日本地質学会第 109 年学術大会 (新潟), 講演要旨, P-216.

