

火山岩のウラン系列年代測定

—マグマ活動のタイムスケールとしての役割—

福岡孝昭¹⁾

1. はじめに

火山は噴火すると、溶岩を流出したり、火山灰を降らせたり、時には火砕流を流下させる。このような溶岩や火山灰は、火山体下に存在すると考えられているマグマ溜りにある岩石の融解した液体、マグマが地上に噴出してきたものである。火山噴出物(溶岩、火山灰等)には、種々の斑晶鉱物が含まれている。これら斑晶鉱物はマグマ溜り中で晶出したと考えられている。マグマは噴火のどのくらい前に発生し、いつごろ斑晶が晶出するのだろうか。火山が噴火を繰り返し、火山体を成長させていく。一度生じたマグマは、どのくらいの期間火山体下に存在するのだろうか。液体のマグマが火山体下に存在する場合と、固化した熱い岩体が存在する場合では、噴火のタイプが異なってくる。マグマが固まってしまうと、溶岩や火砕流の噴出は起こらない。火山体下のマグマの寿命がわかれば、防災上の立場からも有用な情報が得られることになる。

火山岩のウラン系列年代測定では、このような火山体下のマグマ活動にタイムスケールを入れることができる。ここでは、著者がこれまでに行ってきたウラン系列年代測定を中心に、年代測定法の原理、有用な鉱物は何か、斑晶鉱物の晶出年代はどうやってきまるか、等について解説する。

2. 火山岩のウラン系列年代測定法の原理と有用な鉱物

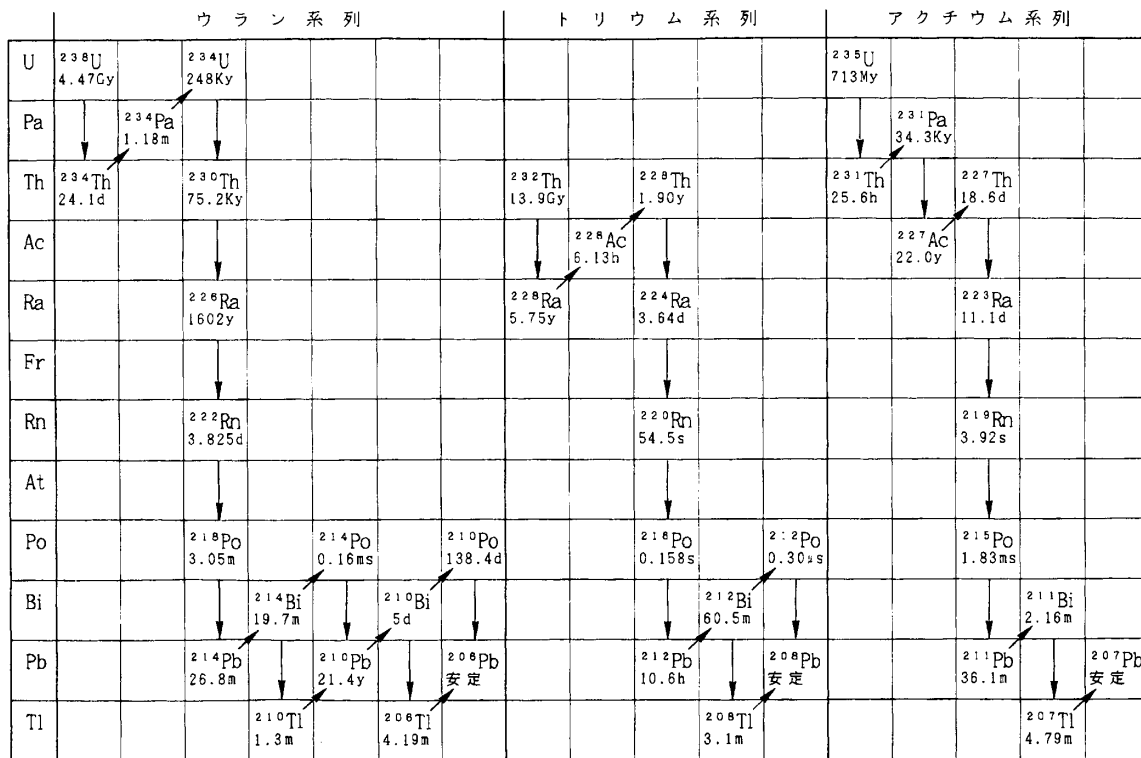
天然の放射性元素である²³⁸U, ²³⁵U, ²³²Thを親とする各壊変系列の壊変図を第1図に示した。これら

の壊変系列中の²³⁰Th, ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²³¹Pa等が年代測定の時計として用いられる。第1表にこれら核種を用いる主な年代測定法について使用核種、半減期、測定可能な年代範囲、試料等をまとめた。これらの年代測定法は、従来それぞれ個別の名前で呼ばれた。例えば、²³⁰Th(別名、イオニウム)を用いる年代測定は、かつてイオニウム年代測定と呼ばれた。現在は全体をまとめてウラン系列年代測定と呼ばれるようになった。このイオニウム法にはサンゴ等生物体の化石を試料とするもの、海底土を試料とするもの、火山岩を試料とするものの3種がある(第1表)。後者を他者と区別するために、その原理から、火山岩の²³⁸U-²³⁰Th法と呼ぶ。本法はCerrai et al. (1965)によって初めて試みられ同様の方法がKigoshi (1967)によって独立に開発された。

t年前に噴出した火山岩中の鉱物は、すべてその時に冷却晶出したものとして、2種の鉱物およびマグマ(固化後は全岩でその組成が代表される)中の²³⁸U/²³²Th放射能比と²³⁰Th/²³²Th放射能比の変化を第2図に示した。3つの直線(等時線, isochron)が交わっている点は、マグマあるいは固化後の火山岩全体を示す。噴出時(t=0)のマグマの組成は、ウラン系列の核種の間放射平衡が成立していると考えられるので、²³⁸Uと²³⁰Thの放射能(壊変率)は等しく、²³⁸U/²³²Thと²³⁰Th/²³²Thの放射能比は時間がたっても変化しない。ウランとトリウムはその化学的性質の違いから、鉱物によって含有比(²³⁸U/²³²Th比)が異なる。しかし、²³⁰Th/²³²Th比は、²³⁰Thがトリウムの同位体であるので、噴出時においては火山岩すべての部分で等しいので、どの鉱物でも等しい。トリウム含有量がウラン含有量に対して多い鉱物、X₁中の

1) 学習院大学理学部化学教室：
〒171 豊島区目白1-5-1

キーワード：火山岩、ウラン系列年代測定、マグマ活動、タイムスケール、ジルコン・ガラスベア、マグマの寿命、斑晶鉱物、晶出年代



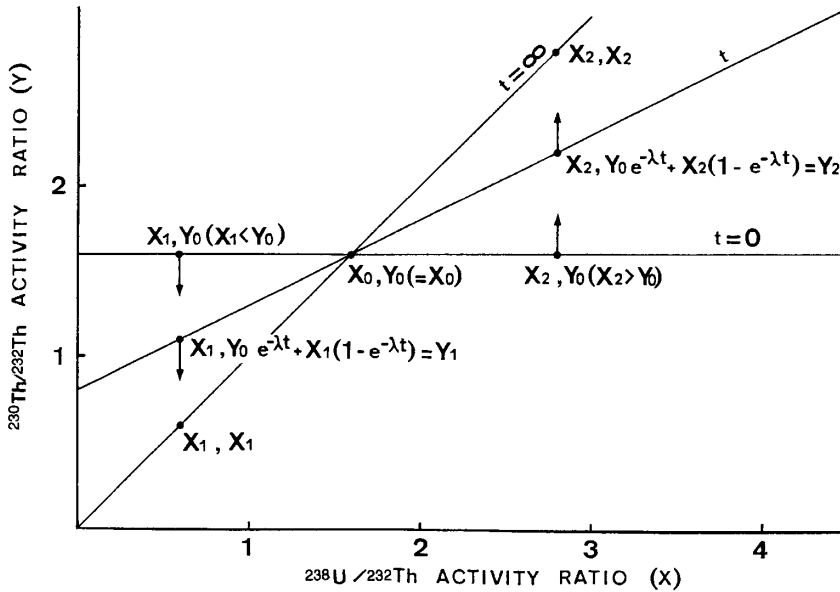
第1図 ウラン系列,トリウム系列,アクチニウム系列の壊変図

第1表 主なウラン系列年代測定法

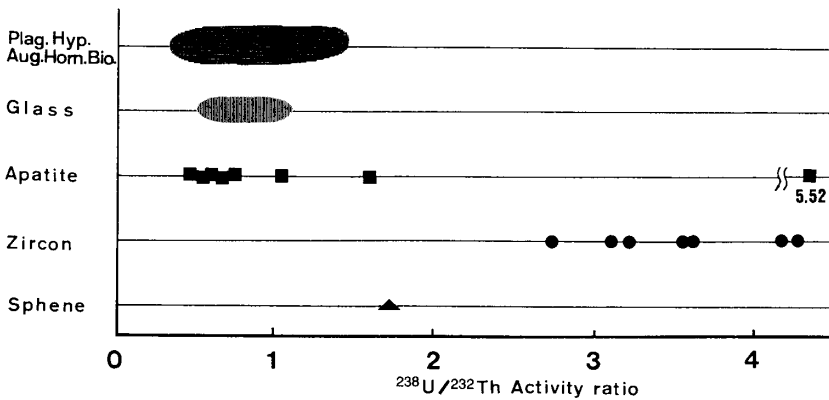
測定法	使用核種	半減期(年)	測定可能年代(年)	試料	時計のスタート
核種の減衰を利用					
$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	^{234}U	248,000	< 150万	炭酸塩 (化石サンゴ) 水	生物の死 水系の閉鎖
^{230}Th	^{230}Th	75,200	< 50万	深海堆積物 マンガン・ジュール	沈澱堆積
^{231}Pa	^{231}Pa	34,300	< 20万	深海堆積物	沈澱堆積
^{210}Pb	^{210}Pb	22.3	< 100	雪・氷 湖底・浅海堆積物	堆積 沈澱堆積
核種の成長を利用					
$^{234}\text{U}-^{230}\text{Th}$	^{230}Th	75,200	< 50万	炭酸塩, リン酸塩 (化石サンゴ, 貝, 骨, 鍾乳石, 石灰華 (温泉沈殿物))	生物の死 沈澱
$^{235}\text{U}-^{231}\text{Pa}$	^{231}Pa	34,300	< 20万	炭酸塩 (化石サンゴ)	生物の死
核種の減衰・成長					
$^{234}\text{U}-^{230}\text{Th}$	^{230}Th	75,200	< 50万	炭酸塩, リン酸塩 (化石サンゴ, 貝, 骨, 鍾乳石, 石灰華 (温泉沈殿物))	生物の死 沈澱
$^{235}\text{U}-^{231}\text{Pa}$	^{231}Pa	34,300	< 20万	炭酸塩 (化石サンゴ)	生物の死

^{230}Th は、 ^{238}U から供給される量より噴出時にあったものが減る方が大きいので、 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ (Y_1)の値は年代とともに小さくなる(第2図の矢印)。ウラン含有量がトリウムに対して多い鉱物、 X_2 の $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$

(Y_2)は、噴出時にあった ^{230}Th が減る量より供給される量が多いので、年代とともに大きくなる(第2図の矢印)。それぞれの点は、最終的に傾斜45°の直線(等時線)の上に落ち着く。この等時線の勾配が年代



第2図 火山岩の ^{238}U - ^{230}Th 年代測定の等時線 (isochron) の時間変化



第3図 火山岩構成鉱物のU/Th放射能比

を示す。

さて、噴出後経過した年代 t を知りたいとき、未知数は年代 t と噴出時の $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ (Y_0) の2つが存在する。 Y_0 はどの鉱物でも等しい。そこで2種の鉱物を使用して、 Y_0 を消去すれば、未知数が t だけの式

$$t = \frac{1}{\lambda} \ln \left[\frac{1}{1 - \frac{Y_1 - Y_2}{X_1 - X_2}} \right]$$

が求められる。したがって、この年代測定では同時に固化したU/Th比の異なる2種の鉱物が必要である。

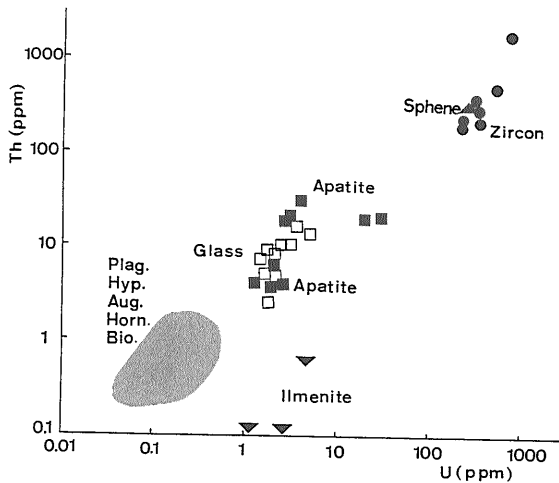
年代値の測定精度を上げるためには、 $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ 放射能比の差ができるだけ大きいこと、これら2種の鉱物のウラン、トリウム含有量が高いこと、が要求される。火山岩中の構成鉱物のU/Th放射能比を第3図に示した。また、これら各鉱物のウラン、トリウム含有

量を第4図に示した。

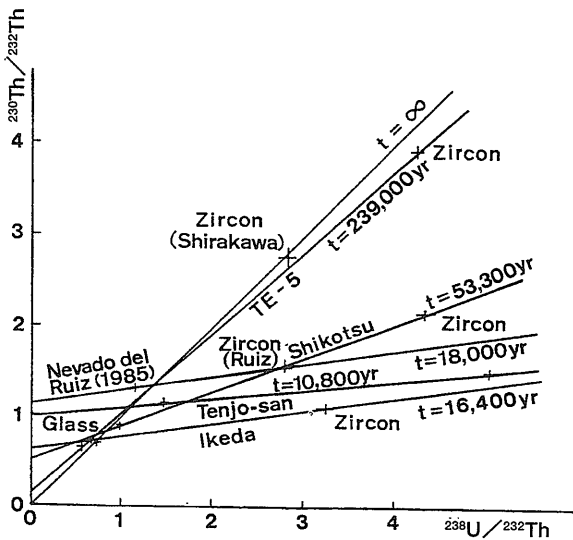
第3図は、ジルコンの $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ 放射能比がきわめて高いことを示している。ウラン、トリウム含有量の大きい鉱物として、第1にジルコンとスフェーンが、つぎにアパタイトとガラスがあげられる(第4図)。火山岩中での鉱物の存在量を考慮すると、ジルコンとガラスのペアが最も有用な鉱物ペアであると結論される。

3. ジルコンとガラスのペアによる火山岩の ^{238}U - ^{230}Th 年代

第2表にこれまでにジルコンとガラスのペアによって測定された、火山岩の ^{238}U - ^{230}Th 年代を示した。第5図に $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ 放射能比と $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 放射能比



第4図 火山岩構成鉱物のウラン，トリウム含有量



第5図 支笏，白河石，TE-5，天上山，池田，Ruiz 各火山岩の等時線

の関係を例示した。第2表には比較のために、 ^{14}C 法、フィッシュトラック(F.T.)法、熱ルミネッセンス(T.L.)法等によって得られた年代値(これらはその測定法の原理から火山岩の噴出年代を示すと考えられる)と古記録による噴出年代を示した。ジルコンとガラスのペアによる白河石、鳥浜の ^{238}U - ^{230}Th 年代は、噴出年代と誤差の範囲内で一致しているが、阿多については、 ^{238}U - ^{230}Th 年代が著しく古い年代を示し、支笏、天上山、池田、入戸の ^{238}U - ^{230}Th 年代は、噴出年代より誤差をこえて1~3万年古い。

第2表 ジルコンとガラスのペアによる ^{238}U - ^{230}Th 年代と他法による年代の比較

試料名	^{238}U - ^{230}Th 年代 ($\times 10^3$ 年)	^{14}C , F.T., T.L., K-Ar年代 ($\times 10^3$ 年)
支笏	53.3 ± 4.6	$30.4 + 3.4$ $- 2.4$ (^{14}C)
		31.9 ± 1.7 (^{14}C)
		32.2 ± 2.0 (^{14}C) $32.2 + 4.7$ $- 3.1$ (^{14}C)
白河石	> 430	1220 ± 130 (FT) $1400 \sim 1600$ (K-Ar)
TE-5	$239 + 20$ $- 24$	377 ± 22 (FT) 390 ± 80 (FT)
天上山 (神津島)	10.8 ± 2.1	$1,150$ (838AD) (古記録)
始良	53.0 ± 8.6	21.5 ± 0.7 (^{14}C)
		22.5 ± 0.7 (^{14}C)
		21.2 ± 0.7 (^{14}C)
阿多	> 161	$85 \sim 90$ (層序)
池田	16.4 ± 1.4	4.64 ± 0.08 (^{14}C)
		5.72 ± 0.92 (TL)
鳥浜	145 ± 27	163 ± 8 (FT)
		164.0 ± 9.4 (TL)
Ruiz	18.0 ± 4.1	1985AD (観測)

4. 噴出年代より古い ^{238}U - ^{230}Th 年代の意味

一般に花崗岩マグマ中ではジルコンが最初に晶出すると考えられている。第2表の火山岩の化学組成は花崗岩のものに近いので、これら火山岩を噴出したマグマの中で、ジルコンが噴出時よりかなり早い時期に、斑晶(phenocryst)として晶出していた可能性は十分考えられる。また年代測定に用いたジルコンがマグマ中に捕獲結晶(xenocryst)として混入したとき、 ^{238}U - ^{230}Th 年代は古くなる。一般にマグマ溜りの周囲の岩石は、 ^{238}U - ^{230}Th 年代測定で測定可能な年代を、はるかに越えていると考えられるので、その年代は無限大(∞)を示す。噴出年代より古い ^{238}U - ^{230}Th 年代を吟味するためには、これらを区別する必要がある。

年代測定に用いたジルコンが斑晶としてマグマ中より晶出した場合、分配係数に一定の関係があるはずである。一般に火山岩において、石基(ガラス)はマグマの液相に相当すると考えられる。第3表に年代測定に用いられたジルコンのウラン、トリウムの分配係数(D_U , D_{Th})をまとめた。 D_U , D_{Th} は、マグマの温度、化学組成等の影響を受けて、広がりが見られ

る。しかしTE-5, 阿多, Ruizを除くと, 分配係数の比 $(Th/U)_{zircon}/(Th/U)_{glass}$ はウラン, トリウム元素の性質の違いを反映して, 一定した値を示している。これは, 多くのジルコンがマグマ中で斑晶として晶出したことを示し, TE-5, 阿多, Ruizのジルコンは, そのガラスを液組成としたマグマからは晶出しておらず, 捕獲結晶である可能性を示している。

第4表に火山岩中のジルコン含有量と斑晶鉱物の組み合わせの関係をまとめた。黒雲母あるいは石英が斑晶として存在する火山岩には, 必ずジルコンが1ppm以上存在することがわかる。黒雲母も石英も存在しない火山岩には, ジルコンはほとんど存在しない。このような火山岩中のジルコン含有量と斑晶鉱物の組み合わせの規則性(経験則)は, 黒雲母あるいは石英を含む火山岩中のジルコンが斑晶であり, 黒雲母も石英も含まない火山岩中のジルコンが捕獲結晶であることを, 示している可能性が高い。阿多は, 黒雲母も石英も含まないのに, 少量ではあるがジルコンが存在する例外である。これは阿多中のジルコンが捕獲結晶である証拠を, 示しているものと考えられる。

阿多のジルコンは, ウラン, トリウムの分配係数からも, 斑晶鉱物組み合わせの経験則からも, 捕獲結晶であることが明らかになったといえる。阿多の ^{238}U - ^{230}Th 年代は ∞ を示しており(第2表), この点でも阿多のジルコンが捕獲結晶であることと矛盾しない。TE-5のジルコンは分配係数からは捕獲結晶となるが, 斑晶鉱物の組み合わせの経験則からは斑晶ということになる。捕獲結晶であるジルコンを用いた ^{238}U - ^{230}Th 年代は無限大の値を示すはずであるが, TE-5は噴出年代より若い年代を示している。ウラン, トリウムの分配係数の不一致は, ガラスの風化によるウラン, トリウムの選択的溶出によっても生じる。したがってTE-5の ^{238}U - ^{230}Th 年代が噴出年代と一致しない(若い)原因は, TE-5のガラスが風化していたからと考えられる。Ruizのジルコンは分配係数からは捕獲結晶で, 斑晶鉱物の組み合わせからは斑晶である。この火山岩(軽石)には縞模様が見られる。これは噴火前にマグマが混合したことを示している。すなわち, ここで用いたガラスは, ジルコンが晶出した時の液組成と異なっていた可能性が高い。

支笏, 池田, 入戸そして天上山のジルコンは, 分配係数, 経験則のどちらからでも, 斑晶であるといえる。ジ

第3表 火山岩中ジルコンのウラン, トリウム分配係数

試料名	D_U	D_{Th}	$(Th/U)_{zircon}$
			$(Th/U)_{glass}$
支笏	129 ± 2	29.5 ± 0.7	0.230 ± 0.007
白河石	111 ± 2	26.5 ± 0.6	0.239 ± 0.007
TE-5	164 ± 2	22.0 ± 0.3	0.134 ± 0.003
天上山	266 ± 4	76.0 ± 1.5	0.286 ± 0.007
入戸	140 ± 9	30 ± 2	0.220 ± 0.020
阿多	370 ± 20	230 ± 15	0.621 ± 0.050
池田	69.6 ± 1.2	16.2 ± 0.5	0.233 ± 0.008
鳥浜	130 ± 4	25 ± 2	0.192 ± 0.016
Ruiz	52.1 ± 0.4	21.7 ± 0.2	0.417 ± 0.005

第4表 火山岩中のジルコン含有量と斑晶鉱物の組み合わせ

試料名	Zircon 含有量 (ppm)	Hyp.	Aug.	Hb.	Bi.	Ap.	Qz.
支笏	6.8	○	○	○	X	○	○
豊別	0	○	○	X	X	○	X
有珠1663	0	○	○	○	X	○	X
有珠1977	0	○	○	X	X	○	X
白河石	28.7	○	?	○	?	○	○
TE-5	50.5	○	?	○	○	○	○
Pm-1(御岳)	34.3	○	X	○	○	○	?
天上山(神津島)	>3.1	?	?	○	○	?	○
飯田	28.4	○	○	○	○	○	○
宮城	45.7	○	X	○	○	○	○
下坂田	33.3	○	X	○	○	○	?
阿蘇4	0.026	○	○	○	X	○	X
入戸	1.41	○	○	○	X	○	○
阿多	0.21	○	○	X	X	○	X
池田	~30	○	○	○	X	○	○
鳥浜	24.7	○	○	○	X	○	○
Ruiz	16.3	○	○	○	○	○	?

○: 存在, X: 存在せず, ? : 不明,
Hyp.: 紫蘇輝石, Aug.: 普通輝石, Hb.: 角閃石,
Bi.: 黒雲母, Ap.: アバタイト, Qz.: 石英

ルコンとガラス(マグマ)は, 同時に固化していないが, ガラスの ^{238}U - ^{230}Th 比は, 固化時でもジルコン晶出時とほとんど変わっていない。したがって, これらの ^{238}U - ^{230}Th 年代はジルコンの晶出年代を示していることになる。すなわち, 支笏のジルコンは噴火の約2万年前, 池田, 天上山のジルコンは約1万年前, 入戸のジルコンは約3万年前にそれぞれ晶出していたことになる。言い替えると, 支笏は2万年以上, 池田, 天上山は1万年以上, 入戸は3万年以上, それぞれの火山の下に, マグマが存在していたことになる。

第5表にジルコンが斑晶として晶出した, 火山岩の ^{238}U - ^{230}Th 年代と噴火年代の差と, 噴出物の体積との関係を示した。火山噴出物の量はマグマ溜りの体積と関係していると考えられるので, かりに ^{238}U - ^{230}Th 年代と噴出年代の差をマグマの寿命とすると, 大量

のマグマは冷えるのに時間がかかるから寿命が長い、という考えと矛盾しない値を示している。Ruizの噴出物の体積はきわめて小さいのに、年代差は1.8万年と大きい。この点も噴火前にマグマの混合が生じ、 ^{238}U - ^{230}Th 年代測定に用いたガラスは、ジルコンが晶出した時の液相でなかったという考え方を指示する。

5. ジルコンの晶出年代の信頼性

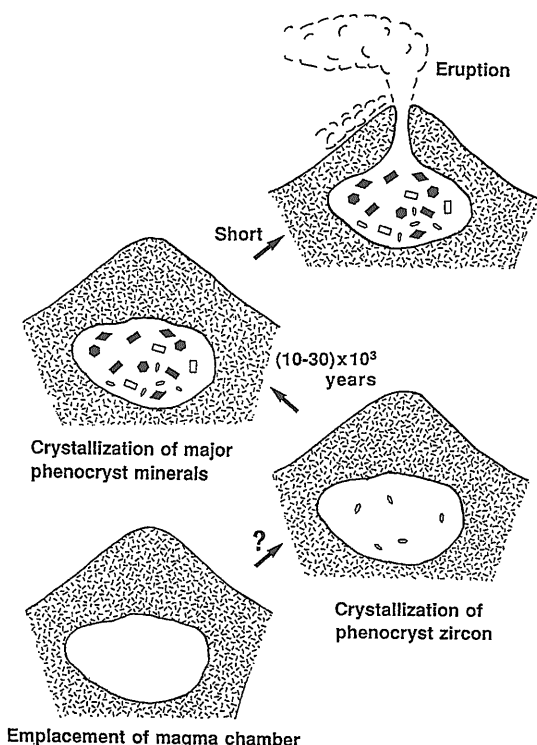
ジルコンとガラスのペアによる火山岩のウラン系列年代測定は、マグマの履歴に関する情報を提供することを説明した。ジルコンが斑晶であったとき、ウラン系列年代はジルコンの晶出年代を示し、噴火年代との差はマグマの寿命の下限值を示すことになる。しかし、ジルコンは1~3万年前のきわめて短時間に晶出したのだろうか、噴火直前まで少しずつ成長していたことはないのか、といった疑問が生じる。また1~3万年前に短時間で晶出したとしても、長時間高温のマグマ中に存在していると、ジルコン結晶中のウランやトリウムが拡散で移動し、 ^{230}Th 等がマグマの液相に出ていってしまうことはないか、という問題も考える必要がある。これらの問題を検討した答えは、ジルコンの ^{238}U - ^{230}Th 年代がジルコンの晶出年代であるという考えに好意的である。すなわち、一般に斑晶は短時間に結晶粒が発生する。ジルコンの場合その成長時間は、噴火までの時間を考えるときわめて短い。ジルコン結晶中でのウラン、トリウムの拡散速度の測定結果は、1~3万年ではほとんど拡散しないことを示している。

6. 今後の発展

ウラン系列年代測定以外の火山岩の年代測定は、地上に噴出してからの時間経過に関するものばかりであって、地下に存在するマグマ中での出来事に時間軸を入れることはほとんど行われていない。ウラン系列年代測定は火山岩の噴出年代の測定というより、マグマ活動にタイムスケールを入れるという点で大変重要である。ウラン系列法による研究のほとんどは噴火年代の測定よりも、マグマの発生から噴火に到る間のマグマ活動に関連したものが多く、筆者のこれまでのウラン系列年代測定を通してわかった、マグマ活動のタイムスケールを第6図にまとめた。こ

第5表 火山岩の ^{238}U - ^{230}Th 年代と噴火年代の差と噴出物の体積

火山	^{238}U - ^{230}Th 年代と噴火年代の差(年)	噴出物の体積(km ³)
支笏	2万	150
天上山	1万	>2
始良	3万	300
池田	1万	>2
Ruiz	1.8万	<1



第6図 火山体下マグマの時間変化(模式図)

の図中でshortとされている斜長石、輝石といった火山岩の主成分鉱物の晶出年代はRuiz火山の場合、噴火の6000年前であるというウラン系列年代が最近報告されている。

ここではジルコンとガラスのペアが火山岩のウラン系列年代測定に適していることを示した。これは ^{230}Th の量を求める場合、その壊変で放出される α 線を計数する方法で行う場合の、計数誤差を考慮したからである。最近ウラン系列年代測定に α 線計数でなく、 ^{230}Th 等の核種の量をThermal Ionization Mass Spectrometer (TIMS)で直接測定する方法が

導入されている。これは測定精度を飛躍的に向上させ、測定可能な年代範囲の若い方を ^{14}C 法と同じ年代にまで広げたばかりでなく、古い方は50万年まで可能になりつつある。また、 α 計数法では50mgのジルコンを必要とし、10kg以上の火山岩を処理し、ジルコンを純化しなければならなかった。TIMSを導入すれば、火山岩の処理量は1kg以下ですむことになる。また斜長石、角閃石等主要な斑晶鉱物とガラスのペアにより、斑晶各々の晶出年代の測定ができるはずである。さらに ^{230}Th ばかりでなく、 ^{226}Ra の量も直接測定できるので、より短いタイムスケールの測定も可能になった。算出される年代値の誤差もこれまでよりはるかに小さくできるので、マグマ活動のタイムスケールに関して詳細な議論ができるようになると期待される。

ごく最近、火山岩を分解し、溶液にして通じると、

UやThのみを選択的に吸着するという画期的な樹脂が開発された。この樹脂の利用により、分析手順を大幅に簡略化できるようになった点も付記したい。

参 考 文 献

- 福岡孝昭(1991):テフラ中ジルコン・ガラスによるウラン-イオニウム年代測定とマグマの寿命。月刊地球, 13, 265-270.
 福岡孝昭(1995):放射年代測定の高精度化の現状と年代値の解釈。第四紀研究, 34, 265-270.
 Gill, J. B., Williams, R. W. and Pyle, D. M. (1991): Igneous rocks. In Heaman, L. and Ludden, J. N. (eds.) Applications of Radiogenic Isotope Systems to Problems in Geology, Short Course Handbook vol. 19: p.287-335, Mineralogical Association of Canada.
 Ivanovich, M. and Harmon, R. S. (1992): Uranium-series disequilibrium: Applications to earth, marine, and environmental sciences. second ed. 910p, Oxford.

FUKUOKA Takaaki (1996): Uranium series dating for volcanic rocks— dating of the magmatic process —.

<受付: 1996年4月18日>

神津島天上山火山

本号で、福岡孝昭氏によりウラン系列年代が紹介されている天上山は、伊豆七島の一つである神津島の中央にそびえる火山です。神津島には、いくつかの流紋岩単成火山がありますが、その中で天上山は最も新しく、古文書に記録されている838年A.D.の噴火によって生じたものです。天上山火山は、島全域を覆った火砕サージ、谷沿いに流れ下った火砕流、これにひき続く溶岩ドームの上昇という典型的な流紋岩質マグマの噴火をしました。そのマグマが地下で約1万年も前から存在し、結晶化しつつあったというのですから驚きです。写真は最後にできた流紋岩溶岩ドームで、頂上が平らな饅頭の形をしています。この時の火山灰は広域に降り、伊豆大島では、伊豆大島噴火の黒色のスコリアの

降下物の間に白い火山灰層として挟まれ、良い鍵層となっています。詳しく一色(1982)による5万分の1図地質図幅「神津島」とその説明書をご覧ください。(富樫茂子)

