

$^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  放射非平衡系による火山噴出物の年代測定

大村明雄\*\* 河合貞行\*\* 玉生志郎\*\*\*

OMURA, A., KAWAI, S. and TAMANYU, S. (1988) Dating of volcanic products by the radioactive disequilibrium system between  $^{238}\text{U}$  and  $^{230}\text{Th}$ . *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 39 (9), p. 559-572.

**Abstract:** The radioactive disequilibrium system between  $^{238}\text{U}$  and  $^{230}\text{Th}$  was observed in some mineral phases of six volcanic products. Four samples of them are the important marker-tephras which provide a certain datum plane in Upper Pleistocene Systems of Japan. As the results of dating by internal isochrons using the ( $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ )-(  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ ) diagram,  $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  dates of  $35 \pm 8$  ka,  $43 \pm 8$  ka,  $80 \pm 2$  ka,  $82 \pm 5$  ka,  $94 \pm 8$  ka and  $218 \pm 26$  ka, were determined for Handa Pyroclastic Flow, Daisen-Kurayoshi Pumice (DKP), Aso-4 Pyroclastic Flow (Aso-4), Ontake I Pumice (Pm-I), Tateyama D Pumice (DPm), and Yamakawa Tuff Breccia, respectively.

Mineral of titanomagnetite was confirmed to be the most appropriate phase in this method for dating, as pointed out by CONDOMINES *et al.* (1982). It can be used also as different subsystems separated in each grain-size fraction (*e.g.*, 100-200 mesh, 200 mesh-20 micron and 20-8 micron, respectively).

The initial  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  activity ratio for Pm-I sample were estimated, from the coordinates of an intersection of the internal isochron and the equiline, to be  $0.090 \pm 0.018$ . This exceptionally low value must be interpreted by the further study on uranium-series disequilibrium in others derived from the Ontake Volcano.

## 1. ま え が き

一次天然放射性核種の一つ  $^{238}\text{U}$  ( $T_{1/2} = 4.468 \times 10^9$  年) は, ウラン壊変系列 (あるいは,  $4n+2$  系列とも呼ばれる) の親核種として  $\alpha$  粒子や  $\beta^-$  粒子を放出しながら途中種々の放射性核種に壊変していき, 最終的に安定な  $^{206}\text{Pb}$  となる. この壊変系列中には, 半減期の長さの点からみて, 親核種の  $^{238}\text{U}$  以外にも地質年代測定に利用できる核種がいくつか含まれている. 半減期が 75,200 年の  $\alpha$  放射体である  $^{230}\text{Th}$  (別名, イオニウムあるいはアイオニウム; Io) もそのうちの一つで, おおよそ 1 万年から 20-30 万年程度の年代測定に利用できる. この年代域は,  $^{14}\text{C}$  法の適用限界を越え, K-Ar 法では, 測定可能な年代幅の下限に近いため高精度の年代値を得るのが非常に難しい範囲といえる. この点,  $^{230}\text{Th}$  の地質年代測定における利用価値は高い. 事実, 後期更新世

以降の深海底堆積物の堆積速度やマンガン・ノジュールの成長速度推定, あるいはサンゴで代表される化石硬組織を材料とした礁性堆積物など上部更新統の年代決定に利用されている.

本研究では, 造岩鉱物中の  $^{238}\text{U}$  と  $^{230}\text{Th}$  の放射非平衡関係を利用し, 更新世後期に形成された火山噴出物の年代決定を試みた. 筆者らのこの試みは, 本邦の上部第四系中で多数認知されている“広域示標テフラ”から高精度の年代値を得ること, および地熱熱源の評価のための上部第四系火山岩の年代測定を目的とした研究の一端である. 我が国の上部更新統“広域示標テフラ”の形成年代に関する研究は盛んに行われてきたが, テフラの構成物そのものから放射年代値が得られたのは, 今までのところ, この  $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  法とフィッション・トラック (FT) 法のみとって過言ではない. ほかに, 例えば始良 Tn 火山灰のように, 層位的にテフラの直上ないし直下に含まれる材化石や泥炭などの  $^{14}\text{C}$  年代から噴出年代が推定されているものもある (町田・新井, 1983;

\*\* 金沢大学

\*\*\* 地殻熱部

など).

$^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  年代測定法が開発されて以来、既に20年が経過したにも拘わらず、この方法の適用によって形成年代が明らかにされた火山噴出物の数は国際的に見ても合計50試料には満たず、決して多いとはいえない。それには種々の理由が考えられるが、主な理由の一つとして、多量の試料を処理して3種類以上の鉱物相を分離し、それも微量にしか含まれないウランおよびトリウム同位体を高精度で分析するために必要な量(数g)を集めなければならない煩雑さが挙げられる。

火山噴出物を  $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  法で年代測定するのに有効な鉱物の組み合わせはジルコンと火山ガラスであり、火山ガラスが取り出せない場合は、紫蘇輝石あるいは角閃石がそれにかわりうるとの指摘がある(福岡・木越, 1970)。とはいえ、本邦の更新統テフラの場合、変質によって、例えば加水ハロサイトなどに変化していて、火山ガラスが使用できないことが多い。一方、ジルコンは、普通の火山噴出物中には極めて少量しか含まれていないため、それを分離して分析必要量を集めるには多大な労力を要する。本研究において筆者らは、分離が比較的容易で火山噴出物中に普遍的に含まれている鉱物種を選び、それらから  $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  年代を求めることを目指した。

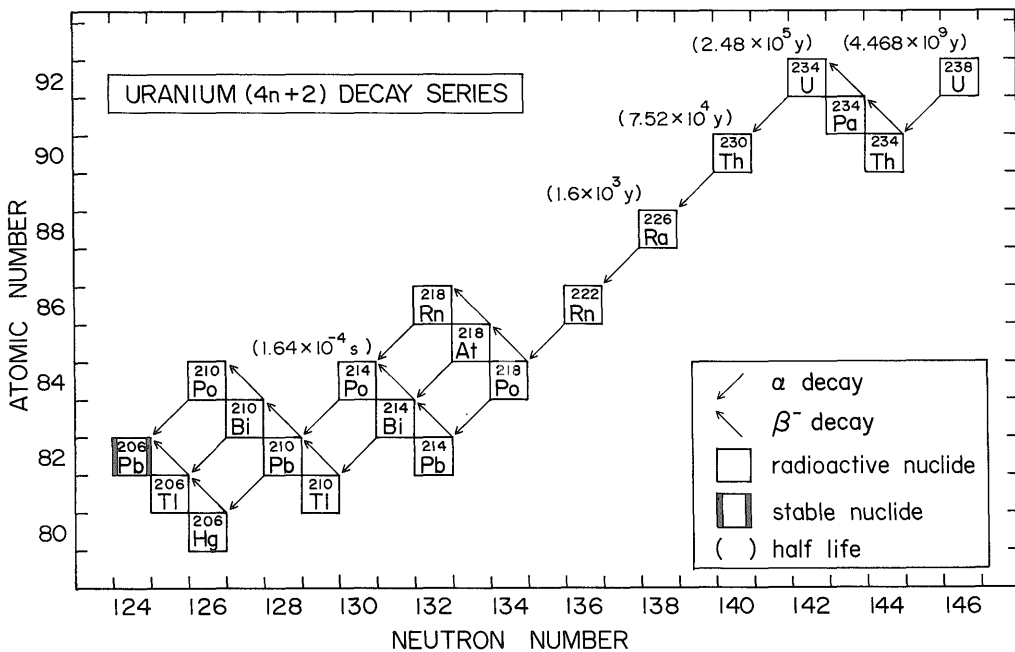
## 2. $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$ 年代測定法の原理

ウラン壊変系列は、合計20種の核種によって構成されており、最終生成核種である  $^{206}\text{Pb}$  のほかはすべて放射性核種である(第1図)。半減期の長さからみれば、もっとも短い  $^{214}\text{Po}$  の  $1.64 \times 10^{-4}$  秒から  $^{238}\text{U}$  の  $4.468 \times 10^9$  年までと多様で、年代測定に利用できる程度の半減期を有するのは、 $^{238}\text{U}$  ( $T_{1/2} = 4.468 \times 10^9$  年)・ $^{234}\text{U}$  ( $2.48 \times 10^5$  年)・ $^{230}\text{Th}$  ( $7.52 \times 10^4$  年)・ $^{226}\text{Ra}$  ( $1.6 \times 10^3$  年) および  $^{210}\text{Pb}$  (22.26年) の5核種である。

$^{238}\text{U}$  は  $\alpha$  壊変によって  $^{234}\text{Th}$  に、それが  $\beta^-$  崩壊して  $^{234}\text{Pa}$  へと順次壊変していくが、両娘核種とも短命(それぞれ、 $T_{1/2} = 24.1$  日と 1.17 分)なため、短期間のうちに  $^{234}\text{Pa}$  の  $\beta^-$  壊変後  $^{234}\text{U}$  が生成される。また、 $^{234}\text{U}$  の半減期は  $^{238}\text{U}$  のそれに比べてはるかに短く、そのため、形成後ウラン・トリウムおよびプロトアクチニウムに関して閉鎖系を保持してきた岩石や鉱物中では、 $^{238}\text{U}$  と  $^{234}\text{U}$  が放射平衡 ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  放射能比=1) に達していることが多い。このような岩石や鉱物中の、ウラン同位体から成長し、その中に蓄積されていく  $^{230}\text{Th}$  量 [ $^{230}\text{Th}_s$ ] は、次の式で表される。

$$^{230}\text{Th}_s = ^{238}\text{U} \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \dots \dots \dots (1)$$

上式において、 $\lambda$  および  $t$  は、それぞれ  $^{230}\text{Th}$  の壊変



第1図 ウラン壊変系列  
Fig. 1 Uranium decay series.

定数と岩石あるいは鉱物が形成されてから現在までの経過時間である。一方、形成された時すでに取り込まれていた  $^{230}\text{Th}$  量 [ $^{230}\text{Th}_0$ ] は  $\alpha$  崩壊によって減衰していくが、その様子は、

$$^{230}\text{Th}_u = ^{230}\text{Th}_0 \cdot e^{-\lambda t} \dots\dots\dots (2)$$

と書ける。両式の  $^{230}\text{Th}$  に記号として付した  $s$  および  $u$  は、形成された後その岩石や鉱物中で、ウラン同位体の壊変によって生成されたものか否かを意味している。すなわち、 $s$  は U-supported,  $u$  は unsupported を略して示したものである。したがって、形成後、ある時間を経過している岩石や鉱物中の全  $^{230}\text{Th}$  [ $^{230}\text{Th}$ ] は、(1)・(2) 両式で表した2つの異なった起源によるものの合量といえる。すなわち、

$$^{230}\text{Th} = ^{230}\text{Th}_s + ^{230}\text{Th}_u \dots\dots\dots (3)$$

となり、以上の式をまとめて、

$$^{230}\text{Th} = ^{238}\text{U} \cdot (1 - e^{-\lambda t}) + ^{230}\text{Th}_0 \cdot e^{-\lambda t} \dots\dots\dots (4)$$

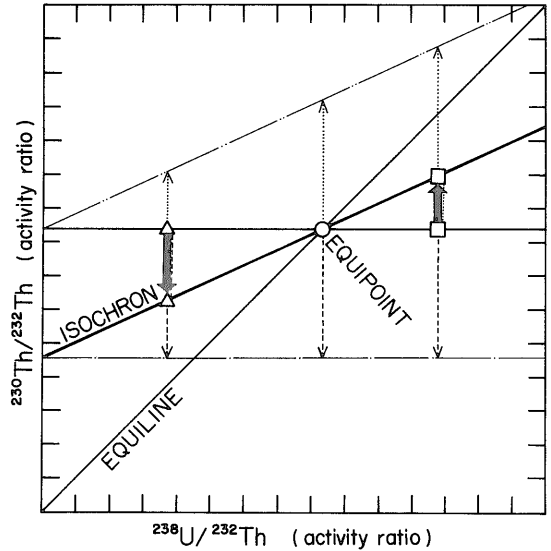
が得られる。さらに、極めて長命 ( $T_{1/2} = 1.40 \times 10^{10}$  年) なため、数十万年程度では見掛け上ほとんど変化しない  $^{232}\text{Th}$  で規格化 (normalize) して、

$$\begin{aligned} ^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th} = & ^{238}\text{U}/^{232}\text{Th} \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \\ & + ^{230}\text{Th}_0/^{232}\text{Th} \cdot e^{-\lambda t} \dots\dots (5) \end{aligned}$$

が導ける。

$^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  法では、造岩鉱物試料のウランおよびトリウム同位体組成を明らかにして、(4) あるいは (5) 式のいずれかから、岩石形成以降現在までの経過時間 (両式中の  $t$ ) を求めることになる。しかしながら、 $t$  と  $^{230}\text{Th}_0$  の2つが未知数のため、両式とも  $t$  について直接解くことができない。

$^{232}\text{Th}$  と  $^{230}\text{Th}$  が均質に混合されているマグマからいくつかの鉱物が同時に晶出した場合、すべての鉱物中の  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  放射能比 (初生  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  比とよび、以後  $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})_0$  と記す) は等しくなる。しかし、鉱物種ごとにウラン ( $^{238}\text{U}$ ) とトリウム ( $^{232}\text{Th}$ ) の分配係数が異なることから、晶出したそれぞれの鉱物中の  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  放射能比 (以後  $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})$  と記す) は違わずである。すなわち、各鉱物が形成された ( $t=0$ ) 当時のそれぞれの  $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})$  および  $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$  を第2図にプロットすると、横軸と平行 (水平) な直線上に並ぶことになる。このとき、 $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})$  と  $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$  の両値が等しい点は、 $(^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}) = 1$  で、放射平衡関係を意味することから、放射平衡点 (あるいは単に平衡点; equipoint) といい、このような点を結んで得られる直線は、放射平衡線 (equiline) とよばれる。形成後の時間経過 ( $t$  の増加) とともに、 $^{230}\text{Th}_u$  は減衰し、 $^{230}\text{Th}_s$  が各鉱物中に蓄積されていくことは、すでに述



第2図 各造岩鉱物中の時間経過に伴う  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  および  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  放射能比の変化とそれらによって定義される等時線 (アイソクロン: isochron)

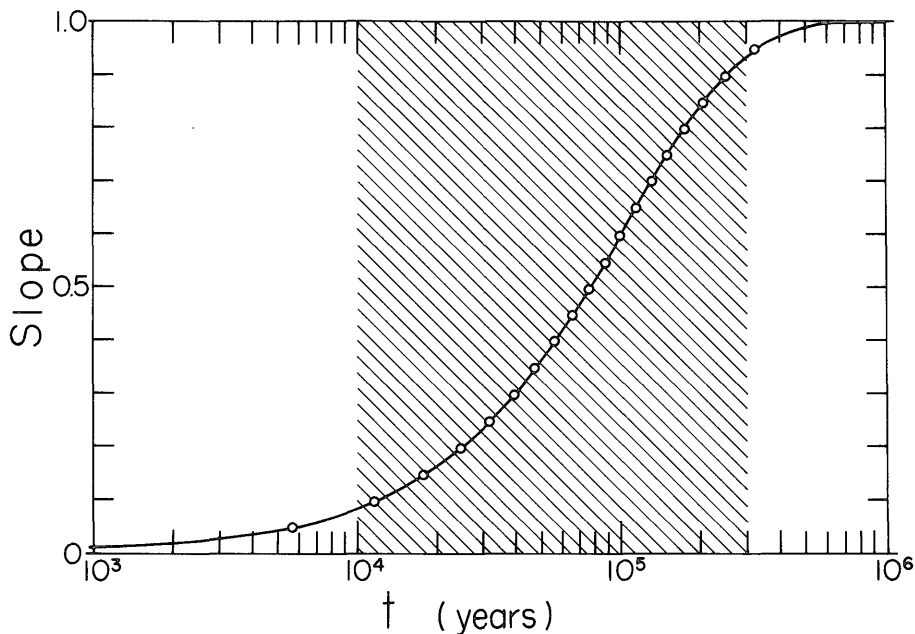
Fig. 2 Changes of  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  and  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  activity ratios in rock-forming minerals with the elapse of time and the isochron defined by them.

べた [(1)・(2) 式]. 一方、 $^{238}\text{U}$  の半減期が  $4.468 \times 10^9$  年で、 $^{232}\text{Th}$  のそれ同様、非常に長いため、20-30 万年間における  $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})$  の変化は、 $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$  の変化に比べ、ほとんど無視できるほど小さい。すなわち、各点の時間経過にともなう見掛け上の変化は、ほとんど  $^{230}\text{Th}_u$  の減衰と  $^{230}\text{Th}_s$  の成長のみによるといつてよい。第2図中の破線は  $^{230}\text{Th}_u$  の減衰による  $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})_0$  の減少を、点線は  $^{230}\text{Th}_s$  の成長によって増加する  $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$  の変化を表している。

同一時間内では、 $^{238}\text{U}$  を比較的多く取り込んだ鉱物中における  $^{230}\text{Th}_s$  の成長量は、少量しかウランを取り込まなかったものより多い。放射平衡点は、 $^{230}\text{Th}_u$  の減衰量と  $^{230}\text{Th}_s$  の成長量が等しいため、時間経過とともに移動することはない。第2図中の平衡点より左側に在る三角形で表した点は、晶出時に  $^{238}\text{U}$  との平衡量より多く (過剰; excess) の  $^{230}\text{Th}_u$  を取り込んだ鉱物を示している。このような鉱物では、晶出後  $^{230}\text{Th}_u$  の減衰量が  $^{230}\text{Th}_s$  成長量より多いため、 $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$  は見掛け上太矢印で示したように下向きの方角に移動する。平衡点より右側にプロットされている四角形で示される点のように、当初取り込んだ  $^{230}\text{Th}$  量が平衡量より少ない鉱物では、見掛け上、逆 (上) 向きに移動する。そ

して、このように移動した各点は、一本の直線(等時線 ; isochron)を定義することになる。結局、先に示した(5)式は、 $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})$  および  $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$  を

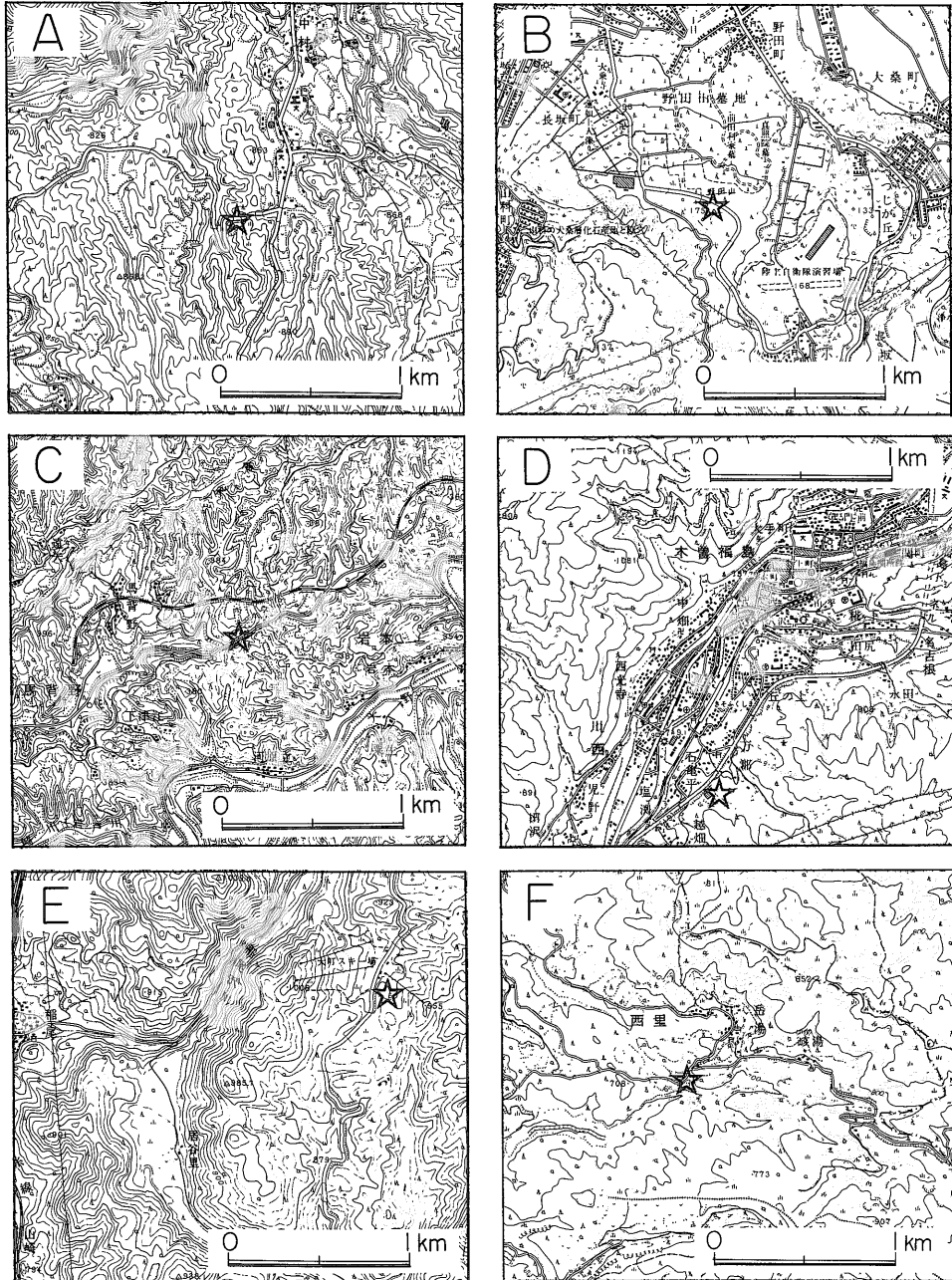
両軸にとった図中の直線式といえ、その勾配(m)は、 $m=1-e^{-\lambda t}$  .....(6) で、この勾配から次の式を用いて年代値を計算すること



第3図  $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})-(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$  等時線の勾配とそれから推定される年代との関係(斜線部は、本方法による最適年代領域であることを示す)  
 Fig. 3 The relationship between slope of  $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th})-(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$  isochron and date (t) estimated. (Shaded part indicates the most appropriate range dated by the  $^{238}\text{U}-^{230}\text{Th}$  method)

第1表 年代測定試料採集地点の地名・緯度・経度および高度  
 Table 1 Place name, latitude, longitude and height of the localities of samples dated.

試料名	採集地点		
	地名	緯度および経度	高度(m)
飯田火砕流	大分県玖珠郡九重町中村	33°09.0' N : 131°13.2' E	850
大山倉吉軽石 (DKP)	石川県金沢市野田山	36°31.5' N : 136°40.0' E	175
阿蘇-4火砕流 (Aso-4)	大分県直入郡荻町馬背野	32°55.7' N : 131°21.0' E	400
御岳第一軽石 (Pm-1)	長野県木曾郡木曾福島町	35°50.1' N : 137°41.8' E	820
立山D軽石 (DPm)	長野県大町市大町スキー場	36°33.1' N : 137°52.2' E	910
山川凝灰角礫岩	熊本県阿蘇郡小国町岳湯	33°09.0' N : 131°08.1' E	680



第4図 年代測定試料採集位置図(それぞれの星印が, A, 飯田火砕流; B, 大山倉吉軽石; C, 阿蘇-4火砕流; D, 御岳第1軽石; E, 立山D軽石; F, 山川凝灰角礫岩の試料採集地点を示す. 国土地理院発行1/25,000地形図「湯坪 [A および F]」・「金沢 [B]」・「桜町 [C]」・「木曾福島 [D]」・「大町 [E]」の一部を使用)

Fig. 4 Index map showing the localities of samples dated. (Star marks denote locations of Handa Pyroclastic Flow [A], Daisen Kurayoshi Pumice [B], Aso-4 Pyroclastic Flow [C], Ontake Pm-I [D], Tateyama D Pumice [E], and Yamakawa Tuff Breccia [F], respectively: a part of 1:25,000 topo-map of "Yutsubo [A & F]", "Kanazawa [B]", "Sakura-machi [C]", "Kiso-fukushima [D]", and "Omachi [E]", published from the Geographical Survey Institute of Japan.)

ができる。

$$t = -1/\lambda \cdot \ln(1-m) \dots\dots\dots(7)$$

同時に、 $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})_0$  も、等時線と放射平衡線との交点座標から推定することができる。以上の  $^{238}\text{U}-^{230}\text{Th}$  法にとっての最適適用年代範囲は、等時線の勾配と年代値との関係を示した第3図中の曲線の勾配の比較的急な1-30万年である。

3. 試料および分析方法

本論で取り扱う火山噴出物は、九重火山起源の山川凝灰角礫岩および飯田火砕流・大山倉吉軽石(略称; DKP, 以下の記述にはこの略称を用いる)・阿蘇4火砕流(Aso-4)・御岳第一軽石(Pm-I)・立山D軽石(DPm)の6種類である(第1表および第4図)。これらのうち、後4者は、給源火山から数100km離れた広範な地域にまで分布を認めることができる本邦第一級の広域示標テフラとして知られている。ここで使用された山川凝灰角礫岩試料は、太田ほか(1968)によって定義された山川凝灰角礫岩層最上位の火砕流堆積物である。その他の

火山噴出物については、それぞれの層位や岩石学的特徴などがすでに詳しく報告されているので各文献を参照していただきたい(小野ほか, 1977; 町田・新井, 1979; 町田ほか, 1985; 小林ほか, 1967; 中谷, 1973など)。なお、DKPについては、すでに報告した(OMURA, 1986)ものの、分析データの解析に不備があったので、再計算した結果を改めて報告する。

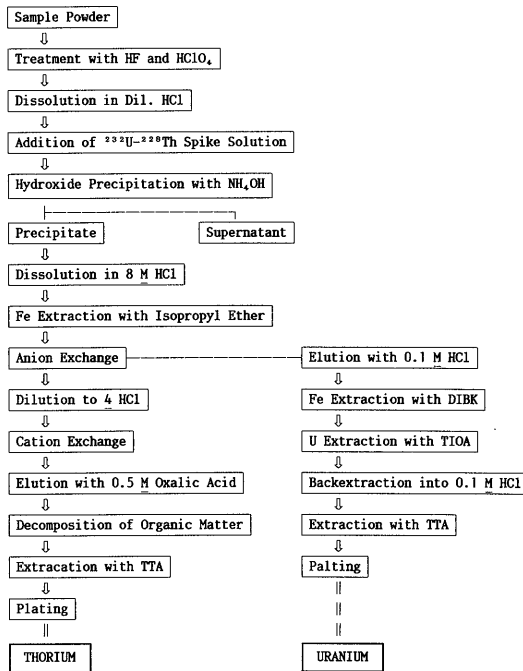
先述のように、 $^{238}\text{U}-^{230}\text{Th}$ 法では等時線の勾配から年代値を求めるため、いくつかの鉱物相に関して( $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ )および( $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ )を求め、少なくとも3個以上のデータ点を得る必要がある。本研究では、比較的分離しやすいことを理由に、主として苦鉄質鉱物を選んだ。中でも、とくに磁鉄鉱については、CONDOMINES and ALLEGRE(1980)やCONDOMINES *et al.*(1982)の例にならい、粒径別に分けて分析を行った(第2表)。

筆者等が用いているウランおよびトリウム同位体分析のための試料処理方法を、フローチャートの形で示したが(第5図)、その詳細については、大村(1988)を参照していただきたい。試料処理の最終段階で、ウランと

第2表 内的等時線を得るために使用された鉱物相  
Table 2 Mineral phases used for definition of the internal isochron.

Sample Name	Number of Phases Analyzed	Phases Analyzed*
Handa P. F.	5	Whole Rock • Hornblende • Magnetite 1 • Magnetite 2 • Magnetite 3
DKP	4	Hornblende • Hypersthene • (Glass) • Total Mafic Minerals (Ho + Hy + Magnetite + Biotite)
Aso-4 P.F.	3	Glass • Hornblende • Magnetite
Pm-I	3	Hornblende • Magnetite A • Magnetite B
DPm	6	Whole Pumice • Hypersthene • Hornblende • Magnetite A • Magnetite B • Magnetite C
Yamakawa T. B.	6	Whole Rock • Hypersthene • Hornblende • Magnetite 1 • Magnetite 2 • Magnetite 3

\* 1, 2 and 3 mean grain size of 100 to 200 mesh, 200 mesh to 20 micron and 20 to 8 micron, respectively. A, B, and C, 32 to 60, 120 to 250 and less than 250 mesh, respectively.



第5図 ウランおよびトリウム同位体分析のための化学処理方法

Fig. 5 The method of chemical treatment for isotopic analysis of uranium and thorium.

トリウム同位体を別々に TTA (テノイル三フッ化アセトンの4モルベンゼン溶液) 中に抽出するが、それを、ホットプレート上であらかじめ温めておいた直径1インチのステンレス金属円板上に注意深く滴下して蒸発乾固する。そして、最後に、ガスバーナー炎で不要な有機物を焼却後測定線源として用いる。

各同位体量および放射能比を  $\alpha$  スペクトル法によって測定した。この方法では、ウラン同位体比 ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  放射能比) が直接測定でき、 $^{238}\text{U}$  と  $^{234}\text{U}$  との放射平衡関係という  $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  法における必要条件を各相が満足するか否かを直接知ることができる利点がある。ウランおよびトリウムの定量や ( $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ ) 値決定のための化学収率用トレーサーとして、英国 AERE Harwell 研究所で製造され各研究機関に配布された  $^{232}\text{U}$ - $^{238}\text{Th}$  スパイク溶液 (IVANOVICH *et al.*, 1984) を用いた。なお、本研究では年代値の計算などのために、Uranium-Series Intercomparison Project (略称 USIP: IVANOVICH and WARCHAL, 1981) で申し合わされた以下の定数を用いている。

$$^{238}\text{U} : T_{1/2} = 4.468 \times 10^9 \text{y}, \lambda = 1.551 \times 10^{-10} \text{y}^{-1}$$

$$^{234}\text{U} : T_{1/2} = 2.48 \times 10^5 \text{y}, \lambda = 2.79 \times 10^{-6} \text{y}^{-1}$$

$$^{232}\text{U} : T_{1/2} = 7.2 \times 10^1 \text{y}, \lambda = 9.6 \times 10^{-3} \text{y}^{-1}$$

$$^{230}\text{Th} : T_{1/2} = 7.52 \times 10^4 \text{y}, \lambda = 9.22 \times 10^{-6} \text{y}^{-1}$$

$$^{228}\text{Th} : T_{1/2} = 1.913 \text{y}, \lambda = 3.623 \times 10^{-1} \text{y}^{-1}$$

$$^{224}\text{Ra} : T_{1/2} = 3.64 \text{days}, \lambda = 1.90 \times 10^{-1} \text{d}^{-1}$$

#### 4. 結果および考察

ウランおよびトリウム同位体に関する分析結果を第3表にまとめて示す。表中の各値に付した誤差は、計数値から計算された統計誤差 ( $1\sigma$ ) である。

##### 4.1 ウラン同位体比

火山噴出物の  $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  年代を得るために、 $^{238}\text{U}$  と  $^{234}\text{U}$  の間に永続平衡 (secular equilibrium) が成り立っていると同時に、U/Th 比の異なる3種類以上の相を用いる必要があることはすでに述べた。その点については、第3表中の  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  放射能比値が  $1.11 \pm 0.10 - 0.921 \pm 0.071$  であることから、分析された全相が両ウラン同位体の永続平衡に関する条件をほぼ満たしているといえる。このことを確認後、各火山噴出物ごとに、試料中の ( $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ ) および ( $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ ) 値をプロットし、それぞれのデータ点に基づいて内的等時線 (internal isochron) を求めた (第6・7・8・9・10・11図)。

##### 4.2 統計誤差の取り扱い

本年度測定法においては、各データ点から内的等時線の勾配およびそれと放射平衡線との交点座標などを求めなければならないが、このとき問題になるのは、各分析値に伴う統計誤差の取り扱いである。当然、得られる年代値は、これらの計数誤差に起因する不確かさを伴うからである。

複数のデータ点を直線回帰するには、一般に最小二乗法が利用されている。ただし、一般に用いられる最小二乗法では、 $x \cdot y$  2変数のうち、一方には誤差を伴わないものとして取り扱うことが多い。しかしながら、第6-11図に示した通り、本年度測定法において直線回帰すべきデータ点は、実際上両軸方向に誤差を伴っている。このことを考慮した、 $x \cdot y$  の両変数が誤差を含む場合の最小二乗法は、小嶋・斎藤 (1978) の中で小嶋が概説しているように、YORK (1969) などによって開発されてきた。

本研究でも、その YORK 法を使用し、第6-11図に示した内的等時線の勾配と ( $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ ) 軸切片座標を計算した。しかし、等時線の縦 ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) 軸切片がそのまま初生  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  比を意味する Rb-Sr 法とは異なり、 $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  における縦 ( $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ ) 軸切片は、

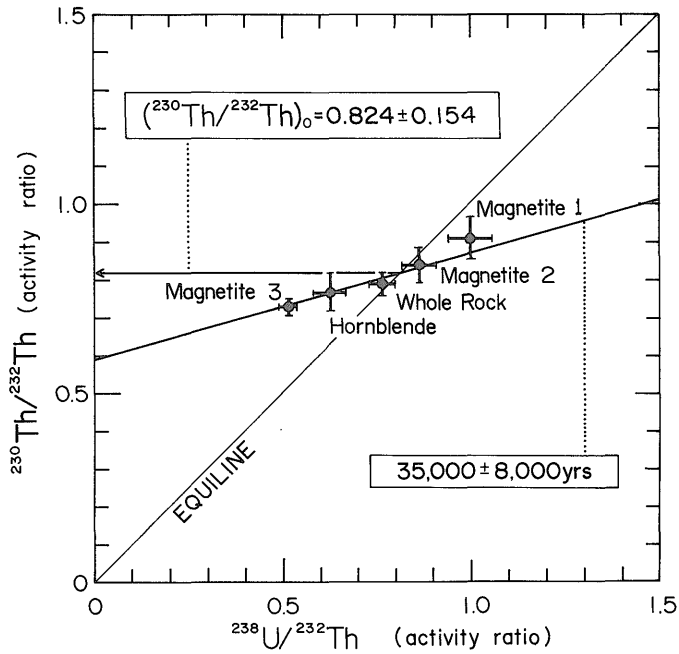
第3表 各火山噴出物構成鉱物中のウランおよびトリウム同位体組成

Table 3 Isotopic composition of uranium and thorium in minerals forming each volcanic products.

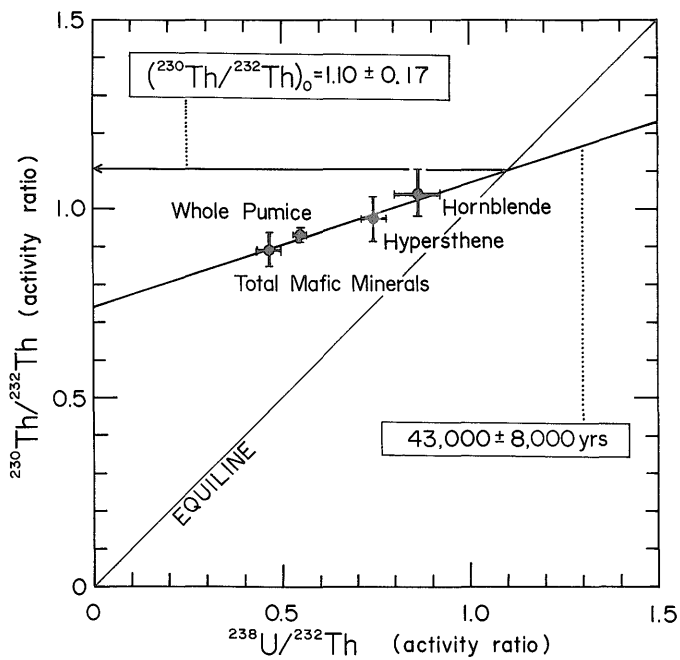
Sample*	$^{238}\text{U}$ (ppm)	$^{232}\text{Th}$ (ppm)	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ (activity ratio)	$^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ (activity ratio)	$^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ (activity ratio)
【 Handa Pyroclastic Flow 】					
Whole Rock	0.464±0.016	1.89 ± 0.05	1.00 ± 0.05	0.794±0.031	0.764±0.034
Hornblende	0.104±0.006	0.516±0.024	1.03 ± 0.08	0.770±0.052	0.625±0.046
Magnetite 1	0.343±0.013	1.06 ± 0.05	1.08 ± 0.05	0.915±0.058	1.00 ± 0.06
Magnetite 2	0.364±0.014	1.31 ± 0.05	1.00 ± 0.05	0.843±0.048	0.865±0.049
Magnetite 3	0.854±0.029	5.20 ± 0.14	0.982±0.041	0.735±0.027	0.511±0.022
【 Daisen Kurayoshi Pumice 】					
Whole Pumice	1.40 ± 0.03	7.89 ± 0.12	1.02 ± 0.03	0.933±0.018	0.550±0.016
Hypersthene	0.071±0.004	0.295±0.012	1.00 ± 0.07	0.975±0.061	0.747±0.034
Hornblende	0.073±0.004	0.263±0.012	1.01 ± 0.08	1.04 ± 0.06	0.861±0.064
T. M. T.	0.112±0.007	0.742±0.028	0.994±0.092	0.896±0.048	0.468±0.036
【 Aso-4 Pyroclastic Flow 】					
Glass	4.14 ± 0.13	14.9 ± 0.2	0.971±0.028	0.883±0.016	0.861±0.029
Hornblende	0.329±0.014	0.853±0.032	1.03 ± 0.06	1.06 ± 0.05	1.20 ± 0.07
Magnetite	0.451±0.020	1.32 ± 0.04	1.00 ± 0.06	0.988±0.036	1.06 ± 0.06
【 Ontake Pm - I 】					
Hornblende	0.258±0.019	5.08 ± 0.12	0.958±0.095	0.126±0.008	0.158±0.012
Magnetite A	0.944±0.029	1.51 ± 0.07	0.986±0.037	1.03 ± 0.06	1.94 ± 0.11
Magnetite B	1.40 ± 0.04	2.98 ± 0.12	0.995±0.032	0.837±0.045	1.46 ± 0.07
【 Tateyama DPm 】					
Whole Pumice	2.42 ± 0.07	14.9 ± 0.2	0.994±0.030	0.665±0.015	0.507±0.017
Hypersthene	0.154±0.010	0.821±0.048	1.05 ± 0.09	0.698±0.061	0.583±0.052
Hornblende	0.243±0.014	1.09 ± 0.06	0.920±0.071	0.788±0.061	0.691±0.054
Magnetite A	0.313±0.012	1.35 ± 0.05	1.08 ± 0.06	0.787±0.044	0.721±0.040
Magnetite B	0.221±0.014	0.910±0.050	0.963±0.086	0.798±0.063	0.754±0.064
Magnetite C	0.191±0.016	0.990±0.078	1.09 ± 0.13	0.727±0.086	0.601±0.070
【 Yamakawa Tuff Breccia 】					
Whole Rock	1.43 ± 0.05	7.24 ± 0.14	1.01 ± 0.04	0.637±0.017	0.615±0.024
Hypersthene	0.194±0.013	1.06 ± 0.04	1.11 ± 0.10	0.602±0.035	0.571±0.045
Hornblende	0.0771±0.0080	0.448±0.025	1.01 ± 0.15	0.552±0.050	0.535±0.063
Magnetite 1	0.290±0.017	0.823±0.051	1.02 ± 0.08	1.06 ± 0.09	1.09 ± 0.09
Magnetite 2	0.360±0.020	1.21 ± 0.05	0.964±0.071	0.930±0.057	0.927±0.066
Magnetite 3	0.599±0.026	2.08 ± 0.09	0.989±0.054	0.870±0.050	0.894±0.054

\* Magnetite 1, 2, and 3 are 100 to 200 mesh, 200 mesh to 20 micron, and 20 to 8 micron in grain size, respectively. Magnetite A, B and C, 32 to 60, 125 to 250, and less than 250 mesh, respectively. T. M. T. means Total Mafic Minerals.

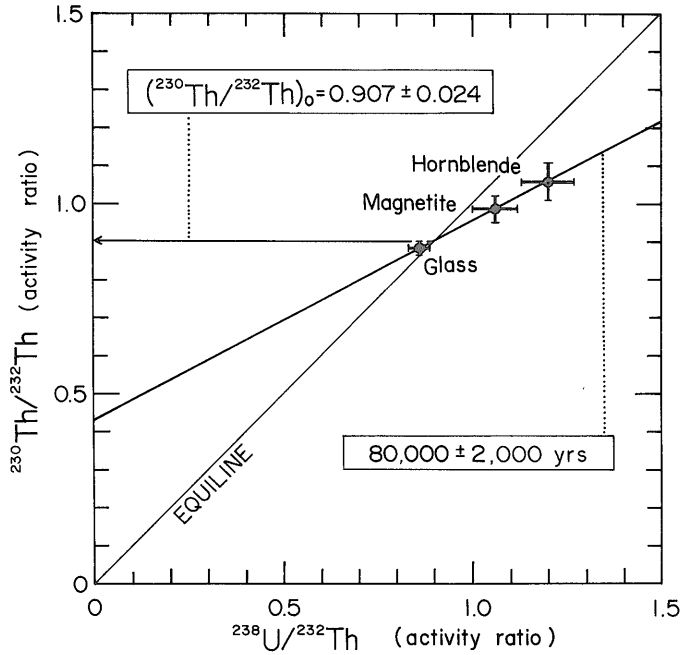




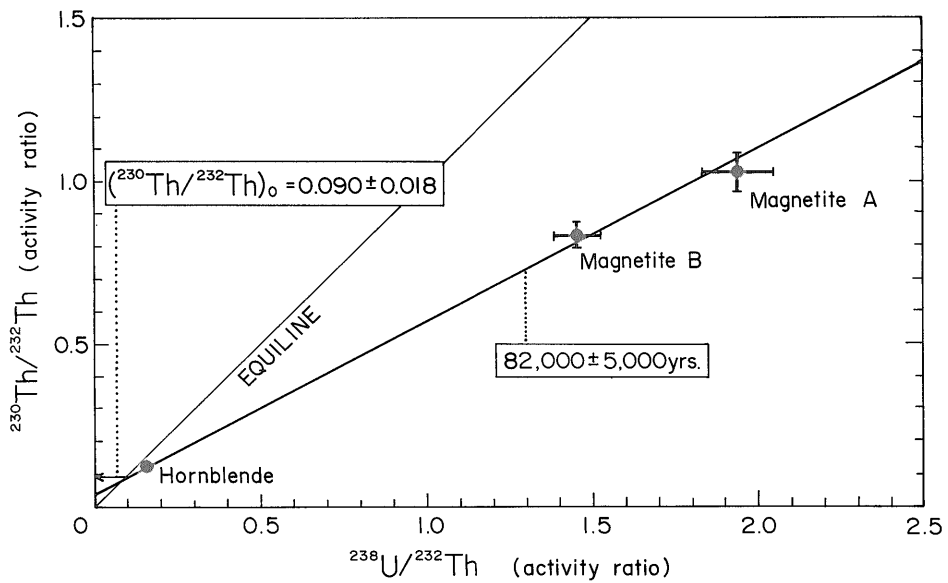
第 6 図 飯田火砕流の内的等時線とその年代および初生  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  放射能比  
 Fig. 6 Internal isochron of the Handa Pyroclastic Flow, and its date and initial  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  activity ratio.



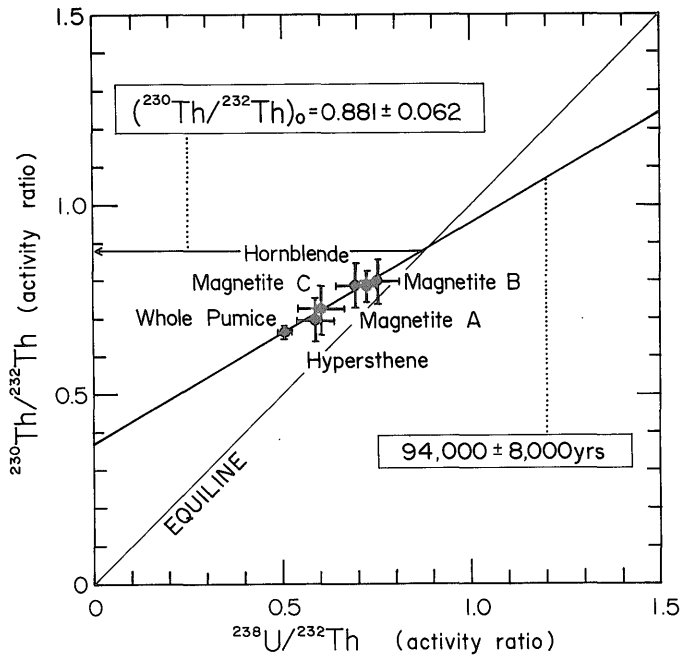
第 7 図 大山倉吉軽石 (DKP) の内的等時線とその年代および初生  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  放射能比  
 Fig. 7 Internal isochron of the Daisen Kurayoshi Pumice (DKP), and its date and initial  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  activity ratio.



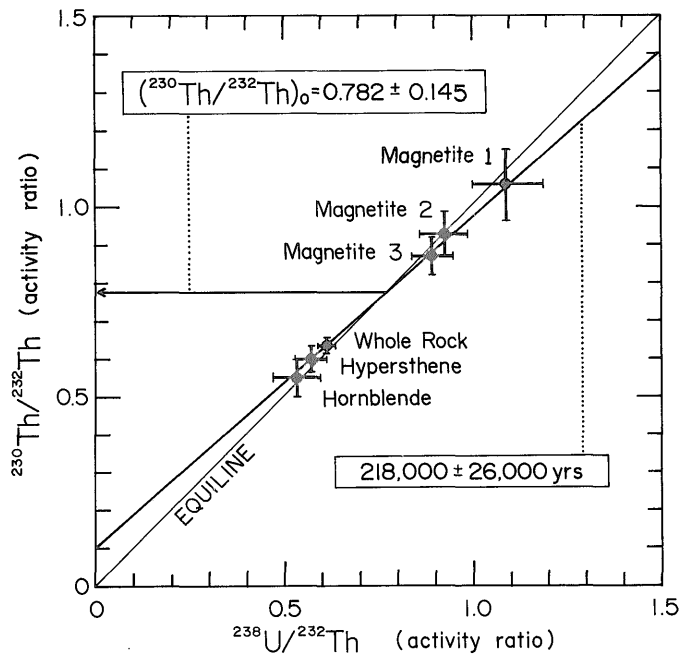
第8図 阿蘇4火砕流 (Aso-4) の内的等時線とその年代および初生  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  放射能比  
 Fig. 8 Internal isochron of the Aso-4 Pyroclastic Flow, and its date and initial  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  activity ratio.



第9図 御岳第1軽石 (Pm-I) の内的等時線とその年代および初生  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  放射能比  
 Fig. 9 Internal isochron of the Ontake-I Pumice (Pm-I), and its date and initial  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  activity ratio.



第 10 図 立山 D 軽石 (DPm) の内的等時線とその年代および初生  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  放射能比  
 Fig. 10 Internal isochron of the Tateyama-D Pumice (DPm), and its date and initial  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  activity ratio.



第 11 図 山川凝灰角礫岩の内的等時線とその年代および初生  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  放射能比  
 Fig. 11 Internal isochron of the Yamakawa Tuff Breccia, and its date and initial  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  activity ratio.

先記(5)式中の右辺第2項, すなわち  $[^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th} \cdot e^{-\lambda t}]$  を意味し,  $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})_0$  そのものを示しているわけではない。そのため, まず YORK 法で等時線の勾配を計算し, (7)式によって年代(t)を求めた後, 次の式で初生  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  比を得た。

$$(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})_0 = Y \cdot e^{\lambda t} \dots\dots\dots(8)$$

上式で, Y は等時線の  $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$  軸切片,  $\lambda$  は  $^{230}\text{Th}$  の壊変定数である。

以前筆者の一人大村が報告した DKP に関する年代値 (OMURA, 1986) の計算においては, 上のような各測定点が有する誤差についての評価が不十分だったので, 再計算を行い, その結果, 第7図のような結果を得た。そこで, 先に報告した DKP に関する年代値  $46,000 \pm 3,000$  年を  $43,000 \pm 8,000$  年に, 1.11 とした  $(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})_0$  値を  $1.10 \pm 0.05$  に訂正する。

他の試料から求めた年代値は, 第6-11 図中に示した通りであるが, 山川凝灰角礫岩のすべてのデータ点は, 誤差の範囲内で放射平衡線 (equiline) 上にのともいえる (第11 図)。したがって, 山川凝灰角礫岩は  $^{238}\text{U}-^{230}\text{Th}$  法の測定限界を越える, いいかえれば 30 万年より古いものなのかもしれない。しかし, 比較的大きい誤差を伴うとはいえ, YORK 法で内的等時線が定義できたので, 本論では, 一応その勾配に基づいて計算した年代値,  $218,000 \pm 26,000$  年 (第11 図) を山川凝灰角礫岩層最上部火砕流堆積物の形成年代とする。

ところで, 最小二乗法による直線回帰においては,

- 1) 二つの変量に関する相関関係の程度,
- 2) データ点個々の誤差の大小,
- 3) データ点の数,

などが, 求める直線の信頼性を支配する。上述の YORK 法においても, このことは十分考慮されている。例えば, 個々のデータ点が伴う誤差の大きさについて, 各データ点に含まれる測定誤差の逆数の二乗を重み ( $\omega$ ) として計算処理を行うようになっている。すなわち, 比較的誤差の小さいデータ点が相対的には重く扱われることになる。第6-11 図中の推定年代値に付したように, 本研究で得た  $^{238}\text{U}-^{230}\text{Th}$  年代値に付した誤差は決して小さくない。このことは, 試料ごとで原因が異なるものの,

- 1) 求められた各データ点の相関関係が必ずしも十分強くなかったこと,
- 2) ウランおよびトリウム含有量が少ないため,  $\alpha$  スペクトル法による測定方法では, 結果的に各相の統計誤差を十分小さくすることができなかったこと,
- 3) 同位体組成を求めたデータ数が多くなかったこと, のいずれかに起因している。今後は, 測定誤差の小さい

年代値を得るため, これらの原因をできるだけ取り除く努力が必要と思われる。

### 4.3 磁鉄鉱の粒径区分による同位体分析

誤差についての検討結果から, 本研究では, できるだけ多くのデータ点によって内的等時線を定義することと, CONDOMINES and ALLEGRE (1980) や CONDOMINES *et al.* (1982) などの方法の有効性を検討する目的で, 磁鉄鉱をいくつかの粒径ごとに分け, それぞれを別の相として扱うことを試みた。第2表のように, 飯田火砕流および山川凝灰角礫岩については, 彼らと同じ粒径範囲で磁鉄鉱を分け, また Pm-I と DPm 両試料からは, より粗粒な磁鉄鉱を分離することができたので, 別の粒径範囲に分けて同位体分析を行った。結論的には, いずれの場合も, 異なった粒径域の磁鉄鉱が見掛け上それぞれ独立した相として,  $(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}) \cdot (^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th})$  ダイアグラム上にプロットされたことから, 今後上記目的のために, この方法は極めて有効であることが確認された。したがって, 様々な粒径の磁鉄鉱を含む火山岩試料については, 他の鉱物相を全く使用せず, 磁鉄鉱のみで十分高い精度の  $^{238}\text{U}-^{230}\text{Th}$  年代値を得ることができる可能性もある。磁鉄鉱は, ほとんどの火山岩中に含まれ, しかも強い磁性を有することから他の鉱物に比べはるかに分離しやすい。この点からも, 磁鉄鉱が, 火山岩類の本年代測定法にとって最適の鉱物であるといえる。

### 4.4 火山灰試料

放射年代測定において, ある試料の形成年代を知るためには, 形成されてから現在に至るまでの間に変質した材料を使用することはできない。火山灰試料は, 一般に変質作用を被りやすい非晶質のガラス物質が主要構成物であることが多いことから, この点深刻である。とくに, 本研究で取り扱った Pm-I 試料については, 実体顕微鏡による観察で変質や表面付着物が認められない比較的大きい (直径 2-3 cm 以上の) 軽石のみを選び, その中から各相を分離する一方, それ自身を全岩試料として分析した結果は,

$$(^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}) = 0.576 \pm 0.014$$

$$(^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}) = 0.502 \pm 0.019$$

であった。これらの値は, 全岩試料が第9 図中の内的等時線から大きく外れる位置にプロットされることを意味している。この原因を明らかにするため, とくに粒径  $2 \mu$  以下の部分を沈降法で抽出し, 粉末および定方位薄片の両者を X 線分析によって検討したところ, 加水ハロサイトの存在が確認され, ガラスの一部が二次的に変質されていることが明らかになった。一方, 第7 図に示した DKP 試料の場合, 全岩に関するデータ点が,

誤差の範囲内で等時線上にのるが、軽石表面に少量ながら泥質物の付着が認められ、それらのすべてを除去できなかったため、このデータ点は等時線を得るための直線回帰、すなわち年代値の計算には用いなかった (OMURA, 1986). このように火山ガラスについては、変質や異質物付着の問題があるため、Aso-4 中のガラス試料の準備においては細心の注意を払い、32 mesh 以上の比較的粗い粒子のみを選んで、一旦 100 mesh 以下の粒径に粉碎し、その中から 200 mesh 以下のものを除き、さらに十分な超音波洗浄の後、分析を行った。その結果が第 8 図である。

#### 4.5 初生 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 比

火成岩の  $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  年代測定においては、液相としてのマグマから岩石が形成された (固化した) 年代を求めることになる。同時に、内的等時線と放射平衡線の交点座標から、各造岩鉱物を晶出させたマグマ中の  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  比 [先の ( $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ )<sub>0</sub>] を推定することができる。この ( $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ )<sub>0</sub> 値を用いて、例えば CONDOMINES *et al.* (1982) のように、イタリアの Etna 火山におけるマグマの時間に伴う組成変化を論じた研究例もある。ここでは、年代測定された試料数も少なく、しかも特定の火山から系統的に噴出物を採集していないので、そのような議論はできない。ただ、第 9 図に示したように、Pm-I に関して推定された ( $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ )<sub>0</sub> が異常に低いことを強調しておきたい。これまでに報告された約 30 個の火山岩試料についての同比に関する推定値は、CONDOMINES *et al.* (1982) によって Etna 火山起源の熔岩試料から得られた  $0.80 \pm 0.01$  を最低とし、最高値はコスタリカの Irazu 火山からの  $1.30 \pm 0.08$  である (ALLEGRE and CONDOMINES, 1976). これらの値と比べてみても、今回 Pm-I 試料から得られた  $0.090 \pm 0.018$  という値はいかに低いかが分かる。今後 Pm-I と同じ御岳火山起源の他の軽石層についても同比を求め、この異常値の原因を考究する必要がある。

### 5. ま と め

本研究では 6 種類の火山噴出物について、構成物中の  $^{238}\text{U}$  と  $^{230}\text{Th}$  間の放射非平衡関係を基に、形成年代の推定を試みた。その結果、飯田火砕流は  $35,000 \pm 8,000$  年前、大山倉吉軽石は  $43,000 \pm 8,000$  年前、阿蘇-4 火砕流は  $80,000 \pm 2,000$  年前、御岳第一軽石は  $82,000 \pm 5,000$  年前、立山 D 軽石は  $94,000 \pm 8,000$  年前、そして、山川凝灰角礫岩層最上部の火砕流堆積物は  $218,000 \pm 26,000$  年前に、それぞれ形成されたという結論を得た。

これら年代値の信頼性を評価するには、全く異なった壊変系を利用する方法によって同一試料を独立に年代測定し、互いに比較することが最良策である。その点、数万年の放射年代値については、フィッシュン・トラック (FT) 年代値との比較が現在のところ最適であろう。上記 6 試料のうち、Aso-4 について、すでに玉生 (1979) が  $84,000 \pm 25,000$  年の FT 年代値を報告している。それと、今回得られた  $80,000 \pm 2,000$  年の  $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  年代値は矛盾しない。他の方法による放射年代値が得られていない試料の  $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  年代値は、少なくとも、形成年代が知られている示標テフラとの層位関係と矛盾しないものでなければならない。今回検討した試料のうち山川凝灰角礫岩以外は、町田 (1987) により相互の層位関係が明らかにされているが、その上下関係と本研究で得られた年代の新旧関係は矛盾しない。ただし、飯田火砕流は、久住軽石 1 と同一層と解釈している。

ここで取り扱った  $^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  法は、まだ解決されなければならない種々の問題が残されているとはいえ、後期更新世に形成された火山岩類の年代測定にとって有効な方法の一つであることは確かである。そこで、本論を終えるにあたり、この方法を適用するにあたっての前提条件、必要条件および十分条件をまとめておきたい。

#### <本方法適用のための前提条件>

$^{238}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$  法によって年代測定される火山噴出物は、

- 1)  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  比が均質なマグマ起源であること。
- 2) 求められる年代値 (例えば、数万年) に対して無視できるほど短期間 (できれば数 100 年以内) に晶出した構成物から成ること。
- 3) すべての構成物中で、 $^{238}\text{U}$  と  $^{234}\text{U}$  の間に放射平衡関係が成り立っていること。
- 4) 形成されてから現在に至る間、変質されることなくウランおよびトリウム同位体に関して閉鎖系として保存されてきた試料であること。
- 5) 外来結晶など、異質あるいは類質物を含まないこと。

#### <信頼性の高い年代値を得るための必要条件>

- 1) できるだけ多種類の鉱物相から構成されていること。
- 2) 各相中の  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  および  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  放射能比測定において、測定誤差を最小にする必要があること。

#### <信頼性の高い年代値を得るための十分条件>

- 1) 全岩中の  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  および  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  放射能比に関する測定値が、各相の分析によって得られたデータ点の回帰直線 (内的等時線) と矛盾しないこと。

謝辞 御岳第一軽石および立山 D 軽石の採集に際しては、東京都立大学理学部町田 洋教授に、また、飯田火

砕流および阿蘇4火砕流の採集に際しては、環境地質部小野晃司部長に、各々御教示いただいた。金沢大学理学部中村健二技官には、本文中の図を作成していただいた。環境地質部小野晃司部長ならびに技術部金井 豊氏には、粗稿の校閲をお願いし有益な御助言をいただいた。本論を終えるにあたり、以上の方々に深く感謝の意を表す。なお、本研究の一部で、文部省科学研究費補助金〔一般研究(B); 課題番号62470047〕および通産省工業技術院指定研究新エネルギー技術開発予算を使用した。

文 献

- CONDOMINES, M. and ALLEGRE, C.J. (1980) Age and magmatic evolution of Stromboli volcano from  $^{230}\text{Th}$ - $^{238}\text{U}$  disequilibrium data. *Nature*, vol. 288, p. 354-357.
- , TANGUY, J.C., KIEFFER, G. and ALLEGRE, C.J. (1982) Magmatic evolution of a volcano studied by  $^{230}\text{Th}$ - $^{238}\text{U}$  disequilibrium and trace elements systematics: the Etna case. *Geochim. Cosmochim. Acta*, vol. 46, p. 1397-1416.
- 福岡孝昭・木越邦彦(1970) 火山噴出物のイオニウム年代測定. 火山, 2nd Ser., vol. 15, p. 111-119.
- IVANOVICH, M. and WARCHAL, R.M. (1981) *Report on the Second Intercomparison Project Workshop, Harwell, 23 to 24 June 1980*. 54 p., AERE-R 10044, Harwell, Oxfordshire.
- , KU, T.L., HARMON, R.S. and SMART, P.L. (1984) Uranium Series Intercomparison Project (USIP). *Nucl. Instr. Methods Phys. Res.*, vol. 223, p. 466-471.
- 小林国夫・清水英樹・北沢和男・小林武彦(1967) 御岳第一浮石層. 地質雑, vol. 73, p. 291-308.
- 町田 洋(1987) 広域火山灰について(コメント). 第四紀研究, vol. 25, p. 265-268.
- ・新井房夫(1979) 大山倉吉軽石層一分布の広域性と第四紀編年上の意義. 地学雑誌, vol. 88, p. 313-330.
- ・———(1983) 広域テフラと考古学. 第四紀研究, vol. 22, p. 133-148.
- ・———・百瀬 貢(1985) 阿蘇4火山灰一分布の広域性と後期更新世世標層としての意義一. 火山, 2nd Ser., vol. 30, p. 49-70.
- 中谷 進(1973) 立山火山の地質学的岩石学的研究. 金沢大学理学部修士論文, 118 p., (MS.).
- 小嶋 稔・斎藤常正(1978) 岩波講座 地球科学 6. 地球年代学, 255 p., 岩波書店, 東京.
- OMURA, A. (1986) Age estimation of the Daisen Kurayoshi Pumice using the  $^{230}\text{Th}$ - $^{238}\text{U}$  radio-active disequilibrium system. *Quaternary Res. (Daiyonki-kenkyu)*, vol. 25, p. 129-132.
- 大村明雄(1988) ウラン系列年代測定法. 地質学論集, no. 29, p. 107-127.
- 小野晃司・松本徃夫・宮下三千年・寺岡易司・神戸信和(1977) 竹田地域の地質. 地域地質研究報告(5万分の1地質図幅), 地質調査所, 145p.
- 太田良平・松野久也・西村嘉四郎(1968) 熊本県岳の湯および大分県大岳付近地質調査報告. 地調月報, vol. 19, p. 481-486.
- 玉生志郎(1979) ガラスによるフィッシュン・トラック年代測定. 放射線の固体飛跡検出法短期研究会報告, 京都大学原子炉実験所, KURRI-TR-190, p. 43-44.
- YORK, D. (1969) Least squares fitting of a straight line with correlated errors. *Earth Planet. Sci. Lett.*, vol. 5, p. 320-324.

(受付: 1988年3月29日; 受理: 1988年5月30日)