

^{40}Ar - ^{39}Ar 法による年代測定

——基礎とその問題点——

兼 岡 一 郎*

Age determinations by the ^{40}Ar - ^{39}Ar method

—Principles and related problems—

Ichiro KANEOKA*

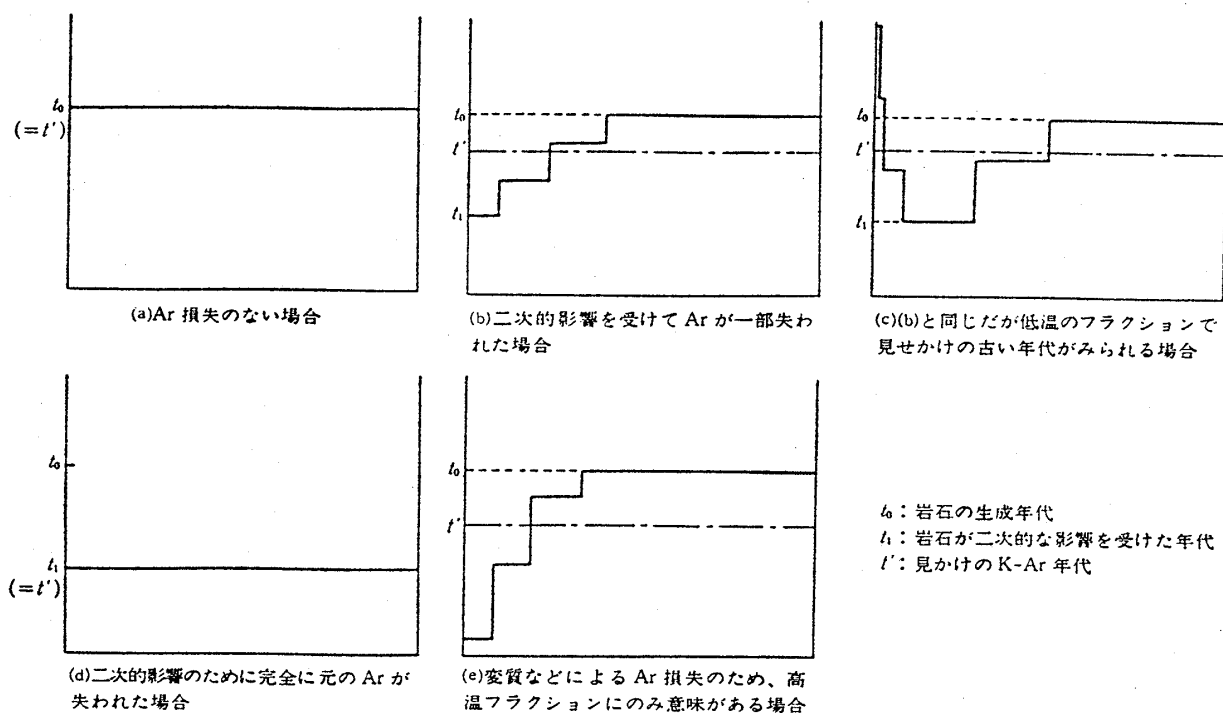
Abstract The ^{40}Ar - ^{39}Ar method has a lot of merits as a dating tool for rocks and minerals over the conventional K-Ar method, especially when it is accompanied with the stepwise heating technique. In order to get reliable ages by this method, however, appropriate precautions are necessary including the conditions of neutron irradiations for samples and the kinds of used materials. In favourable cases, the ^{40}Ar - ^{39}Ar method can recover the original age of a sample even if it was moderately disturbed by a later event. Generally terrestrial samples show more complex age patterns compared with those of meteorites and/or lunar rocks when they are disturbed. There still remain some fundamental problems to be solved in this method in order to interpret the ^{40}Ar - ^{39}Ar age pattern of terrestrial samples properly.

1. ^{40}Ar - ^{39}Ar 法はいかに発展したか

^{40}Ar - ^{39}Ar 法は、基本的には K-Ar 法と同じ“時計”を用いた岩石・鉱物の年代測定法の一つである。K (カリウム) は多くの岩石・鉱物に含まれているが、その同位体のうち ^{40}K は半減期約 12.5 億年で ^{40}Ar に壊変する。K の同位体組成は地球構成物質中ではほとんど同じと考えられており、 ^{40}K の割合も同じ年代で比べると他の K の同位体に対して一定である。現在、 $^{40}\text{K}/\text{K}=1.167 \times 10^{-4}$ (原子比) の値をもつとされている (STEIGER & JÄGER 1977)。一つの試料中の放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ と K の比は年代と共に増加し、その比を測定することによって年代測定ができる。K-Ar 法では K と ^{40}Ar を別の方法で定量する。それに対し ^{40}Ar - ^{39}Ar 法では試料を速中性子で照射し、 ^{39}K からつくられる ^{39}Ar (半減期約 270 年) を用いて年代を $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}$ 比から算出する。すなわち直接 K の定量をする必要がなく、Ar 同位体比測定のみで年代が求められる。このことが K-Ar 法では得られない多くの利点を生むが、それらについては次節で述べる。

^{40}Ar - ^{39}Ar 法は、1962 年にはすでに SIGURGEIRSSON がその原理などについて報告をしている。しかし、原文がアイスランド語で書かれており、アイスランド大学の紀要的なものに載せられていたため、彼の論文は限られた人の眼にしか触れなかった。この方法が注目されたのは、MERRIHUE ら (MERRIHUE, 1965; MERRIHUE & TURNER 1966) が隕石にこの方法を応用して成果をあげ始めてからである。MERRIHUE は 1965 年に事故死してしましたが、その後 TURNER が精力的にこの方法の開発に取り組み、多くの貢献をした。彼はこの方法を隕石の熱史の解明に応用し (例, TURNER 1968, 1969, 1970a; TURNER *et al.*, 1966)、また、この方法を行う際の中性子照射の最適条件などを調べている (TURNER, 1977)。さらに Apollo ミッションによりわれわれの手にもたらされた月の岩に対しても、彼は ^{40}Ar - ^{39}Ar 法によって年代を求め、得られた値の信頼性が高いことを実証した (例, TURNER, 1970b, 1971; TURNER *et al.*, 1971)。その後、月の岩の年代測定に対して、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法を用いることが一種の流行にすなった (例, ALEXANDER *et al.*, 1972; HUSAIN *et al.*, 1972; KIRSTEN *et al.*, 1972; PODOSEK *et al.*, 1972)。また、各種の隕石の年代測定のためにも、この方法はさまざまに利用されて

* 東京大学地震研究所. Earthquake Research Institute, University of Tokyo, Bunkyo-ku, Tokyo, 113 Japan.



第1図 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法により得られる年代パターン。縦軸は各温度段階毎に脱ガスされる ^{39}Ar の全体の ^{39}Ar に対する割合を示す。横軸で左側から右側に向うにしたがい、脱ガス温度は高くなる。

きた(例, PODOSEK, 1971; BOGARD *et al.*, 1976; JESSBERGER *et al.*, 1980; JESSBERGER 1982). 南極から大量に採取された隕石に対しても, ^{40}Ar - ^{39}Ar 法による年代測定が筆者らによって行われている(例, KANEOKA, 1983).

一方で, ^{40}Ar - ^{39}Ar 法の火山岩や変成岩への応用もさまざまに試みられた(例, GRASTY & MITCHELL, 1966; DUNHAM *et al.*, 1968). さらに方法そのものに対する基礎的な実験もいろいろと試みられ, その有効性および問題点などが明らかにされた.(例, MITCHELL, 1968; BERGER & YORK, 1970; DALRYMPLE & LANPHERE, 1971). ^{40}Ar - ^{39}Ar 法では, 試料に二次的影響が及んだ度合いの違いによって低温および高温部から脱ガスされる Ar 同位体の示す年代が異なってくる. 高温部から脱ガスされる成分ほど, 一般的には二次的影響が及んでいない. このことを利用して, 海水による変質を受けやすい海底岩石の生成年代や, 変成岩の変成を受けた年代などを求めることに用いられた(例, CLAGUE & DALRYMPLE, 1973; OZIMA & SAITO, 1973; DALLMEYER, 1975). また, ^{39}Ar はその鉱物内における捕獲位置が異なることが予想される. その結果, それぞれの主要な脱ガス温度が異なるので, ^{40}Ar - ^{39}Ar 法と段階加熱法を用いて過剰 ^{40}Ar の性質を調べることも行われた(KANEOKA, 1974; LANPHERE & DALRYMPLE, 1976).

^{40}Ar - ^{39}Ar 法で段階加熱を行うと, 脱ガスされる ^{39}Ar の全体に対する割合を横軸にとったときの ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代の変化は, それぞれの場合に応じて第1図に示すような例が考えられる. これらについては次節で触れる. 第1図に示される年代パターンでは, いずれの場合もいくつかの連続した温度段階で同じ年代値を示すとき, その年代値は地学的にも有意義であるとされることが多い. しかしときには, 他の年代測定法で約 38 億年前に生成したことが知られている西グリーンランドの岩石中の黒雲母のように, 見かけ上各温度段階で一定の年代値を示しながらその値が約 50 億年となって, 地球生成以来の年代を越えてしまった例もある(PANKHURST *et al.*, 1973). また第1図のような年代パターンとは異なった例も少なからず見いだされ, それらに対しても必ずしも十分な説明が与えられるとは言い難い.

^{40}Ar - ^{39}Ar 法では, 各試料に対し段階加熱を行うと各温度段階で扱う Ar 量が少なくなり, また中性子照射によって生じた ^{39}Ar 以外の二次的な Ar 同位体の補正の影響が大きくなるため, この方法は主として第三紀より古い試料に適用されてきた. しかし, 最近では, 1 Ma (1 Ma=100 万年)以下の若い試料に対しても ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代が報告されている(例, RADICATI di BROZOLO *et al.*, 1981).

また, 中性子照射した試料中の各粒子ごとにレーザー

を用いて脱ガスを行い、各粒子ごとの ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代を推定することが流行になっている。(例, YORK *et al.*, 1981; MALUSKI & SCHAEFFER, 1982). もっとも 10 年以上前から、この方法は月の岩の各粒子などに対して ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代を求めることに適用されてきた(例, MEGRUE, 1973; PLIENINGER & SCHAEFFER, 1976).

このように、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法は Ar 同位体比の測定のみで年代値が算出できるという利点を活かして、さまざまな利用の方法がある。以下にその基本的な内容について概括する。

2. ^{40}Ar - ^{39}Ar 法の特徴

前節でも少し触れたが、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法は従来の K-Ar 法と比べて多くの異なった特徴がある。それらを列挙する。

^{40}Ar - ^{39}Ar 法では K, ^{40}Ar を定量する代りに Ar 同位体比の測定のみで年代値が算出できる。そのために K-Ar 法に比べて次のような利点がある。

- (a) 中性子照射でつくられた ^{39}Ar と放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ は、試料中の同一部分から生じたものと見なすことができる。それゆえ、試料中の K の分布の不均一性などが原因となって生じる年代の誤差を最小限にすることができる。
- (b) 試料自体の重量は年代の計算には不必要なので、重さの測定の際に生じる測定誤差は原理的に含まれない。
- (c) 同位体比のみの測定なので、用いる試料の量は K-Ar 法に比べて相対的に少なくてよい。
- (d) 同位体比の測定は、定量することに比べて測定精度が良いので、年代測定値に対する精度を向上させることができる。
- (e) K の定量をする必要がないので、K 分析のための分析技術・機器を要しない。

また、試料の加熱温度を段階的に変え、各温度段階で脱ガスされる Ar についての ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代を求めることができる。異なった温度で脱ガスされる Ar は、試料中の異なった部分に捕獲されていた可能性があり、変質など二次的な影響に対してその失われる割合が異なる。このことを利用することにより、従来の K-Ar 法とはまったく異なった利点を得られる。すなわち、

- (f) 二次的な加熱などの影響を受けて Ar の一部が失なわれても、高温部で脱ガスされる Ar に対しては影響が及ばない。このような場合、高温部分で脱ガスされる成分は一定の年代値(プラトー年代と呼ぶ)を示し、その値は二次的な影響を受けない時の

年代に相当する(第 1 図, b, c, e)。

- (g) (f) の二次的影響が比較的短かい加熱作用(例, 衝突による加熱)による場合、低温で見いだされる年代が二次的な影響を与えた年代に相当する(第 1 図, b, c)。
- (h) 試料が変質していてもその影響が低温部で脱ガスされる Ar のみに及び、高温部でプラトー年代が得られる場合は、試料の生成年代が得られる(第 1 図, e)。
- (i) ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代の各温度段階に対する値の分布パターンから、試料中の過剰 ^{40}Ar の存在の有無が推定できる。
- (j) 同一試料から各温度段階毎に ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代が得られるので、それらが一致するか否かで 1 個の試料から得られた年代値の信頼性が検討できる。
- (k) 中性子照射によって ^{39}K から生じる ^{39}Ar や ^{40}Ca から生じる ^{37}Ar を用いて、それらと脱ガス温度の比較から、大気 Ar の捕獲位置の推定ができる(例, KANEOKA, 1974, 1975)。
- (l) 高温部で脱ガスされる成分は相対的に大気 Ar の影響が少なく、年代値算出の際の精度が相対的に良くなる。

以上は通常の K-Ar 法に比べての利点であるが、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法にもいくつかの短所がある。それらを以下に記す。

- (a) ^{40}Ar - ^{39}Ar 法では試料を速中性子照射するので、適当な規模の原子炉の利用ができることが必要条件である。
- (b) 中性子照射した試料は放射性をもつので、その取り扱いのための諸設備が必要。
- (c) 試料を中性子照射すると試料中に生成される Ar は年代算出に必要な ^{39}Ar のみでなく、 ^{36}Ar , ^{37}Ar , ^{38}Ar , ^{40}Ar なども生じる(第 1 表)。年代計算の際はこれらの妨害同位体の補正が必要であるが、そのための補正因子の正確な決定は必ずしも容易ではない。
- (d) (c) で述べた補正の影響は、K 含量が少ない、若い年代(例, 1 Ma 以下)の玄武岩などには特に大きい。その補正の影響を考慮すると、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法によって得た非常に若い試料の年代値は、通常の K-Ar 法で得た年代より精度が悪くなりやすい(DALRYMPLE & LANPHERE, 1971)。
- (e) 中性子照射により Ca から生じた Ar の補正には他の元素からは生成されない ^{37}Ar を用いるが、その半減期は 35.1 日しかない。中性子照射後試料

第1表 中性子照射した岩石・鉱物中に含まれる Ar 同位体.

Ar 同位体の源	^{36}Ar	^{37}Ar	^{38}Ar	^{39}Ar	^{40}Ar
大気 Ar ^(a)	○		○		○
放射性起源 Ar					○
宇宙線起源 Ar ^(b)	○		○		○
捕獲 Ar ^(b)	○		○		○
中性子照射により生成した K 由来の Ar ^(c)			○	○	○
中性子照射により生成した Ca 由来の Ar ^(d)	○	○	○	○	○
中性子照射により生成した Cl 由来の Ar ^(e)			○		

(a) 存在比 (原子比) ; ^{36}Ar (0.337%), ^{38}Ar (0.063%), ^{40}Ar (99.600%).

(b) 隕石・月の岩など, 地球外物質の場合に存在.

ただし捕獲 Ar については, 地球深部物質中などに含まれる放射性起源以外の Ar を意味すること多い.

(c) 主な核反応 ; $^{39}\text{K}(\text{n}, \text{d})^{38}\text{Ar}$, $^{41}\text{K}(\text{n}\alpha, \beta^-)^{38}\text{Ar}$.

$^{39}\text{K}(\text{n}, \text{p})^{39}\text{Ar}$,

$^{40}\text{K}(\text{n}, \text{p})^{40}\text{Ar}$, $^{41}\text{K}(\text{n}, \text{d})^{40}\text{Ar}$.

(d) 主な核反応 ; $^{40}\text{Ca}(\text{n}, \text{n}\alpha)^{36}\text{Ar}$,

$^{40}\text{Ca}(\text{n}, \alpha)^{37}\text{Ar}$,

$^{42}\text{Ca}(\text{n}, \text{n}\alpha)^{38}\text{Ar}$,

$^{42}\text{Ca}(\text{n}, \alpha)^{39}\text{Ar}$,

$^{43}\text{Ca}(\text{n}, \alpha)^{40}\text{Ar}$, $^{44}\text{Ca}(\text{n}, \text{n}\alpha)^{40}\text{Ca}$.

(e) 主な核反応 ; $^{37}\text{Cl}(\text{n}, \gamma, \beta^-)^{38}\text{Ar}$.

の Ar 抽出・分析までに1年以上の期間をおくと, その量は元の 1000 の1以下になって正確な補正ができなくなる.

(f) 通常の K-Ar 法に比べて, 1つの年代を得るまでの労力・時間・費用などが多くかかる. また, 実験的に細心の注意を払っても, 意味のあるプラト一年代が得られることは必ずしも保証されていない. これは試料の受けた環境条件による.

上述したように, ^{40}Ar - ^{39}Ar 法はさまざまな利点を有するが, 段階加熱法を用いて1つの年代を得るために必要な労力などは K-Ar 法に比べてかなり多い. したがって, この方法で年代測定をする際には, 明瞭な目的のもとに, 最も有効な形で得られた年代が利用できるように計画するべきである.

3. ^{40}Ar - ^{39}Ar 法の原理

これまでにも述べたように, ^{40}Ar - ^{39}Ar 法と K-Ar 法は年代測定として用いる元素の系は同一である. K の同位体 ^{40}K (半減期, 約 12.5 億年) は壊変して ^{40}Ca と ^{40}Ar になるが, 両方法とも放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ の量が年代と共に試料中に蓄積されることを利用する. K-Ar 法では, 現在の地球上の試料では $^{40}\text{K}/\text{K}$ 比が一定でその値が 1.167×10^{-4} (原子比) (STEIGER & JÄGER, 1977) と見なされていることを利用し, K 含有量を定量して試料中の ^{40}K を算出する.

^{40}Ar - ^{39}Ar 法では, 試料を中性子照射して $^{39}\text{K}(\text{n}, \text{p})^{39}\text{Ar}$ の反応で生じる ^{39}Ar と, $^{40}\text{Ar}^*$ の比を利用する. $^{39}\text{K}/\text{K}$ 比も現在の地球の試料では一定値 (0.932581 原子比) をもつ. 上記の反応で ^{39}K から ^{39}Ar が生成される

割合は、次のような式で表わされる。

$$^{39}\text{Ar} = ^{39}\text{K} \cdot \Delta T \int_0^\infty \phi(\varepsilon) \cdot \sigma(\varepsilon) d\varepsilon \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 ^{39}Ar , ^{39}K はそれぞれ単位質量当たりに生成される ^{39}Ar と ^{39}K の試料中の含有量である。また、各因子はそれぞれ次のような意味をもつ。

$\phi(\varepsilon)$: エネルギー ε をもつ中性子束。

$\sigma(\varepsilon)$: エネルギー ε における ^{39}K の (n, p) 反応に対する反応断面積。

ΔT : 中性子照射時間。

(1) から分かるように、 ^{39}K から ^{39}Ar が生成される割合はエネルギー ε に大きく依存する。対象としている (n, p) 反応の反応断面積は、速中性子 (1 MeV 以上) の領域で最大となることが知られている。したがって、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法で必要な ^{39}Ar を効率よく生成するには、速中性子束の高い原子炉を用いることが望ましい。

いま、

$$f \equiv \Delta T \int \phi(\varepsilon) \sigma(\varepsilon) d\varepsilon \dots\dots\dots (2)$$

とおく。 ^{40}K から年代 t の間に試料中につくられる $^{40}\text{Ar}^*$ は次の式で表わされる。

$$^{40}\text{Ar} = \frac{\lambda_e}{\lambda} \cdot ^{40}\text{K} (e^{\lambda t} - 1) \dots\dots\dots (3)$$

λ : ^{40}K の壊変定数 ($= 5.543 \times 10^{-10}$ /年)

λ_e : $^{40}\text{K} \rightarrow ^{40}\text{Ar}^*$ の壊変定数 ($= 0.581 \times 10^{-10}$ /年)

(1), (2), (3) より

$$\frac{\lambda_e}{\lambda} \cdot (e^{\lambda t} - 1) = \left(\frac{^{40}\text{Ar}^*}{^{39}\text{Ar}} \right) \cdot f \cdot \left(\frac{^{39}\text{K}}{^{40}\text{K}} \right) \dots\dots\dots (4)$$

年代 t_m の知られた標準試料に対する値を添字 m をつけて表わすと、(4) と同様にして次式が得られる。

$$\frac{\lambda_e}{\lambda} \cdot (e^{\lambda t_m} - 1) = \left(\frac{^{40}\text{Ar}^*}{^{39}\text{Ar}} \right)_m \cdot f_m \cdot \left(\frac{^{39}\text{K}}{^{40}\text{K}} \right) \dots\dots\dots (5)$$

(4), (5) を組み合わせて、 t を表わす式を求めると次式のようになる。

$$t = \frac{1}{\lambda} \ln \left\{ 1 + \frac{f}{f_m} \cdot \frac{\lambda}{\lambda_e} \cdot \left(\frac{^{40}\text{Ar}^*}{^{40}\text{K}} \right) \cdot \frac{(^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar})}{(^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar})_m} \right\} \dots\dots\dots (6)$$

標準試料を試料と同じ条件で中性子照射すれば、 $f = f_m$ においてよいので (6) は次のように簡単化される。

$$\begin{aligned} t &= \frac{1}{\lambda} \ln \left\{ 1 + \frac{\lambda}{\lambda_e} \cdot \left(\frac{^{40}\text{Ar}^*}{^{40}\text{K}} \right) \cdot \frac{(^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar})}{(^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar})_m} \right\} \\ &= \frac{1}{\lambda} \ln \{ 1 + J \cdot (^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}) \} \dots\dots\dots (7) \end{aligned}$$

ただし、

$$J \equiv \left(\frac{^{39}\text{K}}{^{40}\text{K}} \right) \cdot \frac{\lambda}{\lambda_e} \cdot \Delta T \int_0^\infty \phi(\varepsilon) \sigma(\varepsilon) d\varepsilon \dots\dots\dots (8)$$

あるいは、

$$J \equiv \frac{(e^{\lambda t_m} - 1)}{(^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar})_m} \dots\dots\dots (9)$$

ここで、 J を J -値と呼び、中性子照射条件を反映する値である。(7) から分かるように J -値が決まれば、試料の $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}$ 比の測定のみから年代 t が計算できる。また、(9) から分かるように、 J -値を決定するには年代 t_m の知られた標準試料中の $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}$ 比を求めればよく、直接中性子束の値を測定する必要はない。

ここで注意すべきことは、標準試料の年代 t_m は K-Ar 法でその試料を測定したときに得られる K 含有量と放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ から計算して求められる値が必要なので、必ずしも地学的に意味をもつ必要はない。すなわち t_m は、この標準試料と同じ中性子照射条件をもつ試料に対して、その $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}$ 比を対応させる役割を果たす。したがって、この t_m として、その標準試料を他の年代測定方法 (例えば Rb-Sr 法) によって得た値を用いることは、たとえその年代値の方が実際の地学的現象の年代によく対応するとしても原理的には正しくない。この点は応々にして誤解を生じやすく、注意が肝要である。しかし、このような目的で用いる標準試料は、その試料中での K, $^{40}\text{Ar}^*$ の分布が均一であることが要請されるので、一般的には二次的な Ar 損失のない、地学的にも意味のある K-Ar 年代を示す試料の方が望ましい。

^{40}Ar - ^{39}Ar 法による年代値の誤差は、(7) から次のような形として表わされる。

$$\sigma_t = \frac{(x^2 \cdot \sigma_J^2 + J^2 \cdot \sigma_x^2)^{1/2}}{\lambda(1 + J \cdot x)} \dots\dots\dots (10)$$

ここで、

σ_t : 年代 t の標準偏差。

σ_J : J -値の標準偏差。

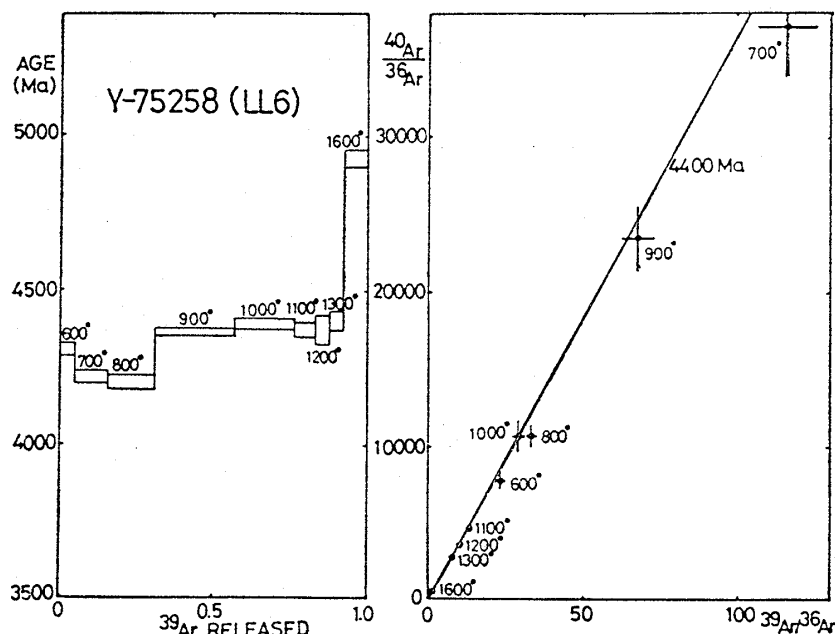
σ_x : $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}$ 比に対する標準偏差。

また (9) から、 σ_J は次のように表わされる。

$$\sigma_J = J \left\{ \left(\frac{\sigma_{t_m}}{t_m} \right)^2 \cdot \sigma_{t_m} + \left(\frac{\sigma_{x_m}}{x_m} \right)^2 \right\}^{1/2} \dots\dots\dots (11)$$

ここで $x_m \equiv (^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar})_m$ 。

これらの式より、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法では $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}$ 比の測定精度を良くし、 J -値の標準偏差を小さくすることが精度よい年代を得る必要条件である。(11) から分かるように、 σ_J を小さくするには、 σ_{t_m} が小さい必要があり、標準試料の K, $^{40}\text{Ar}^*$ 量は可能な限り精度よく決められるいることが重要である。1970 年代前半月の岩の ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代測定に対して結果を早く報告することが競争になり、こうした基本的な点についての考慮が軽んじられた。それに対して WASSERBURG *et al.* (1972) がこの



第2図 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代パターンおよびアイソクロン・プロットの例。試料：南極隕石の Y-75258 (LL6 タイプ)。(KANEOKA, 1981)

点に対する注意を喚起したのは妥当なことと言えよう。

4. ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代パターン図とアイソクロン・プロット

中性子照射した試料を、通常の K-Ar 年代を求めるのと同じように1回で溶融して Ar 抽出し、その ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代を求めた場合にはただ1個の年代値が得られる。この値は K-Ar 年代と対応するべきものであるが、実際には必ずしも一致しない。例えば、試料表面などに二次的に汚染した K があった場合、それから中性子照射でつくられた ^{39}Ar は試料を Ar 抽出装置に置いて真空を下げるための前加熱処理をした際に容易に失われる。その結果得られた ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代は、K-Ar 法で求めた場合より古い年代値になる。このような場合には、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代の方が K-Ar 年代よりも試料の実年代に近い。

段階加熱法を行った場合、各温度段階毎に ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代が算出できる。ただし、その場合、中性子照射によって Ca から生じた ^{36}Ar などを補正した残りの ^{36}Ar は大気 Ar 組成をもつと仮定する。したがって、 $(^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}) = 295.5$ の値を用いて大気成分の ^{40}Ar 量を除いた後、放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ の ^{39}Ar に対する相対量を推定する。しかし、月の岩や隕石など現在の地球とは異なった環境で生成した試料に対しては、適当な $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比を推定して、放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ を求める。 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代ダイアグラムでは、このようにして得た各温度段階から脱ガスした Ar の示す ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代を縦軸にと

る。横軸には脱ガス温度、各温度段階毎に脱ガスされた ^{39}Ar の割合の積分値、段階加熱の段階数などがとられる。最近では、横軸として第2図の左側の図に示されるように、各温度段階で脱ガスされた ^{39}Ar の割合をそれぞれ示す表示法が最もよく用いられる。このようなプロットをとると、各温度段階で得られた ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代に対して、その温度で脱ガスされた ^{39}Ar の全体に対する割合が全体の ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代に対する重みとして考えられ、その年代値の地学的意味を吟味する上で参考になる。

段階加熱法で各温度段階で脱ガスされる Ar に対しては、 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 、 $^{39}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比が求められる。ここでは ^{39}K からつくられる ^{39}Ar 以外の、試料の中性子照射によって生成された Ar 同位体を補正した後の値を基に考える。K-Ar 法では、同一環境で同じときに生成された試料は、 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ - $^{40}\text{K}/^{36}\text{Ar}$ 図の上でアイソクロン(等年代線)をつくる。同じようにして、中性子照射された試料では、 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ - $^{39}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ のプロットでもアイソクロンを形成することが予想される。いま試料が生成したときにとりこむ Ar の $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比を $(^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_0$ で表わすと、 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ と $^{39}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ の関係は次式のようにになる。

$$\left(\frac{^{40}\text{Ar}}{^{36}\text{Ar}}\right) = \left(\frac{^{40}\text{Ar}}{^{36}\text{Ar}}\right)_0 + k \cdot \left(\frac{^{39}\text{Ar}}{^{36}\text{Ar}}\right) \cdot (e^{\lambda t} - 1) \dots \dots \dots (12)$$

$$\text{ここで、} k = \frac{\lambda_e}{\lambda} \cdot \frac{^{40}\text{K}}{^{39}\text{K}} \cdot \frac{^{39}\text{K}}{^{39}\text{Ar}} \text{ である。}$$

同じ中性子照射条件では ^{39}K からつくられる ^{39}Ar の

割合は一定なので、結局 k は一定値をとる。いま、各温度段階で脱ガスする Ar ガスは t 年前から蓄積された放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ と、 t 年前に試料が形成された際にとりこんだ $(^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_0$ 比をもつ Ar からのみなるものとする。試料から二次的な Ar 損失がない場合、(12)から分かるように、各温度段階で脱ガスした Ar 同位体の系は、 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ - $^{39}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 図中で一つの直線上に並ぶ筈である。その傾きが $k \cdot (e^{kt}-1)$ であるので、これから年代 t が求められる。このようにして得た年代は、 $(^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_0$ 比の値を仮定せずに求められるので、原理的にはより一般的な年代の求め方である。また、この方法で得た年代は、 $(^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_0$ 比の値の変化よりも、 $^{39}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比の値の最大値に左右されることが多い。したがって、アイソクロン法で求めた年代値は、二次的な温度・圧力などの作用に対して相対的に影響を受けにくい利点がある(例、OZIMA *et al.*, 1979)。しかし、この方法で求めた年代値の見かけ上の不確定さは、一般に $(^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_0$ 比を仮定して年代を求めた場合よりも大きく、各温度段階における年代値の異同を判別しにくい。また、通常の岩石・鉱物試料などでは、特にその低温で脱ガスされる成分などで放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ を一部分失っている場合も少なくない。その量が大きければ明らかにアイソクロンから外れるので、その点をアイソクロン年代の計算から除外できる。しかし、実際には中間のものがみいだされることが少なくない。このようなデータを含めてアイソクロン年代を計算すると、その点が $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ - $^{39}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 図中で $^{39}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比の小さい場合には、見かけ上 $(^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_0$ 比が実際より小さく計算され、アイソクロンの傾きはやや大きくなるので年代が古い方にずれる。また、中性子照射によって生じた Ar 同位体の補正が不十分な場合にも、同様の影響を与える。したがって、アイソクロン法で地球上の比較的若い試料の年代を求めた場合でも、 $(^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_0$ 比は必ずしも現在の大気値にはならない。特に海洋底岩石などある程度変質が進んだ試料に対しては、 $(^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_0$ 比が 100~200 程度になることすらある。(例、SAITO & OZIMA, 1977)。これらの値が実際の岩石が生成したときにとりこんだ $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比を示していると考えのも一つの立場である。しかし、今からせいぜい 100 Ma 前後の時代から現在までの間に、海水中などの Ar 同位体比が場所毎に大きく変動しているというのは、これまで得られている種々のデータから推定する限り非常に考えにくい。したがって、これらの試料の示す $(^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_0$ 比の変動は、(12)のアイソクロンが成り立つべき条件から少し外れた点をも含めた結果生じた見かけ上のもの

と考えた方が妥当である。こうした観点から、最近では ^{40}Ar - ^{39}Ar 法の年代表示法としてアイソクロンのみを示すということはほとんどされなくなった。しかし、アイソクロン法は原理的には多くの利点もあるので、その目的に応じて使い分けをすることが大切である。

すでに、第1図に段階加熱法で得られる ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代パターンのいくつかの例を示した。このうち第1図(b)のように、試料が二次的な加熱でその一部の放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ を失う場合、TURNER(1968)は体積拡散(volume diffusion)を仮定して第3図のようなパターンを計算で得た。第3図の横軸は、各温度段階で脱ガスされた ^{39}Ar の全体に対する割合を示している。一方、FITCH *et al.*(1969)は、結晶格子中に捕獲されている Ar は失われにくく、格子欠陥や表面附近に捕獲されている Ar は逃げやすいということを仮定して、同様のパターンを得ている。

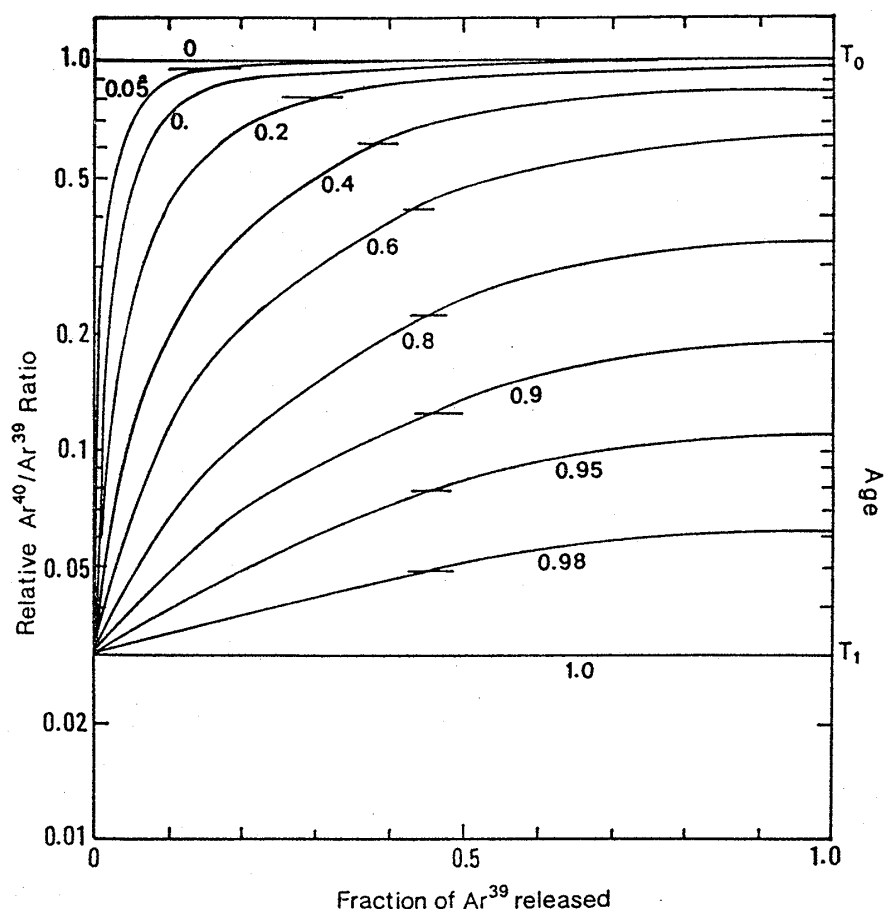
5. ^{40}Ar - ^{39}Ar 法の実験上の問題

^{40}Ar - ^{39}Ar 法で実際に年代測定を行う場合、通常の K-Ar 法の場合と最も異なる点は試料を中性子照射することである。その結果、実験の際に K-Ar 法とは異なる問題が生じるので、それについて以下で論じる。

前述したように、試料を中性子照射すると年代値を求めるのに必要な ^{39}K から生成された ^{39}Ar 以外に、各種の Ar 同位体が生じる。それらの生成する割合は原子炉の中性子照射条件によって決まる。すなわち中性子束のエネルギー・スペクトラム、強度などが主要な因子となる。第1表には、地球科学で用いられる岩石・鉱物などを中性子照射したときに Ar 同位体を生じる主な核反応を示す。 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代を求める際には、 ^{40}K の壊変により生じた放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ と、 $^{39}\text{K}(n, p)^{39}\text{Ar}$ で生じた ^{39}Ar 以外はすべて余分な妨害 Ar 同位体となり、補正が必要である。その方法は以下の手順で行う。

(i) ^{37}Ar はほとんど ^{40}Ca から生じると見なせる。

Ca から生じる ^{36}Ar , ^{38}Ar , ^{39}Ar を補正するために、 CaF_2 結晶などを用いて $(^{36}\text{Ar}/^{37}\text{Ar})_{\text{Ca}}$, $(^{39}\text{Ar}/^{37}\text{Ar})_{\text{Ca}}$, $(^{38}\text{Ar}/^{37}\text{Ar})_{\text{Ca}}$ を定め、補正因子として採用する。この際 ^{37}Ar の半減期が 35.1 日であることを考慮すると、中性子照射時間 ΔT 、照射後分析までの時間を Δt として ^{37}Ar の全生成量 $(^{37}\text{Ar})_0$ は、 $(^{37}\text{Ar})_0 = (^{37}\text{Ar}) \cdot e^{\lambda_{37} \Delta t} \cdot \lambda_{37} \cdot \Delta T (1 - e^{-\lambda_{37} \Delta T})^{-1} \dots$ (13) で求められる。ただし λ_{37} は ^{37}Ar の壊変定数(= 0.0203/日)である。補正因子としての ^{37}Ar は、 $(^{37}\text{Ar})_0$ を用いる。一般的には、 $(^{40}\text{Ar}/^{37}\text{Ar})_{\text{Ca}} < 6 \times 10^{-4}$ で他の起源の ^{40}Ar に比べて Ca 由来の ^{40}Ar



第3図 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代パターンのモデル計算の例. 球状の鉱物が年代 T_0 ($^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}=1$) で生成後, 年代 T_1 ($^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}=0.03$) で二次的な影響を受け, 体積拡散によって Ar が失われたと仮定. 各曲線上の数値は, T_1 で失われた $^{40}\text{Ar}^*$ の割合を示す. 短い横棒は, その際の試料の $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}$ 比の平均値を示す. (TURNER, 1968)

の寄与が非常に小さく, 補正を考慮する必要がない.

- (ii) Ca 由来の Ar 同位体を除いた後の ^{39}Ar は, ^{39}K 起源のものと考えてよい. このことを利用して, K_2SO_4 などを中性子照射して $(^{38}\text{Ar}/^{39}\text{Ar})_{\text{K}}$, $(^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar})_{\text{K}}$ などを求め, K に対する補正因子として用いる. $(^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar})_{\text{K}} = n \times 10^{-2}$ として, $n = (1 \sim 5)$ 程度の場合はまだしも, 原子炉の照射条件によっては $n = (10 \sim 20)$ 程度になることがある. このような場合, K 含有量が大きく年代が若い試料に対してはこの補正が重要になり, 年代測定精度にも影響する.

^{39}K は半減期が約 270 年と長いので, 照射後 1 年以内の分析では壊変による影響は小さい. しかし, それ以上経ってから分析する場合, ^{39}Ar の壊変が無視できず, 補正が必要となる.

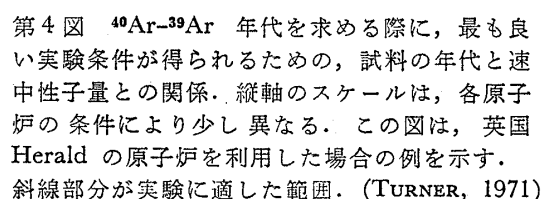
- (iii) 隕石などで宇宙線照射年代を求めるため, 試料中の量を正確に見積もる場合には, さらに $^{37}\text{Cl}(n, \gamma)^{38}\text{Cl} \xrightarrow{\beta^-} ^{38}\text{Ar}$ の反応で生じた ^{38}Ar を補正する必要がある.

以上のような補正を行った後, 地球上の試料の場合に

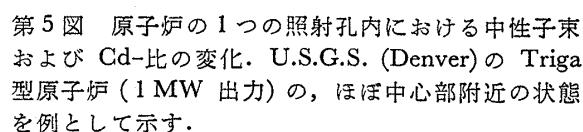
は大気 Ar, 隕石・月の岩などの場合には太陽風成分等の捕獲 Ar および宇宙線生成 Ar を補正して, 初めて ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代算出に必要な $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}_{\text{K}}$ を得る. ただし, $^{39}\text{Ar}_{\text{K}}$ は, K からの生成成分を表す.

これらの補正因子は, 各試料中の K/Ca 比, 年代, K 含有量などによってその影響の度合いが異なる. K/Ca 比が小さく, 年代が若い場合には, 特に $(^{36}\text{Ar}/^{37}\text{Ar})_{\text{Ca}}$, $(^{39}\text{Ar}/^{37}\text{Ar})_{\text{Ca}}$ 比の精度よい値が必要である. K/Ca 比が大きい場合には $(^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar})_{\text{K}}$ 比の値が重要となる. 中性子照射による妨害同位体の補正に関しては, BRETON (1970) が詳しく論じている.

質量分析計を用いた測定の際の条件を考えると, 各同位体の量が極端に異なるとその同位体比の精度が悪くなる. したがって, $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}_{\text{K}}$ 比としては, 例えば 300 位より小さい値が望ましい. すなわち $^{39}\text{K}(n, p)^{39}\text{Ar}$ で生成される ^{39}Ar の量は, 放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ に比べて上記の条件を満足する程度は生成されることが要請される. そのために必要な速中性子量の範囲が決められる. 一方, 妨害同位体の量はできるだけ少ない方が望ましい. これらの妨害同位体の影響を少なくする (例えば 1



試料の中性子照射に関わる問題のうちもう 1 つの重要な点は、照射試料に対する中性子束が必ずしも様なものが得られないことである。同じ原子炉内でも照射孔が異なれば条件が異なるのは当然としても、同一照射孔であってもその上下では中性子束およびそのエネルギーpekラムに差があることも稀れではない。第 5 図に例を示す。これは筆者がかつてデンバーの米合衆国地質調査所(U.S.G.S)に滞在した折、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代測定用のために用いた、U.S.G.S. 所有 Triga 型原子炉(1 MW 出力)の中心部にある照射孔内の中性子束分布である。中央部附近の一点を基準とすると、その上下方向で中性子束および Cd 比が大きく変化していることが分かる。ここで Cd 比というのは、試料を Cd 板で覆わないときと覆ったときに受ける中性子束の比を呼ぶ。Cd は 0.5 eV 以下の熱中性子に対して非常に大きい吸収断面積をもつため、Cd で覆ったときに受ける中性子束はエネルギーの大きいもののみが相対的に多くなる。このように同一照射孔内でも速中性子量が変化するので、標準試料などの $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}_K$ 比が位置によって変化する。測定試料と標準試料は、対にして石英管などにいれて中性子照射を行う。このような中性子束の不均一性の影響を取り除くため、試料などをいれた管を照射中回転して測定



当初同一の原子炉でKやCaから生成されるArの補正因子はかなり一定であると考えられ、一度補正因子が決められた後はその値が踏襲されることが多かった。しかし著者らの経験では、同一の原子炉でもこれらの値が異なった照射時期で異なることが見いだされ、また、中性子束の勾配も異なることが少なからず生じた。この原

因としては、必ずしも原子炉内の同じ照射孔で中性子照射が行われていなかったことが大きい要因である。しかし、前述したように、同一照射孔内でも上下で中性子束等に差があり、これらが年代測定の誤差になり得るので十分に注意しなければならない。

一方、中性子照射による核反応生成物としての Ar は、数 100 KeV 程度の反跳エネルギー(recoil energy)をもつ。通常の結晶中では、このオーダーの反跳エネルギーにより生成された Ar 原子は 0.1 μm 程度移動する。例えば K に富んだ鉱物に接して K 含有量の少ない鉱物がある場合、これらを中性子照射して生成された ^{39}Ar のうち壊界附近にあるものは、K 含有量の少ない鉱物中に反跳効果で移ってしまうことがある。HUNEKE & SMITH(1976)は、Kに富むガラスとカンラン石を接触させたまま中性子照射を行い、両者の ^{40}Ar - ^{39}Ar 法による比較を試みた。その結果、ガラスからカンラン石結晶に、反跳効果により ^{39}Ar が移動したことが見いだされた。しかし ^{37}Ar に対してはこのような移動は見いだされていない。段階加熱により脱ガスされる Ar ガスで、異常に大きい $^{40}\text{Ar}^*/^{39}\text{Ar}$ 比を示すものが、K含有量の異なった鉱物相の混合物や再結晶したガラス、カリ長石などで報告されている(例、FLECK *et al.*, 1977; ALB-ARÈDE *et al.*, 1978)。これらは、こうした反跳効果によるものと考えられる。したがって、この影響を受けないようにするためには、不均一な組成をもつ極めて細粒な試料は避けた方がよい。

照射中性子束が強く大きい場合には、試料の構造そのものを変化させ、Ar の脱ガスパターンに影響を与えることがある。例えば HORN *et al.*, (1975)は、強い中性子束を受けた月の岩では、弱い中性子束の場合よりも Ar の脱ガス温度が高くなり、プラトー年代が2%ほど下ることを見いだした。この現象は、著者が関与していた月の岩の ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代測定の際に最初に見いだされ(KIRSTEN *et al.*, 1972)、HORN らはそれに基づいてさらに実験条件をおさえて上記のような結果を得たものである。また、SEIDEMANN(1978)や STETTLER & BOCHSLER(1979)は、海底に噴出した枕状溶岩のガラス部分に ^{40}Ar - ^{39}Ar 法を適用した場合、中性子照射によって $^{40}\text{Ar}^*$ や ^{39}Ar が元の捕獲位置から移動することを報告している。一般にガラス質の試料に対しては、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法で意味のある年代を求めることは必ずしも容易ではない。

上述のように、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法では試料の中性子照射ということが最も K-Ar 法と異なる点であり、それから由来する年代測定の誤差の原因を可能な限り取り除くこ

とが実験の際の要点となる。また、中性子照射を行うと、核反応に伴って生じるエネルギーなどで試料の温度が上昇する。特に熱中性子をおさえるために試料を Cd 箔で覆った場合には、Cd が熱中性子を吸収して温度の上昇が一層大きくなる。これらの原因で試料の温度が上昇した場合でも、その温度が約 200°C 以下におさえられるようにしておかないと、放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ が一部試料から失われる恐れがある。

隕石などを中性子照射する場合、大気中で試料を照射すると大気 Ar が中性子との衝突により試料中にうちこまれることが生じる。この影響を避けるため、地球外物質を中性子照射する場合には、試料を石英管などに真空封入する。海底岩石などが変質して水などを相対的に多く含む場合は、温度が上昇して蒸発した水の影響が周囲に及ばないようにするために、試料を石英管などに真空封入をしておいた方が安全である。

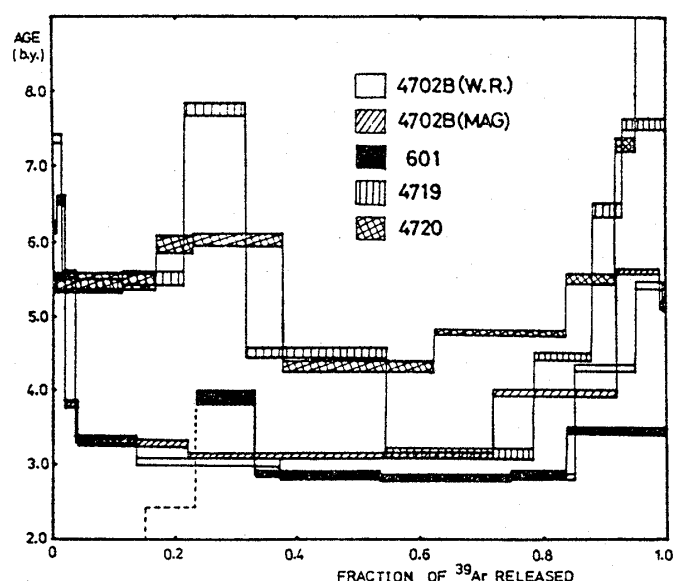
中性子照射した試料からの Ar 抽出・精製、Ar 同位体比測定などは、基本的には K-Ar 法の場合の Ar の取り扱いと同じである。しかし、中性子照射した試料は放射性を帯びているので、その取り扱いには十分の注意が必要である。通常の岩石などでつくられる放射性の強い ^{24}Na (半減期、約 15 時間)、 ^{60}Co (半減期、約 5.2 年)などの核種は溶解・固結した部分に残るので、精製した Ar ガス自体の放射能は非常に弱く、通常の実験室での取り扱いが可能となる。しかし、二次電子増倍管を用いた質量分析計では、中性子照射して生成した Ar ガスの同位体測定を多く行っていくと、ある程度以上になると二次電子増倍管のノイズレベルが増大したとの報告もある。

また、Ar 同位体測定では、 ^{36}Ar から ^{40}Ar まで4種類(^{38}Ar を除いた場合)ないし5種類(^{38}Ar を含む場合)の Ar 同位体測定を繰り返す必要がある。K-Ar 法の場合と異なり、通常最も大きいピークとなる ^{40}Ar のすぐ隣のピークとして ^{39}Ar を測定する。ゆえに前者のピークの影響が後者に及ばないように、質量分析計の分解能を十分にあげておくなど測定上でも細かい注意が必要となる。

前述したように、妨害同位体の補正には ^{37}Ar が基本となる。特にその補正の影響がでそうな試料の場合には、試料の中性子照射後 ^{37}Ar が 35.1 日の半減期で壊変してしまうことを十分考慮して、Ar 同位体比測定の日程を考えておくべきである。

6. ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代測定に用いられる試料

原理的には、K-Ar 法で用いられる試料に対しては同



第6図 Kola 半島, Montshe Tundra および Nittis 地域から採取された超塩基性捕獲岩類の ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代パターン. 試料番号のうち, 4702B の W. R. は全岩, MAG は, 磁性鉱物成分を示す. 他の試料は全岩で分析. 全体の年代パターンはU字型を示し, 中間の温度段階 (900~1100°C) で, 見かけの ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代が最も若い年代を示す. 低温, 高温部は明らかに古過ぎる年代を示し, 過剰 ^{40}Ar の存在を示唆する. (KANEOKA, 1974)

じように適用できる. 特に隕石・月の岩などのように, 二次的に Ar 損失を起させる原因が他物体による衝突の際の加熱など相対的に複雑でない過程を経ている試料に対しては, ^{40}Ar - ^{39}Ar 法の利点が最大に活用できる. しかし, 地球上の古い岩石などで, 長期間にわたって複数回の影響を受けた場合などは, ^{40}Ar - ^{39}Ar 法を用いてもその岩石の生成年代を正確に推定することは難しい.

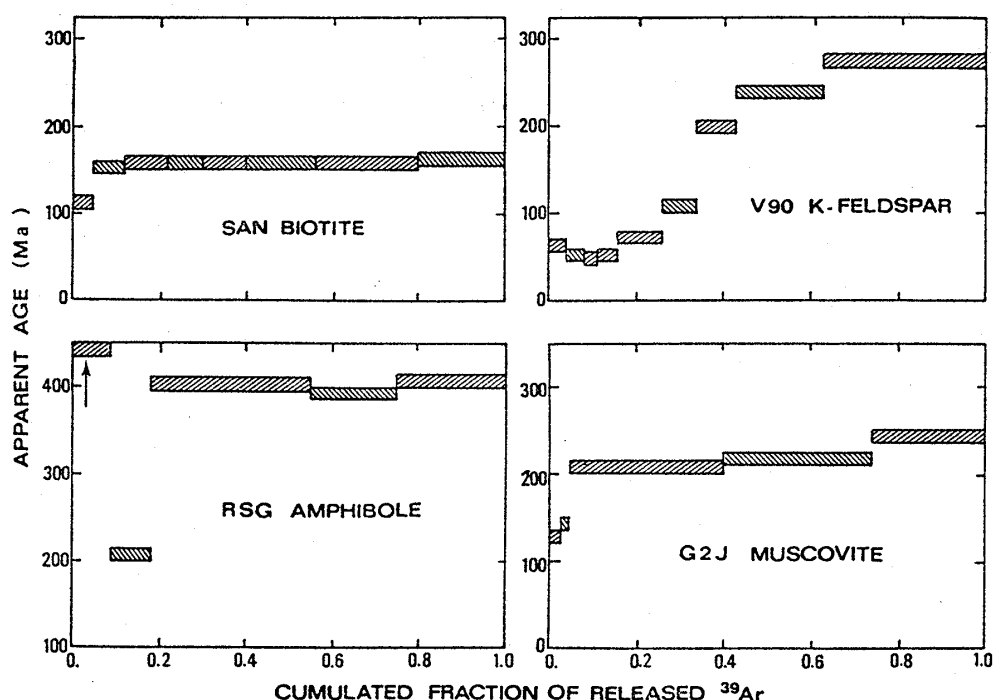
地球上の物質では, 全岩を用いるのは鉱物分離が相対的に難しい火山岩類や, やや細粒質のドレライト, ハンレイ岩などである. 海底岩石などは海水との反応で一部 Ar が失われていることが多く, ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代によってその年代が推定されることが多い (例, KANEOKA & OZIMA, 1977; SAITO & OZIMA, 1977). しかし, この方法によっても, 言わゆるプラト年代としてははっきりした生成年代が必ずしも得られるとは限らない (例, KANEOKA, 1980). 一つの試料のデータを得るのに労力がかかる割に後者のような例が少なくないことは, この方法を適用する際に十分考慮すべきことである.

^{40}Ar - ^{39}Ar 法は, 段階加熱を行うことによりその年代パターンから過剰 ^{40}Ar の存在を明らかにすることができる (例, KANEOKA, 1974; LANPHERE & DALRYMPLE, 1976). 第6図にその例を示す. これらの試料は Kola 半島から産出した超塩基性捕獲岩で, K-Ar 法で約 30~40 億年の年代が得られ (KIRSTEN & GENTNER, 1966), 当時知られている最も古い年代の岩石と考える研究者もいた. しかし, 第6図に見られる通り, ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代は低温・高温部で異常に古い値を示すが, 中間の脱ガス温度付近では明らかにそれらより若い年代を示す. ^{39}Ar の脱ガスした割合などから判断すると, これらの試料の

生成時から蓄積された放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ の割合は中間の脱ガス温度段階が最も大きいと推定され, 高温部などの古い年代は過剰 ^{40}Ar の存在のためと解釈できる. しかし, 中間の温度段階でも過剰 ^{40}Ar が全く存在しないとは言いきれない. 結局こうしたU字型パターンを示す場合は, その中央部の最も若い年代が試料の生成年代の最大値に相当すると考えられる. こうしたU字型パターンは岩石ばかりでなく鉱物の場合にも見られ (LANPHERE & DALRYMPLE, 1976), 過剰 ^{40}Ar を含む試料の典型的パターンの一つと考えられる.

^{40}Ar - ^{39}Ar 法としては, 鉱物としては白雲母, 黒雲母, 角閃石, 斜長石, カリ長石などが用いられる. サニディンを除いた他の種類のカリ長石は, 一般に熱に対して Ar 保持が弱く, K-Ar 法にはあまり適していないと考えられている. しかし, 低温ではその Ar 保持は他の鉱物とあまり変わらないので, 変成年代などの推定には有効な鉱物と言える (ALBARÈDE *et al.*, 1978). また, 黒雲母は, 中性子照射などに対して, 放射性起源 $^{40}\text{Ar}^*$ や過剰 ^{40}Ar などの分布が均一化される傾向が見られる. 典型的な例は, Rb-Sr-Sm-Nd 法などによる年代測定結果から約 38 億年前に生成したと推定されている西グリーンランドの試料中の黒雲母では, 5,000 Ma を越えるプラト年代を示した (PANKHURST *et al.*, 1973). したがって, 黒雲母を試料とした場合, たとえばその ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代がプラト年代を示したとしてもそれが試料の生成年代ないし二次的な加熱後の年代を示すとは限らない危険性があるので, 十分な注意が必要である.

第7図は, 南フランス, Pyrénées 地域の変成岩などから分離された各種鉱物が示す年代パターンである



第7図 南フランス，Pyrenées地域の変成岩類から分離された鉱物の示す ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代パターン。この地域は、各鉱物生成後に二次的な加熱を受けている。(ALBAREDE *et al.*, 1978. に基づき、一部簡単化して作成された図)

(ALBAREDE *et al.*, 1978). これらは二次的な加熱などの影響を受けており、その影響を受ける度合が鉱物毎に異なることが良く示されている。もちろんそれぞれの試料の地学的環境の差も反映していると考えるべきであろう。

前節でも論じたように、ガラス質ないし非常に細かい粒子の試料は中性子照射の影響を受けて Ar が元の捕獲位置から移動しやすい。したがって、ガラス質の枕状溶岩や、海緑石・イライトなどを含む粘土鉱物は ^{40}Ar - ^{39}Ar 法には不適当な試料である(例、HALLIDAY, 1978)。そのため、堆積岩などの ^{40}Ar - ^{39}Ar 法による堆積年代の推定は未解決の問題として残されている。

7. ま と め

^{40}Ar - ^{39}Ar 法は、K-Ar法に比べて多くの利点を有する。段階加熱を併用することにより、その利点はさらに増加する。隕石・月の岩などの年代測定に対してはその利点が最大限に活かされたが、地球上の試料に対しては必ずしもきちんとした年代が得られるわけではない。大きな理由の1つとして、地球表面上における岩石・鉱物などへの二次的影響が複雑で、個々の現象に対応する ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代パターンの解釈が完全に理解されているとは言い難いことが挙げられる。この点は、今後更に基礎的な室内実験などでその機構が明らかにされる必要がある。

全体として、1個の試料の年代を得るのに ^{40}Ar - ^{39}Ar

法の方が K-Ar法に比べて、労力・費用が余分にかかる。また ^{40}Ar - ^{39}Ar 法を用いても必ずしも意味ある年代が得られるとは限らない。 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代測定はこれらの点も十分に考慮した上で、はっきりした目的の上とその利点を最大限に活かすよう用いられるべきである。

文 献

- ALBAREDE, F., FERAUD, G., KANEOKA, I. and ALLÈGRE, C. J., 1978 : ^{39}Ar - ^{40}Ar dating : The importance of K-feldspars on multi-mineral data of polyorogenic areas. *J. Geology*, **86**, 581-598.
- ALEXANDER, Jr., E. C., DAVIS, P. K. and REYNOLDS, J. H., 1972 : Rare gas analyses on neutron irradiated Apollo 12 samples. *Proc. Third Lunar Sci. Conf.*, **2**, 1787-1795.
- BERGER, G. W. and YORK, D., 1970 : Precision of the $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating technique. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **9**, 39-44.
- BOGARD, D. D., HUSAIN, L. and NYQUIST, L. E., 1976 : ^{40}Ar - ^{39}Ar dating of collisional events in chondritic parent bodies. *J. Geophys. Res.*, **81**, 5664-5678.
- BRERETON, N. R., 1970 : Corrections for interfering isotopes in the $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating method. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **8**, 427-433.
- CLAGUE, D. A. and DALRYMPLE, G. B., 1973 : Age of Koko seamount, Emperor seamount chain. *Ibid.*, **17**, 411-415.
- DALLMEYER, R. D., 1975 : $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ ages of biotite and hornblende from a progressively remetamorphosed basement terrane : their bearing on interpretation

- of release spectra. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **39**, 1655-1669.
- DALRYMPLE, G. B. and LANPHERE, M. A., 1971 : $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ technique of K-Ar dating : A comparison with the conventional technique. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **12**, 300-308.
- DUNHAM, K. C., FITCH, F. J., INSEN, P. R., MILLER, J. A. and MITCHELL, J. G., 1968 : The geochronological significance of argon-40/argon-39 age determinations on white whin from the northern Pennine orefield. *Proc. Roy. Soc.*, **A307**, 251-266.
- FITCH, F. J., MILLER, J. A. and MITCHELL, J. G., 1969 : A new approach to radio-isotopic dating in orogenic belts. *Geol. Soc. London, Spec. Pub.*, No. **3**, 157-195.
- FLECK, R. J., SUTTER, J. F. and ELLIOT, D. H., 1977 : Interpretation of discordant $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ age-spectra of Mesozoic tholeiites from Antarctica. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **41**, 15-32.
- GRASTY, R. L. and MITCHELL, J. G., 1966 : Single sample potassium-argon ages using the omegatron. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **1**, 121-122.
- HALLIDAY, A. N., 1978 : ^{40}Ar - ^{39}Ar stepheating studies of clay concentrates from Irish orebodies. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **42**, 1851-1858.
- HERZOG, G. F., BENCE, A. E., BENDER, J., EICHHORN, G., MALUSKI, H. and SCHAEFFER, O. A., 1980 : $^{39}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$ systematics of Allende inclusions. *Proc. Eleventh Lunar Planet. Sci. Conf.*, 959-976.
- HORN, P., JESSBERGER, E. K., KIRSTEN, T. and RICHTER, H., 1975 : ^{39}Ar - ^{40}Ar dating of lunar rocks ; effects of grain size and neutron irradiation. *Proc. Sixth Lunar Sci. Conf.*, 1563-1591.
- HUNEKE, J. C. and SMITH, S. P., 1976 : The realities of recoil : ^{39}Ar recoil out of small grains and anomalous age patterns in ^{39}Ar - ^{40}Ar dating. *Proc. Seventh Lunar Sci. Conf.*, 1987-2008.
- HUSAIN, L., SCHAEFFER, O. A., FUNKHOUSER, J. and SUTTER, J., 1972 : The ages of lunar material from Fra Mauro, Hadley Rille, and Spur Crater. *Proc. Third Lunar Sci. Conf.*, **2**, 1557-1567.
- JESSBERGER, E. K., 1982 : On the anomalously high age in an Allende inclusion. *Meteoritics*, **17**, 232-233.
- , DOMINIK, B., STAUDACHER, Th. and HERZOG, G. F., 1980 : ^{40}Ar - ^{39}Ar ages of Allende. *Icarus*, **42**, 380-405.
- KANEOKA, I., 1974 : Investigation of excess argon in ultramafic rocks from the Kola Peninsula by the $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ method. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **22**, 145-156.
- , 1975 : Non-radiogenic argon in terrestrial rocks. *Geochim. J.*, **9**, 113-124.
- , 1980 : $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ dating on volcanic rocks of the Deccan Traps, India. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **46**, 233-243.
- , 1981 : ^{40}Ar - ^{39}Ar ages of Antarctic meteorites: Y-74191, Y-75258, Y-7308, Y-74450 and ALH-765. *Mem. Natl. Inst. Polar Res., Spec. Issue* **20**, 250-263.
- , 1983 : Anomalously old ^{40}Ar - ^{39}Ar ages of Antarctic meteorites due to weathering. *Nature*, **304**, 146-148.
- and OZIMA, M., 1977 : $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ ages of a diabase sill and a basalt in the Central-Pacific Basin. *Nature*, **268**, 132-133.
- KIRSTEN, T., DEUBNER, J., HORN, P., KANEOKA, I., KIKO, J., SCHAEFFER, O. A. and THIO, S. K., 1972 : The rare gas record of Apollo 14 and 15 samples. *Proc. Third Lunar Sci. Conf.*, Vol. **2**, 1865-1889.
- and GENTNER, W., 1966 : K-Ar Alterbestimmungen an Ultrabasiten des Baltischen Schildes. *Z. Naturforsch.*, **21a**, 119-126.
- LANPHERE, M. A. and DALRYMPLE, G. B., 1976 : Identification of excess ^{40}Ar by the $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ age spectrum technique. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **32**, 141-148.
- MALUSKI, H. and SCHAEFFER, O. A., 1982 : ^{39}Ar - ^{40}Ar laser probe dating of terrestrial rocks. *Ibid.*, **59**, 21-27.
- MEGRUE, G. H., 1973 : Spatial distribution of $^{40}\text{Ar}/^{39}\text{Ar}$ age in lunar breccia 14301. *J. Geophys. Res.*, **78**, 3216-3221.
- MERRIHUE, C. M., 1965 : Trace-element determinations and potassium-argon dating by mass spectroscopy of neutron-irradiated samples. *Trans. Amer. Geophys. Union*, **46**, 125.
- and TURNER, G., 1966 : Potassium-argon dating by activation with fast neutrons. *J. Geophys. Res.*, **71**, 2852-2857.
- MITCHELL, J. G., 1968 : The argon-40/argon-39 method for potassium-argon age determination. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **32**, 781-790.
- OZIMA, M., KANEOKA, I. and YANAGISAWA, M., 1979 : Temperature and pressure effects on ^{40}Ar - ^{39}Ar systematics. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **42**, 463-472.
- and SAITO, K., 1973 : ^{40}Ar - ^{39}Ar stepwise degassing experiments on some submarine rocks. *Ibid.*, **20**, 77-87.
- PANKHURST, R. J., MOORBATH, S., REX, D. C. and TURNER, G., 1973 : Mineral age patterns in ca. 3700 my old rocks from West Greenland. *Ibid.*, **20**, 157-170.
- PLIENINGER, T. and SCHAEFFER, O. A., 1976 : Laser probe ^{39}Ar - ^{40}Ar ages of individual mineral grains in lunar basalt 15607 and lunar breccia 15465. *Proc. Seventh Lunar Sci. Conf.*, 2055-2066.
- PODOSEK, F. A., 1971 : Neutron-activation potassium-argon dating of meteorites. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **35**, 157-173.
- , HUNEKE, J. C. and WASSERBURG, C. J.,

- 1972 : Gas-retention and cosmic-ray exposure ages of lunar rock 15555. *Science*, **175**, 423-425.
- RADICATI di BROZOLO, F., HUNEKE, J. C., PAPANASTASIOU, D. A. and WASSERBURG, G. J., 1981 : ^{40}Ar - ^{39}Ar and Rb-Sr age determinations on Quaternary volcanic rocks. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **53**, 445-456.
- SAITO, K. and OZIMA, M., 1977 : ^{40}Ar - ^{39}Ar geochronological studies on submarine rocks from the western Pacific area. *Ibid.*, **33**, 353-369.
- SEIDEMANN, D., 1978 : ^{40}Ar / ^{39}Ar studies of deep-sea igneous rocks. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **42**, 1721-1734.
- SIGURGEIRSSON, T., 1962 : Age dating of young basalts with the potassium-argon method (in Icelandic). *Physics Laboratory Report, Univ. Iceland*, 9p.
- STEIGER, R. H. and JÄGER E., 1977 : Subcommission on geochronology : convention on the use of decay constants in geo and cosmochronology. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **36**, 359-362.
- STETTLER, A. and BOCHSLER, P., 1979 : He, Ne and Ar compositions in a neutron activated sea-floor basalt glass. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **43**, 157-169.
- TURNER, G., 1968 : The distribution of potassium and argon in chondrites. In "*Origin and Distribution of the Elements*" ed. by L. H. AHRENS, 387-398, Pergamon Press.
- , 1969 : Thermal histories of meteorites by the ^{39}Ar - ^{40}Ar method. In "*Meteorite Research*" ed. by P. M. MILLMAN, 407-417, B. Reidel.
- , 1970a : Thermal histories of meteorites. In "*Paleogeophysics*" ed. by S. K. RUNCORN, 491-502, Academic Press.
- , 1970b : Argon-40/argon-39 dating of lunar rock samples. *Science*, **167**, 466-468.
- , 1971 : Argon 40-argon 39 dating : The optimization of irradiation parameters. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **10**, 227-234.
- , HUNEKE, J. C., PODOSEK, F. A. and WASSERBURG, G. J., 1971 : ^{40}Ar - ^{39}Ar ages and cosmic ray exposure ages of Apollo 14 samples. *Ibid.*, **12**, 19-35.
- , MILLER, J. A. and GRASTY, R. L., 1966 : The thermal history of the Bruderheim meteorite. *Ibid.*, **1**, 155-157.
- WASSERBURG, G. J., HUNEKE, J. C. and PODOSEK, F. A., 1972 : Absolute dating technique. *Science*, **175**, 795.
- YORK, D. HALL, C. M., YANASE, Y., HANES, J. A. and KENYON, W. J., 1981 : ^{40}Ar / ^{39}Ar dating of terrestrial minerals with a continuous laser. *Geophys. Res. Lett.*, **8**, 1136-1138.