

蒜山地質年代学研究所における K-Ar年代測定の業務を振り返る

八木 公史¹⁾

キーワード：K-Ar年代測定, 岩種, 鉍物種, 第四紀試料,
大気アルゴン混入率, 低カリウム分析

1. K-Ar年代測定との出会い

筆者とK-Ar年代測定との出会いは広島大学大学院博士課程(後期)在籍時の2001年10月にまで遡る。筆者は四国中央部三波川帯の上昇過程の研究の最終段階で、変成帯に時間軸を挿入する必要性が生じていた(それまでの経緯は、「地質技術」創刊準備号No.0の八木(2006)に書かれている)。当時、指導教官であった竹下徹教授(現在、北海道大学教授)と親交のあった岡山理科大学自然科学研究所の板谷徹丸教授を紹介して頂き研究室を訪問した。

訪問早々、筆者は板谷教授から研究発表を行うように指示され、板谷研究室で年代測定の必要性を話した。その時同席したのは、板谷教授の他に、辻森樹博士(2000年4月から1年間、蒜山地質年代学研究所(以下、蒜山研究所と略する)に在籍、現在、岡山大学地球物質科学研究センター准教授)と、後に蒜山研究所の年代学グループで一緒に仕事をすることになる郷津知太郎博士(当時、神戸大学大学院博士課程(後期)在籍)である。発表後、板谷教授からK-Ar年代測定を行う事を快諾され、17試料の泥質片岩から白雲母の分離濃集を始めることになった。最初に、板谷教授と辻森博士から鉍物分離の基本的な流れをご教授頂いた。広島大学で岩石切断、粉碎及び篩分けを行い、板谷研究室で電磁分離、塩酸処理及びタッピングを行った。

当時、板谷研究室で滞在する者は、岡山理科大学から4km程度離れた場所にある専用の宿舎で宿泊していた。板谷研究室には国内だけでなく、国外からも毎年多くの学生や研究者がK-Ar年代測定を行うために訪れる。板谷教授は訪問者が格安(1泊500円)で宿泊できるように民家の一角を借りていた。この宿舎は外国の方が長期滞在することが多いためか、「インターナショナルハウス」と名付けられていた。筆者はそこから毎日自転車を通う面倒を回避し、格安の宿泊代さえも浮かすために辻森博士の研究室に寝袋で泊まった。インターナショナルハウスに宿泊した者は、測定を終えて帰路につく前にノートに滞在期間、所属等を記入することになっていた。そこには大学の研究者や大手地質・建設コンサルタントでよく耳にする名前が残さ

れている。筆者もインターナショナルハウスに宿泊して、そのノートに名前を残しておけば…今となっては岡山に何日くらい滞在したのか記憶が定かでない。

鉍物分離が終わると、次はK分析である。自身が鉍物分離した白雲母の純度が良いのか楽しみであった。初めてのK分析は辻森博士と一緒にやることになった。最初に試料を入れるテフロンビーカーの洗い方だけ板谷教授に教わったと記憶している。K分析は1セット(3日間)で18試料実施することが可能であるが、1試料につき最低2セット行い、再現性を確認する必要がある。辻森博士の試料が1試料あり、筆者が17試料(合計18試料)であったために、辻森博士にはK分析を2セット指導して頂くことになった。板谷研究室でK-Ar年代測定を行う場合、K分析と言えば、板谷教授が指導することになっている。板谷教授の指導の厳しさは、後に気付くことになったが、幸か不幸か筆者はその指導を受けたことがない。板谷教授のK分析のオリジナルのやり方を知らない筆者は、厳しく指導されている学生のところに時々顔を出し、やり方の確認をしたことを覚えている。17試料のK分析(2セット実施)は、すべて高純度で再現性があり、鉍物分離が上手く出来ていたことが分かった。

次はAr同位体測定である。当時、Ar測定と言えば、岡田利典博士(蒜山研究所の初代表取締役、板谷研究室出身)である。岡田博士は質問をしてもなかなか回答してくれなかった。それは質問の内容が論文や書籍に書かれているなど、調べれば分かるような事だったからである。岡田博士が教えてくれるのは、測定機器の操作方法等がメインであった。筆者は今まであまり経験が無いその指導法に戸惑いながらも新鮮な気持ちになった。岡田博士の厳しいご指導により、無事にAr測定を終える事が出来た。小さい失敗すらなく全てを終える事が出来たのは、ご指導頂いた皆様のお蔭であるが、筆者がK分析とAr測定をもう一度したくない一心であったのも事実である。板谷研究室を出る時にはもう二度とK-Ar年代測定をすることはないだろうと思いながら岡山を後にした。

2. K-Ar年代測定との再会

最初に蒜山研究所への入社(2002年4月～)のお声をかけて頂いたのは、翌年2002年1月であったように記憶している。2002年3月に前述の岡田博士が海洋科学技術センター(現在の国立研究開発法人海洋研究開発機構)に異動予定で、蒜山研究所の年代測定担当が空席となることが決定していた。筆者は2002年3月に学位を取得することが絶望的な状況であった事、他に自分に合った就職先を探してみたかった事、さらに、岡田博士の「自分の食い扶持は自分で稼ぐ」という言葉に蒜山研究所でK-Ar年代測定の仕事をやっていく自信を持ってないでいた事から入社のお断りをした。その当時、地質・建設コンサルタント会社は不況の波を受けていて採用枠が狭く、学位取得予定者にとって

はさらに厳しい状況であった。

入社のお断りをしてから約半年が経ち、学位取得の目処が立った頃、就職先が決まっていなかった事から、筆者はダメ元で蒜山研究所の竹下浩征博士(第2代代表取締役)に連絡を入れた。蒜山研究所の年代測定担当が空席のままであったからかもしれないが、快いお返事を頂いた。早速会社訪問をさせて頂いて、所員の方と食事をしながら話をすることで入社への不安が解消されたように思う。「自分の食いつ持ちは自分で稼ぐ」というのは、どこの会社に入っても当然の事である。他に何も無いし、もはや迷いは無かった。

筆者が蒜山研究所に入社したのは、2002年10月、それはK-Ar年代測定との再会でもあった。

3. K-Ar年代測定の業務の特徴と変遷

2000年頃以前は第四紀火山岩の測定が非常に多かったようである。板谷研究室に設置されたアルゴン質量分析計(名称はHIRU, Itaya *et al.*, 1991)は100万年より若い年代が測れるということで各方面から大変重宝されていた。しかし、筆者が入社した頃には、第四紀の若い火山岩の年代測定は一通り測定し尽くされた感があった。当時の不況の波は大手・中堅の会社だけでなく、零細である蒜山研究所もまた例外なく飲み込んでいった。蒜山研究所は2003年2月に最大の危機を迎えることになり(詳しくは「地質技術」創刊準備号No.0の竹下(2006)), 2003年4月から会社組織の形態を変えて“新”蒜山研究所がスタートした。それから現在に至るまで、K-Ar年代測定は年代測定業務の柱となっている。

筆者が入社してから変わったのは鉱物分離作業である。入社後、最初の業務は断層粘土中のイライトのK-Ar年代測定で、測定鉱物のイライトはすでに分離済みであった。筆者が入社する前、火山岩の石基の分離濃集に限っては岡田博士が自身でほとんど行っていたが、他の鉱物分離は外注していたようである。筆者は石基の分離濃集を岡田博士と板谷教授から、鉱物分離(確か、花崗岩中の角閃石)は

竹下博士に教わった。鉱物分離は年代測定において最も重要な作業であることは言うまでもないが、以後原則的にはすべて社内で行われるようになり、基本的な部分はマニュアル化されている(八木, 2006; 八木・板谷, 2011)。

以下に、特に最近3年間に着目したK-Ar年代測定業務の具体的な特徴と変遷について述べる。

3.1. 岩種

これまで受注してきたK-Ar年代測定業務ではどのような岩種が多いのだろうか? 竹下(2006)によれば、創業(1995年)以来の10年間での岩種の試料数の割合は、火山岩類72%、花崗岩類19%、変質岩6%、変成岩類3%である。最近3年間のデータ(図1)では、火山岩類61.0%(溶岩44.5%+火砕岩16.5%)、花崗岩類5.6%、変成岩9.3%、変質岩7.8%、断層岩16.3%である。火山岩類は10年前よりも約10%減じているが現在も圧倒的に多い事に変わりはない。一方で、花崗岩類は19%から5.6%と大幅に減り、変質岩は6%から7.8%と微増であるが大きな変動は無く、変成岩は3%から9.3%と3倍以上ポイントが増えている。花崗岩類の割合の大幅な減少は、以前のデータでは地層処分に関する研究によって基盤の花崗岩が年代測定されていたが、一定の成果を得たことで近年収束したことに依るのかもしれない。変質岩に関しては、鉱床関係の業務・研究で毎年一定量の年代測定の依頼があるが、最近では断層活動に関係した変質岩の年代測定も積極的に実施されるようになった。最近の変成岩の急増は、民間企業からではなく、すべて研究者によるものである。特筆すべきは、近年新たな項目として断層岩が16.3%と業務全体の6分の1程度を占めていることである。これは2011年3月11日の東北地方太平洋沖地震以降、断層岩に関する年代測定の依頼が急増したことに依る。

3.2. 鉱物種

最近3年間でK-Ar年代測定を実施した鉱物種はどうなっているのだろうか? 測定鉱物種の試料数の比率は石基20%、長石類39%(斜長石30%+アルカリ長石9%)、角閃石3%、黒雲母・白雲母13%、雲母粘土鉱物20%、変質

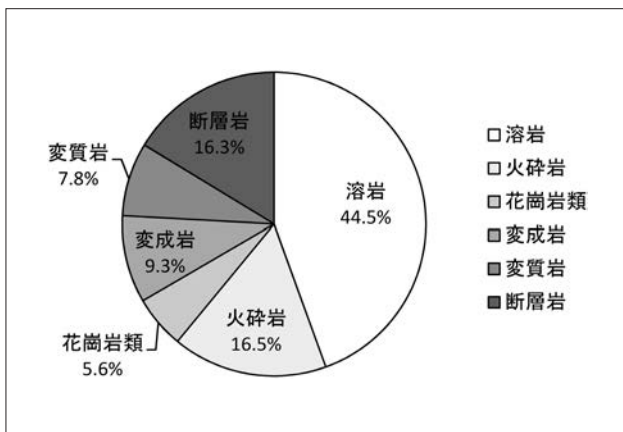


図1 最近3年間のK-Ar年代測定を実施した岩種の測定試料数の割合。

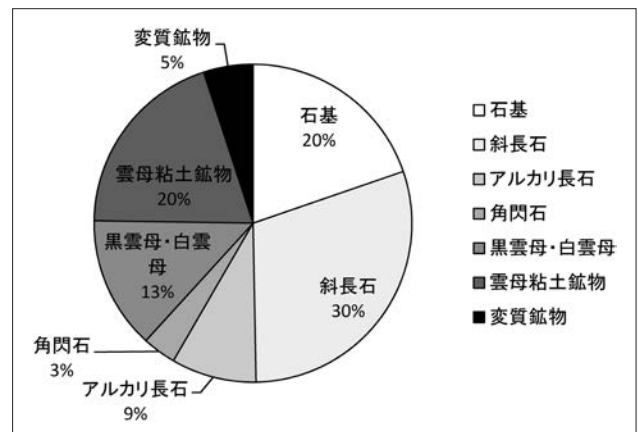


図2 最近3年間のK-Ar年代測定で使用した鉱物種の測定試料数の割合。

鉍物 5% である (図 2)。入社当時の鉍物種のデータは無いが、火山岩の年代測定対象物は、全岩 (石基を分離濃集したもの) を使用することが一般的であった。従って、竹下 (2006) の岩種のデータで最も多い約 70% を占める火山岩のほとんどは石基で年代測定をした事が想像できる。しかしながら、現在では火山岩の石基の状態 (変質の程度) により、年代測定の対象物として斑晶の長石類が積極的に使用されている。その契機となったのは、Imaoka and Itaya (2004) である。この論文では一つの試料から石基だけでなく、斑晶鉍物 (斜長石や単斜輝石) を分離して、それぞれ

年代測定を行って比較している。その結果、石基の年代は斑晶鉍物よりも若い年代を示した。特に 10 数 Ma より古い年代の火山岩の石基は少なからず変質を被っている。鏡下観察で石基がガラス質を含み、変質している場合は躊躇なく斜長石 (このような場合、斑晶の斜長石もいくらか変質していることが多いので、試料全体を細粒化して基質の微細な斜長石も含めて、出来るだけ新鮮そうな部分を濃集する) を選択できるが、どの程度の変質で年代への影響が出るのかははっきりしておらず、今後の研究課題である。

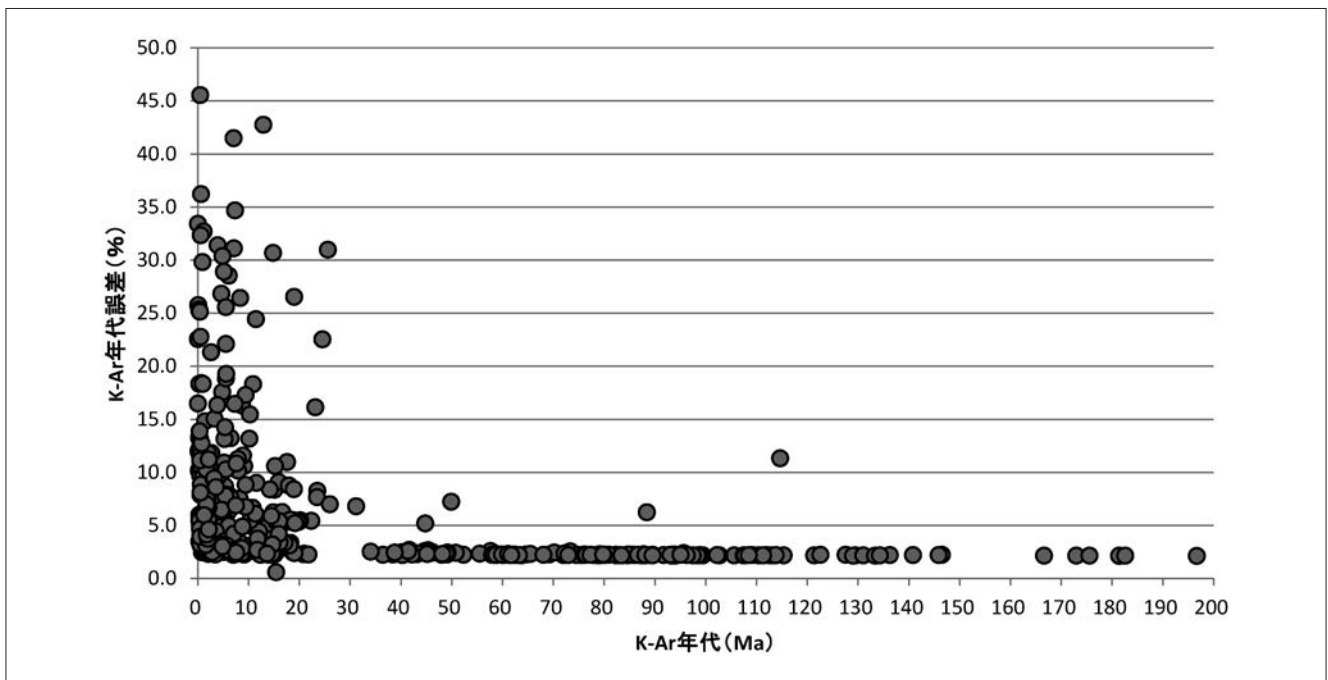


図 3a K-Ar 年代 (0~200Ma) と K-Ar 年代誤差 (%) の関係. 最近 3 年間の業務依頼データに基づく.

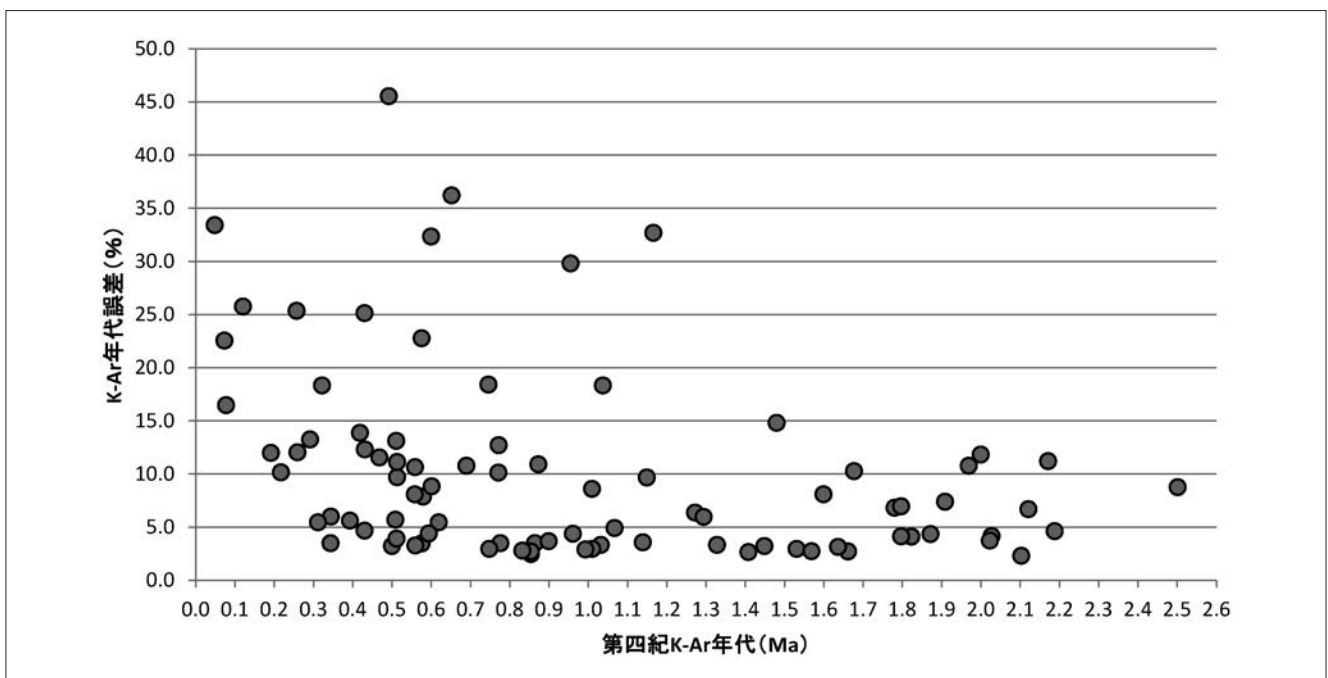


図 3b 第四紀 K-Ar 年代 (0~2.6Ma) と K-Ar 年代誤差 (%) の関係. 最近 3 年間の業務依頼データに基づく.

3. 3. 石基 vs 斑晶

筆者には一つの火山岩試料から石基と斑晶の斜長石を分離して、それぞれを年代測定した経験が数多くある。鏡下において非常に新鮮そうに見える火山岩の場合、20Ma程度の古い年代でも誤差の範囲内で石基からも斑晶の斜長石からも同じ年代結果が得られることはよくある。しかしながら、火山岩中の年代測定対象物として、石基か斑晶の斜長石かの選択は、上記3. 2. の10数Ma程度を基準とするよりも、第四紀試料かどうかで決めるのが良いのではないかと考えている。最近3年間のデータを用いて、200Maま

でのK-Ar年代(Ma)とその年代誤差(%)の関係を示したものが図3aである。図3aの第四紀の範囲を拡大したものが図3bである。図3aからはおおよそ30Maより年代が古い試料では、年代誤差は2.5%程度で一定であり、他の要素(例えば、K含有量の多少や変質の程度)はほとんど影響していないことが分かる(但し、変質の程度に関しては、K-Ar年代測定では出来るだけ新鮮な試料を選択するので影響がほとんど無いのかもしれない)。当然の事ではあるが、年代が若くなる程、大気アルゴン混入率が高くなるので、年代誤差(%)が大きくなる(図3a, b)。一方で、

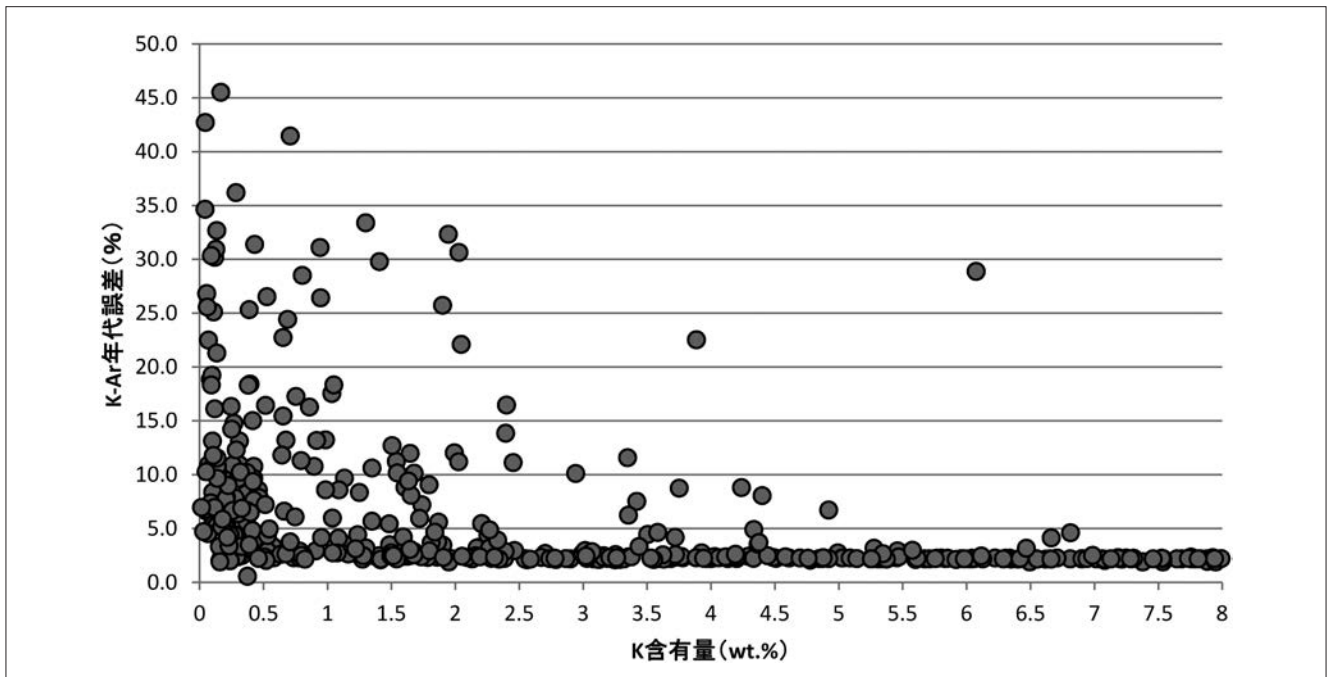


図4a 年代測定対象鉱物のK含有量(範囲:0~8wt.%)とK-Ar年代誤差(%)の関係。最近3年間の業務依頼データに基づく。

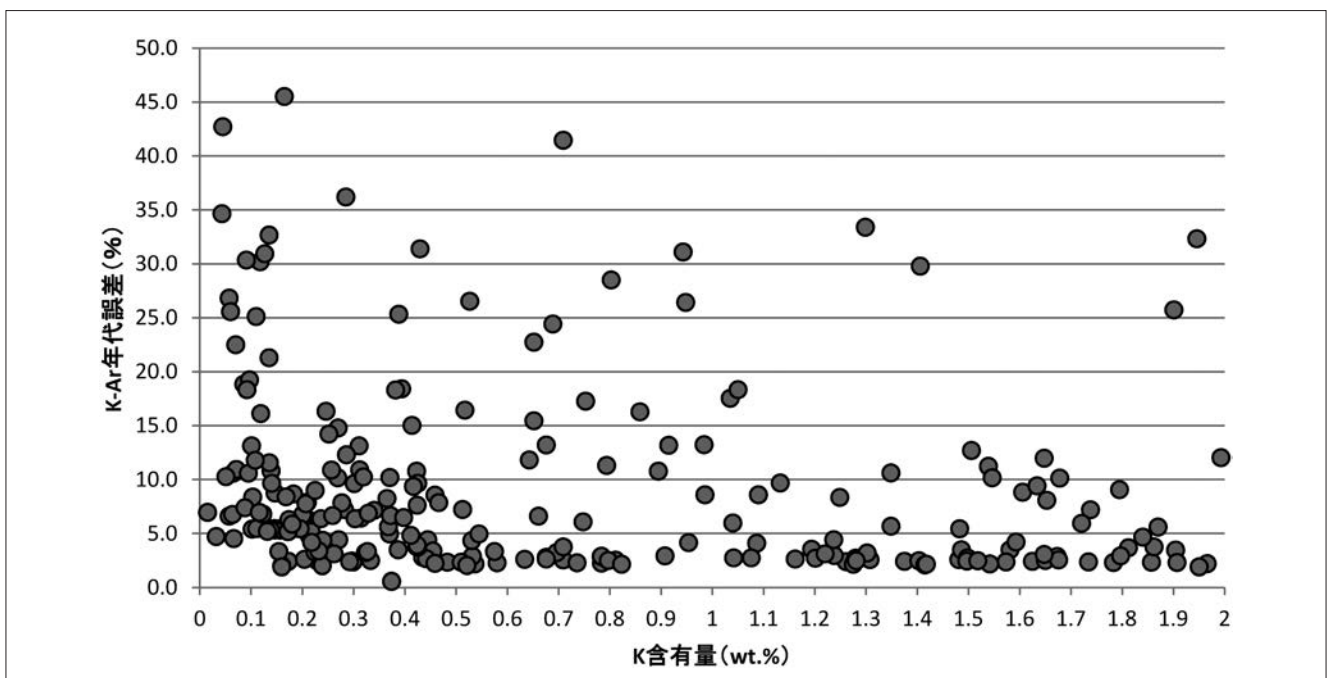


図4b 年代測定対象鉱物のK含有量(範囲:0~2wt.%)とK-Ar年代誤差(%)の関係。最近3年間の業務依頼データに基づく。

図 4a から K 含有量が 2.5wt.% 以上になると、年代誤差は 2.5% 程度でほとんど一定であり、年代の新旧及び変質の程度はほとんど影響しない。図 4a の K 含有量 (wt.%) の 0 ~ 2wt.% の範囲を拡大したものが図 4b である。玄武岩 ~ 安山岩 ~ デイサイト溶岩の石基の場合、K 含有量は 0.1 ~ 2 (wt.%) 程度のことがよくある。K 含有量が少なくなる程 (特に 0.5wt.% 程度より少なくなる程)、大気アルゴン混入率が高くなるので、年代誤差 (%) は大きくなる (図 4b)。図 3b で、0.5Ma あたりから年代誤差 (%) が大きくなる事を考慮すると、0.5Ma より若い年代の試料で、K 含有量が 0.5wt.% より少ない場合は、予め年代誤差が大きくなることを覚悟しなければならない。以上のことから、第四紀試料の場合は石基の状態が余程悪くない限り、斑晶の斜長石よりは K 含有量が多いことを見込める石基を測定することで誤差の小さい年代が得られやすいと言える。一方で、第四紀より古い年代の試料は、石基の状態の程度が分からない場合に、斑晶の斜長石で年代測定することを検討すべきである。但し、近年では過剰アルゴンの存在が指摘されている巨斑晶 (cm オーダー) の除去が可能ならば、第四紀試料の K-Ar 年代測定でも斑晶鉱物が適用されている場合もある (例えば、板谷・長尾, 1988; Ryu *et al.*, 2011)。Ryu *et al.* (2011) によれば、韓国の 2 つの地域に産する玄武岩溶岩の全岩 K-Ar 年代は、以前の研究では 0.1 ~ 0.6Ma とばらついていた。そこで、18 試料の長石の K-Ar 年代測定を行い、2 つの玄武岩が重み付き平均で $0.15 \pm 0.01\text{Ma}$ と $0.51 \pm 0.01\text{Ma}$ の年代を示すことを明らかにした。全岩の場合、玄武岩中のカンラン石やゼノクリストが含まれる場合がある。この論文では実際にカンラン石の K-Ar 年代測定

を行い、過剰アルゴンをもつことを示した。以前の研究での年代値のばらつきは、全岩を使用することによって、過剰アルゴンをもつカンラン石等の混入割合の違いが原因である可能性がある (Ryu *et al.*, 2011)。石基 vs 斑晶の結論はそう単純ではないことが分かる。

3. 4. 大気アルゴン混入率

「この試料の K-Ar 年代は誤差が大きい信頼できる値なのか？」

これはよくある質問である。K-Ar 法では 3. 3. で述べたが、年代が若い程、また、K 含有量が少なくなる程、大気アルゴン混入率が高くなるので、年代誤差 (%) が大きくなる。最近 3 年間の業務依頼データに基づいた大気アルゴン混入率 (%) と K-Ar 年代誤差 (%) の関係を図 5 に示す。K-Ar 法において、試料の初期の $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比が大気アルゴンの $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比 (295.5) と同じであるという仮定が成り立つ場合、大気アルゴン混入率が 80% 程度 (年代誤差が 10% 程度) までの試料は、測定値の信頼性が高いと筆者は考えている。第四紀試料 (特に数 10 万年前より若い試料) では大気アルゴン混入率はほとんどの場合 80% 以上になるが、上述の仮定が成り立っているとすれば、大気アルゴン混入率が 90 数% 程度 (年代誤差が 20% 程度) までの試料は、過去の経験から測定値として使用できるのではないかと思う。

3. 5. 低 K 分析

長石類は様々な岩種で認められるため、新鮮な状態であるならば、積極的に測定対象鉱物として使用すれば良

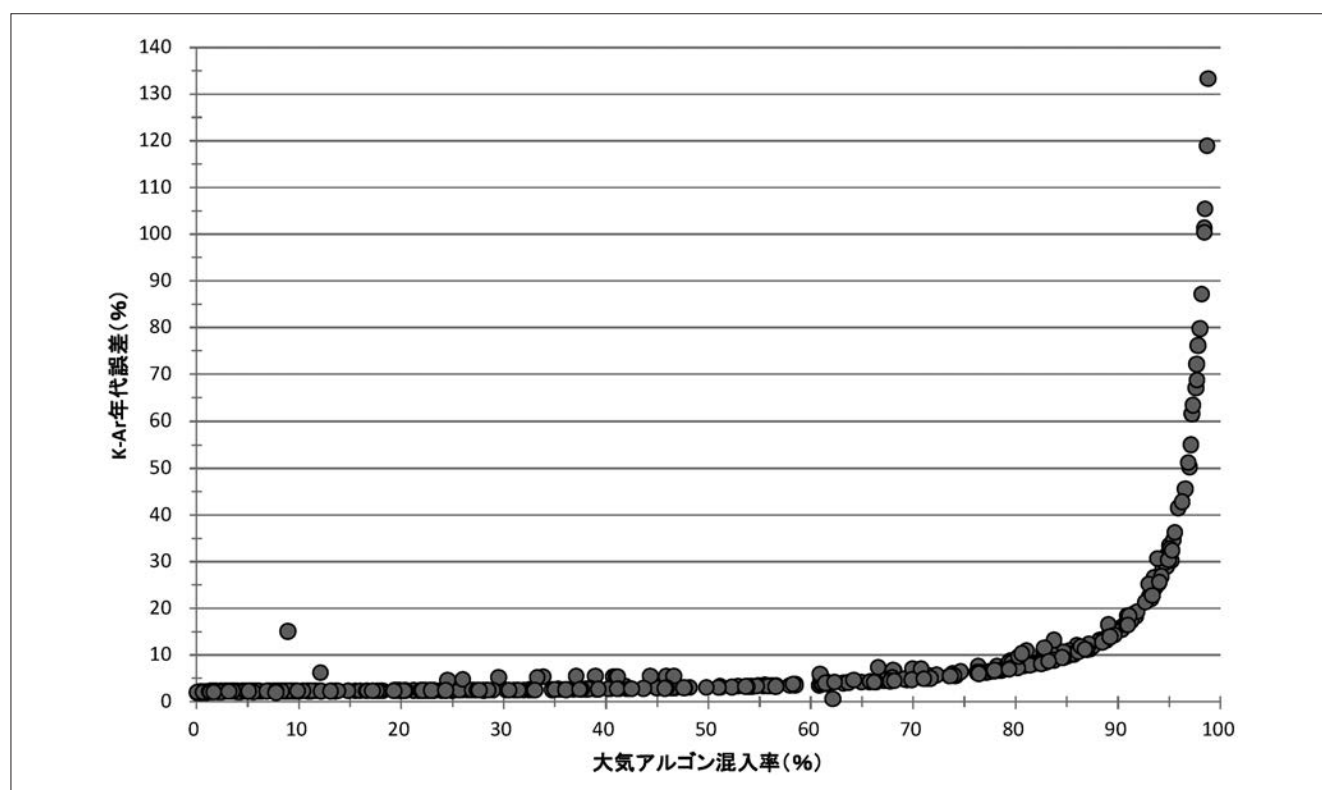


図 5 大気アルゴン混入率 (%) と K-Ar 年代誤差 (%) の関係。最近 3 年間の業務依頼データに基づく。

い。但し、斜長石は岩種に依るが、K含有量が低く、広いレンジの含有量を想定した通常のK分析では定量限界(0.2wt.%)未満となることがしばしばある。2006年に石基の状態があまり良くない火山岩試料の年代測定業務を多数請けることになった。予想年代は1Maより若かったが、石基は変質していたので斜長石を測定対象鉱物とするしかなかった。K分析の結果、多数の斜長石が定量限界未満となり、年代計算が出来ない事態となった。この時に初めて、低K分析(極低ブランク法)(Itaya *et al.*, 1996)を分析項目に取り入れることになった。その結果、K-Ar年代測定の依頼件数はその後不況前の水準まで増えることとなった。最近3年間の業務で行われた測定鉱物のK含有量(<0.20wt.%, 0.20-0.49wt.%, 0.50-0.99wt.%, 1.00-4.99wt.%, 5.00-9.99wt.%, >10.0wt.%)の測定試料数の割合を円グラフで示す(図6)。低K含有量の試料(0.20wt.%未満)は全体の12%を占めている。もしこれだけの割合の試料が低K含有量であることを理由に年代計算が出来なかったのなら、依頼者をどれだけ失望させたことであろうか。2006年は蒜山研究所のK-Ar年代測定の大きな転機であった。

4. 最後に

直近のK-Ar年代測定業務の転機は前述した2011年3月11日の東北地方太平洋沖地震である。それ以降、断層活動年代を知りたいという業務が非常に多くなった。直接的な活動年代では、断層粘土中のイライト、スメクタイト、破碎部から産出するセピオライト、そして間接的なものでは岩脈の年代測定を数多く行った。前者に関しては年代測定用鉱物の粒径と年代値との関係に検討の余地があるが、今も尚、これらの年代測定の依頼は続いている。また、火山岩におけるK-Ar年代測定の測定対象鉱物は、石基から長石類に移り変わってきている。火山岩の石基から得られた過去の年代データがある試料を用いて、状態の良い長石類から得られる年代と比較しながら、今後は変質の程度や過剰アルゴンを考慮した噴出年代について検証していく必要があると考える。

謝辞

編集委員の郷津知太郎博士と竹下浩征博士には本稿の改善にあたり適切なコメントを頂いた。ここに記して心よりお礼申し上げる。

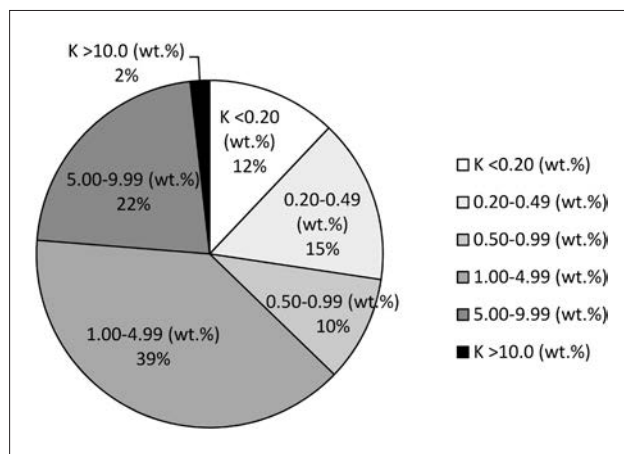


図6 年代測定対象鉱物のK含有量(<0.20wt.%, 0.20-0.49wt.%, 0.50-0.99wt.%, 1.00-4.99wt.%, 5.00-9.99wt.%, >10.0wt.%)の測定試料数の割合。最近3年間の業務依頼データに基づく。

引用文献

- Imaoka, T. and Itaya, T. (2004) K-Ar geochronology of a middle Miocene submarine volcano-pulmonic complex in southwest Japan. *Geological Magazine*, **141**, 1-13.
- Itaya, T., Doi, M. and Ohira, T. (1996) Very low potassium analysis by flame photometry using ultra low blank chemical lines: an application of K-Ar method to ophiolites. *Geochemical Journal*, **30**, 31-39.
- Itaya, T., Nagao, K., Inoue, K., Honjou, Y., Okada, T. and Ogata, A. (1991) Argon isotope analysis by a newly developed mass spectrometric system for K-Ar dating. *Mineralogical Journal*, **15**, 203-221.
- 板谷徹丸・長尾敬介 (1988) 100万年より若い火山岩のK-Ar年代測定。地質学論集, no. 29, 143-161.
- Ryu, S., Oka, M., Yagi, K., Sakuyama, T. and Itaya, T. (2011) K-Ar ages of the Quaternary basalts in the Jeongok area, the central part of Korean Peninsula. *Geosciences Journal*, **15**, 1-8.
- 竹下浩征 (2006) 蒜山地質年代学研究所10年間のあゆみ。地質技術, 創刊準備号 (no. 0), 1-8.
- 八木公史 (2006) K-Ar年代測定のための鉱物分離マニュアル。地質技術, 創刊準備号 (no. 0), 19-25.
- 八木公史・板谷徹丸 (2011) 塩酸処理による主要鉱物のK-Ar年代への影響。地質技術, no. 1, 37-43.

2015年5月11日受付, 2015年6月29日受理。