

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月11日現在

機関番号：11501

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22510186

研究課題名（和文） 1万年より若い火山岩のK-Ar年代測定－第四紀火山の噴火履歴の解明をめざして

研究課題名（英文） K-Ar dating of volcanic rocks younger than 10 ka - toward understanding of eruptive history in Quaternary volcanoes

研究代表者

岩田 尚能（IWATA NAOYOSHI）

山形大学・理学部・講師

研究者番号：70302289

研究成果の概要（和文）：非常に若い火山岩の形成年代を明らかにするために、Cassignol-Gillot（CG）法 K-Ar 年代測定の導入を試みた。山形大学所有の希ガス質量分析計に対し、容積可変装置を備えたガス分析ラインを設置した。また CG 法用の試料選択・調製方法を確立した。CG 法の有効性を確認するための試料を、那須茶臼岳、岩木山等から採取した。CG 法 K-Ar 年代測定は第四紀火山噴火史を解明するための有効な手段となりうる。

研究成果の概要（英文）：We are tried to introduce the Cassignol-Gillot (CG) method to K-Ar dating facility in the Yamagata University, in order to date younger volcanic rocks in northeastern Japan. To achieve this, we installed the gas extraction line of the mass spectrometer; adding a variable volume for gas expansion. We confirm the procedures of sample selection and preparation for CG method. We selected suitable rock samples to test effectiveness of the CG method from Nasu-Chausudake Volcano and Iwaki Volcano to applying the CG method. K-Ar dating with CG method will be able to contribute establishing eruptive history in Quaternary volcanoes.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,300,000	690,000	2,990,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
2012年度	400,000	120,000	520,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：社会・安全システム科学・自然災害科学

キーワード：火山，地質学，質量分析，放射年代測定，第四紀

1. 研究開始当初の背景

将来的な火山噴火リスクの予測のうち火山活動の長期予測に関しては、火山噴火の発生間隔の規則性、噴火様式、マグマ組成の時間的進化を解明する研究が重要である。これ

らの研究では、放射年代測定や古地磁気学的手法による年代決定が不可欠である。

一般に第四紀火山の火山活動史の編年における年代推定では、 ^{14}C 法や K-Ar 法が多く用いられている。 ^{14}C 法は ^{14}C の半減期が 5730

年と短いことから、およそ5万年前までの試料を分析するのに適した年代測定法である。しかしながら、地層に含まれる炭化物や古土壌を分析する間接測定法であり、また雨水などによって運ばれる現代の炭素によって年代値が若返る恐れがあるため、火山活動史に基づく火山噴火リスク予測に誤りを生じさせる可能性が指摘されている（例えば、Giaccio, et al. 2009, Jour. Volcanol. Geotherm. Res., 185）。

一方、K-Ar法は溶岩や火山灰中に含まれる鉱物に対して直接年代値を与えることができるが、親核種 ^{40}K の半減期が12億5千万年であり10万年より若い試料では放射起源の ^{40}Ar が微量しか生成されないことから、通常の方法では数万年前～数千年前の火山活動で形成された岩石の年代測定は困難とされていた。

2000年以降、国外からは1万年より若い火山岩試料のK-Ar年代値が数多く報告されていた。一部はレーザー加熱を用いたAr-Ar法によるもの（例えばGutmann, et al. 2000, EOS Trans, 81）であるが、フランス・パリ第11大学の年代測定グループが開発したCassignol-Gillot Technique（以下CG法）を用いたK-Ar年代測定法で分析されたものが多い。彼らは数千年（例えばBlard et al. 2005, Earth Planet. Sci. Lett. 236）から数百年（例えばQuidelleur et al. 2001, Geophys. Res. Lett. 28）の年代測定結果を報告している。一方、国内の研究機関からは1万年よりも若い火山岩試料の年代値を十分な精度で報告している例はなかった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、要望はありながらもこれまで対応することが出来なかった第四紀後期の火山岩試料の年代測定を可能にすることである。そのために、山形大学に設置されている希ガス質量分析計にCG法用ガス分析ラインを導入する。また、CG法に適した試料の選定・調製方法を確立する。そして、火山層序学的研究や ^{14}C 年代測定法などで年代値が既知である試料についてCG法K-Ar年代測定を行い、その有効性を確認する。

これらにより、CG法K-Ar年代測定を第四紀火山の火山活動履歴の解明に利用できるようになれば、日本の活火山の将来的な火山噴火リスク予測の精度を向上させることができる。

3. 研究の方法

研究は次の手順で行った。

- (1) CG法の技術的詳細の精査
- (2) CG法用ガス分析ラインの製作と現有の希ガス質量分析装置の改造
- (3) 年代値が既知である試料に対するCG法

K-Ar年代測定

4. 研究成果

(1) CG法の技術的詳細の精査

①CG法によるAr分析の概要

CG法K-Ar年代測定の特徴は、放射起源 ^{40}Ar 量を求める際の手順にある。CG法では、年代未知の試料と標準ガスとの間のAr同位体比の差を精密に測定するために、質量分析計に導入するガス量（ ^{40}Ar 量）を揃える（図1）。これにより、質量分析計固有の、ガス量に依存したAr同位体比の変動を無視できるようにしている。

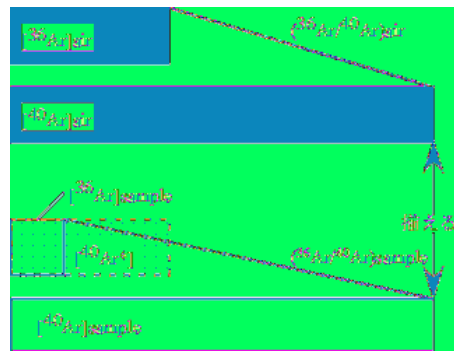


図1 CG法での放射起源 ^{40}Ar 量の求め方

②CG法によるAr分析の手順

CG法K-Ar年代測定では、年代未知試料1個の放射起源 ^{40}Ar 量の精密測定のために3回のAr同位体分析を必要とする（図2, Charbit et al., (1998) Chem. Geol. 150）。

1回目の分析では、年代未知試料の $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比および ^{40}Ar の出力を測定する。2回目の分析では、標準ガス（大気）を測定し、年代未知試料との同位体比の差を精密に求める。このとき、年代未知試料と標準ガスとの間で ^{40}Ar の出力を一致させる。3回目の分析では、標準ガス（大気）を測定することで質量分析計の感度を求める。このとき、標準ガス（大気）は、年代未知試料測定時の容積で測定する。Ar同位体比測定と感度測定を別個に行うことで、年代未知試料の放射起源 ^{40}Ar 量を高精度に求めることができる。

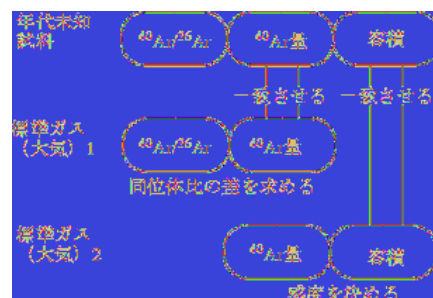


図2 CG法でのAr分析手順

③CG法と「同位体分別補正法」との比較

CG法と、若い火山岩のK-Ar年代測定を行う日本国内の研究機関で多く採用されている「同位体分別補正法」との比較検討を行った。

同位体分別補正法は、岩石形成時に試料が取り込んだガスのAr同位体比（初生同位体比）が大気のAr同位体比と異なる場合に、その差（同位体分別）を補正して放射起源 ^{40}Ar 量を算出する手法である（高岡ほか，1989，地質雑，95，Matsumoto et al. 1989, Bull. Geol. Surv. Japan, 40 など）。CG法で考慮しているガス量に依存する質量分析計内での同位体比変動を、この手法では考慮しない。そのため、放射起源 ^{40}Ar 量推定よりもCG法K-Ar年代測定での精度が劣る。

CG法の特徴は、①，②で示したように、年代未知試料および標準ガスの $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 同位体比を精密に測定していることである。これにより、極微量の放射起源 ^{40}Ar を検出している。しかしながら、CG法K-Ar年代測定では、初生同位体比の補正を行わない。そのため、同位体分別補正法でのAr定量に比べて、精度が劣る。

CG法と同位体分別補正法との比較から、CG法を用いて極微量の放射起源 ^{40}Ar を高精度で測定するためには、同位体分別を起こしていない（ $^{38}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比が大気と同じであるかどうかで確認できる）試料のみを選択して用いる、もしくは同位体分別補正法と同様の補正を行う必要があることが明らかになった。

CG法の技術的詳細の検討結果については、岩田（2010，学会発表（4））で報告した。

(2) CG法用ガス分析ラインの作成と改造

①CG法用ガス分析ラインの作成・改造

CG法では、年代未知試料と標準ガス（大気）との間のAr同位体比の差を精密に求めることが重要である。質量分析では、分析計内に存在しているガス量に依存して、Ar同位体比の測定値が変動することが知られている。そのためAr同位体比を精密に測定するためには、年代未知試料と標準ガスとで ^{40}Ar の出力を厳密に一致させることが求められる。

年代未知試料から抽出されるガスの量は、試料のカリウム濃度および予想している年代値からある程度推定することが可能である。また、ガス精製ライン部分でのバルブ操作によりガス量を一定の比率で減少させることができる。しかしながら、バルブ操作だけでは ^{40}Ar の出力を厳密に一致させることはできない。そこで、質量分析計とガス精製ラインの容積を変化させ、 ^{40}Ar の出力を連続的に変化させられる、容積可変装置を有するガス分析ラインを作成した（図3）。

容積可変装置は、VG シエンタ社の中空型

直線導入器（ZLTM150）を転用したものである。直径38mmのペローズ内空間を65mmから215mmまで拡大することができる。ペローズを伸長させることにより、装置の容積は約 40cm^3 から約 130cm^3 まで変化する。希ガス質量分析計本体の容積は約 1300cm^3 なので、容積可変装置を使用することにより、質量分析計本体容積の7%程度を変化させることが可能になった。

このほか、CG法用ガス分析ラインでは、容積を極力小さくすること、ガス精製のZr-Alゲッターを3台接続することなどの設計上の工夫を行った。これにより、Ar同位体比の精密分析の妨げとなるブランク（試料由来でないArガス）を低減させることが可能になった（図3）。

なお、作成したCG法用ガス分析ラインについては、岩田（2012，学会発表（1））で一部報告した。

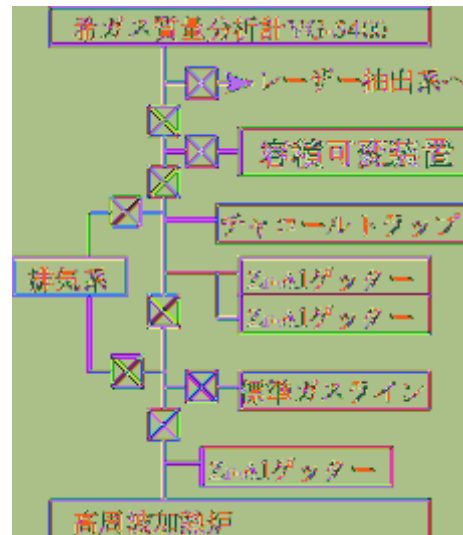


図3 CG法用ガス分析ラインの概念図

②容積可変装置を使用した際の出力と同位体比の変化

CG法用ガス分析ラインに設置した容積可変装置を用いることで、希ガス質量分析計のArの出力およびAr同位体比がどの程度変動するのかの確認を、標準ガス（大気）を測定することで行った。希ガス質量分析計を設置してある建屋の空調装置故障の影響で厳密な測定を行うことができなかつたため、確認は質量分析計のデジタルボルトメータの出力を直接読み取ることで行った。

図2に容積を変化させた際の ^{36}Ar ， ^{40}Ar の出力および、 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比の変化を示す。容積を変化させることで、 ^{36}Ar ， ^{40}Ar の出力は約10%の範囲で変化していることが確認できた。このことは、容積可変装置を使用することで、年代未知試料と標準ガス試料の ^{40}Ar 出力を

厳密に一致させる，“微調整”が可能であることを示している。

また、容積の変化に依存した同位体比 ($^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$) の変動が 1% 程度あることが明らかになった (図 4)。CG 法 K-Ar 年代測定では、 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 同位体比の 0.3% の違いが、数千年の年代差に相当すると試算されている (カリウム濃度 1 wt. %, 大気混入率 98% の場合, 4 千年に相当)。今後精密分析を繰り返し行い、同位体比の変動について精査を行う必要がある。

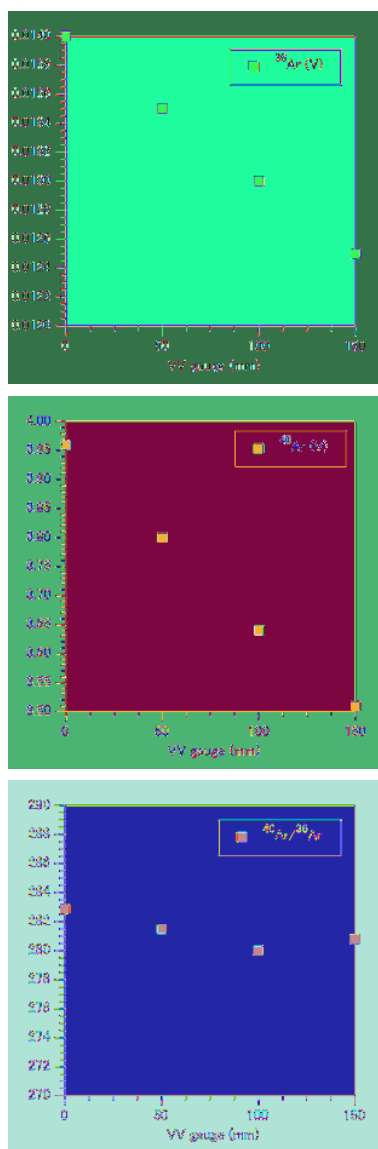


図 4 容積を変化させた際の ^{36}Ar 出力 (ボルト), ^{40}Ar 出力 (ボルト), $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比の変化。

(3) CG 法 K-Ar 年代測定用試料の検討

CG 法の有効性を確認するために、火山層序学的研究や ^{14}C 年代測定法などで年代値が既知である試料について、CG 法 K-Ar 年代測定の適用を試みた。

①対象とする試料の選定

研究分担者 (山形大学・伴雅雄教授) によって、CG 法 K-Ar 年代測定を試みる火山として、青森県・岩木山、栃木県的那須茶臼岳、福島・山形県境の吾妻山が推薦された。技術的困難度を考慮し、約 1 万年前の年代が予想される火山 (那須・茶臼岳) の試料を初期測定用に選定した。

②薄片観察による選定

薄片観察による試料選定では、石基部分の状態を重視した。火山岩の班晶にはマグマ由来の過剰アルゴンが含まれていることがあるため、K-Ar 年代測定の際には石基を用いることが一般的である (高岡, 1989, 質量分析, 37)。また、ガラス部分が少ない完晶質の石基では、大気混入率が低く Ar 定量の際の誤差が小さくなることが知られている (Iwata and Kaneoka, 2000, *Geochem. Jour.*, 34; 土志田, 2003, 電中研報告 U03024)。そのため、石基にガラスがほとんど存在しない、那須・茶臼岳の 201190701 (CH1) および 2011091602 (CH5) の 2 つを CG 法 K-Ar 年代測定用試料とした。

CG 法 K-Ar 年代測定の対象とする試料の選定については、Iwata and Ban (2011, 学会発表 (3)) で一部を報告した。

③酸処理の効果

非常に若いと推定される火山岩試料で放射起源 ^{40}Ar 量を精度良く決定するためには、非放射起源成分の Ar 量が少ないことが望ましい。試料調製の際に酸処理を行うことで、試料中の非放射起源成分の Ar 量を低減させることができることが報告されている (土志田, 2003, 電中研報告 U03024)。そこで、酸処理の効果を確認する実験を行った。

栃木県茂木地域および長野県高遠地域の火山岩試料で行った実験では、予察的な結果ではあるが、酸処理を行うことで大気混入率を減少させることができた (井上・岩田, 2012, 学会発表 (2))。CG 法 K-Ar 年代測定を行う試料の調製に酸処理が有効であることが確認できた。

(4) まとめと今後の展望

本研究での CG 法 K-Ar 年代測定の技術的詳細の検討、容積可変装置を持つ CG 法用ガス分析ラインの作成、試料の選択・処理方法の確立等によって、CG 法 K-Ar 年代測定の実現に目処が立った。

2011 年 3 月 11 日の東北地方太平洋沖地震後のガス分析ラインおよび希ガス質量分析計の故障期間が長かったこと、また質量分析計を設置してある RI 施設の空調故障などがあつた影響で、実試料での Ar 同位体比の精密測定には至らなかったが、近日中に実試料の分析を行い、CG 法 K-Ar 年代測定の有効性が確認できると考えている。

今後、那須岳・蔵王火山等の年代未詳の試料について年代測定を行い、詳細な火山噴火史を作成し、第四紀火山の火山活動履歴の解明に利用する予定である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計4件)

(1) 岩田尚能, 山形大学におけるアルゴン分析の現状, 2012年度質量分析学会同位体比部会, 2012年11月21日, 宮城県仙台市 (仙台秋保温泉・伝承千年の宿佐勘)

(2) 井上響一郎・岩田尚能, K-Ar年代測定用全岩試料調製における酸処理の評価, 2012年度質量分析学会同位体比部会, 2012年11月21日, 宮城県仙台市 (仙台秋保温泉・伝承千年の宿佐勘)

(3) Iwata N. and Ban, M., Method and problem in K-Ar dating of young volcanic rocks., 2011 Japan-Korea Joint Meeting of Isotope-ratio mass spectrometry, 平成23年10月23日, 大韓民国・釜山市

(4) 岩田尚能, 非常に若い火山岩のK-Ar年代をどう測るか, 2010年度質量分析学会同位体比部会, 2010年11月17日, 大分県別府市 (別府鉄輪温泉・山水館)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岩田 尚能 (IWATA NAOYOSHI)

山形大学・理学部・講師

研究者番号：70302289

(2) 研究分担者

伴 雅雄 (BAN MASAO)

山形大学・理学部・教授

研究者番号：50208724