## 大分県日田市大山層下部および上部火砕流堆積物の フィッション・トラック年代

長谷 義隆1・檀原 徹2・岩野 英樹2・北林 栄一3・行時 志郎4

(1天草市立御所浦白亜紀資料館 〒866-0313 熊本県天草市御所浦町御所浦4310-5)
(2株式会社京都フィッション・トラック 〒603-8832 京都市北区大宮南田尻町44-4)
(3〒879-4403 大分県玖珠郡玖珠町帆足281-2)
(4日田市立博物館 〒877-0003 大分県日田市上城内町2-6)

# The fission track ages of the lower and upper pyroclastic flow deposits of the Oyama Formation in Hita City, Oita Prefecture

Yoshitaka Hase<sup>1</sup>, Tohru Danhara<sup>2</sup>, Hideki Iwano<sup>2</sup>, Eiichi Kitabayashi<sup>3</sup> and Shiro Yukitoki<sup>4</sup>

(1 Goshoura CretaceousMuseum, 4310-5 Goshoura, Goshoura Town, Amakusa City, Kumamoto 866-0313, Japan)

(2 Kyoto Fission-Track Co. Ltd., 44-4 Minamitajiri-cho, Omiya Kita-ku, Kyoto 603-8832, Japan)

( 3 281-2, Hoashi, Kusu Town, Kusu-gun, Oita Prefecture 879-4403, Japan)

(4 Hita City Museum, 2-6 Kamijonai Town, Hita City, Oita 877-0003)

#### Abstract

The Oyama Formation is distributed through part of Oyama Town of Hita City, Oita Prefecture. The formation is mainly composed of tuffaceous mudstone and diatomaceous siltstone, and stratifies the lower and the upper pyroclastic flow deposits. The upper pyroclastic flow deposit of the Oyama Formation is indicated as having a fission track age of  $0.36\pm0.09$ Ma. The lower pyroclastic flow deposit of the Oyama Formation was indicated at  $0.77\pm0.24$ Ma as the fission track age by Iwauchi and Hase(1989), but is reindicated by the LA-ICP-MS-FT age at  $0.5\pm0.2$ Ma. Also the U-Pb age of the lower pyroclastic flow deposit is indicated at  $1.26\pm0.03$ Ma.

キーワード:大山層,火砕流堆積物,フィッション・トラック年代

#### はじめに

大分県日田市大山町は日田盆地の南部に接し,筑後 川上流部にあたる流域の山間地である.筑後川の支流 として,赤石川,吾々路川があり,筑後川の上流には 松原ダムや下筌ダム,赤石川の上流には大山ダムが建 設されている(図1).大山地域には標高350~650m の火山岩類からなる山々があり,筑後川およびその支 流の赤石川や吾々路川沿いには湖成層(大山層)が分 布する(図2).

2014年7月,日田市立博物館が子供たちを対象にした夏休み地質探検教室を大山町で開いた折,同行していた筆者らの一人北林は吾々路川河床の露頭に偶蹄



図 1 大分県日田市大山地域

類などの足跡化石を発見した.日田市立博物館では 2016年,「大山層足跡化石調査事業」を立ち上げて足 跡化石などについての本格的な調査を始め,その成 果は2018年2月に纏められ(日田市立博物館,2018), その内容は博物館の特別企画展として一般公開された.

上記の調査にあたって,岩内・長谷(1989)の大山 層中に記述されている上部火砕流堆積物(図3,試料 番号 161128-3)について LA-ICP-MS 法によるフィッシ ョン・トラック年代(以下,FT 年代と記す)が測定 されたので,その結果を報告する.また,すでに岩内・ 長谷(1989)により,大山層基底部付近にある下部火 砕流堆積物(図3,試料番号 OT-003)のFT 年代が示 されていたが,近年 FT 年代測定手法が大きく改善さ れたことを受けて,下部火砕流堆積物についても LA-ICP-MS 法による FT 年代の再測定が行なわれたので, その結果を示し,FT 年代値についての認識に関して 考察する.

#### 大山層について

大分県北西部の後期新生代の地質について,層序学 的研究は少なくない.そのうち松本ほか(1972)は首 藤(1953)の玖珠層に関する一連の研究を基に火山岩 類と指交する玖珠盆地地域およびその近傍の堆積岩類 を大きく纏めて「玖珠層群」と呼んだ.これに対して, 長谷・岩内(1985,1990),岩内・長谷(1986,1987)は, これらの地域に分布する各地層は火山活動との関わり において形成された時代と堆積盆地を異にすることで, 層序的に明確に識別されるべきものであることを論じ, それに基づいて中北部九州後期新生代の層序が整理さ れた(長谷・岩内, 1992).

大山地域の地質については、小田(1978)が全般的 な報告を行った.その中で「玖珠層(首藤,1953)に 相当する層と思われる大山層(第三紀層)」として, この水底堆積物を当該地域の地質構成の最下位層準と し(表1),層相と植物化石,魚類化石の産出につい て記述している.岩内・長谷(1989)では大山地域で 筑後川や支流の赤石川,吾々路川の流路沿いに珪藻土 質シルト岩や泥岩,砂岩からなる湖成層の分布を示し た(図2).地形的に下方に湖成層があり,上方に耶 馬溪火砕流堆積物が認められるにも関わらず,その層 序関係は耶馬溪火砕流堆積物が下位,湖成層が上位と 結論づけて,その湖成層を「大山層」と呼んだ.さら に,露頭観察に基づく層序の認定に加えて,大山層の 基底部に挟在する火砕流堆積物(本論での下部火砕流 堆積物)について FT 年代測定が行なわれて 0.77±







#### 表 1 大分県日田郡大山町層序(小田, 1978)

地質時代			火山活動	地層	名	岩石名					
		完新世		冲積	層	砂礫粘土					
		上		後阿蘇段	と丘礫層	砂礫粘土					
	第	更新	山	阿蘇熔結	皆凝灰岩	両輝石安山岩質 角閃石両輝石安山岩質					
新		世	陰	前阿蘇段	と丘礫層	砂礫粘土					
	四		系	耶馬溪熔線	結凝灰岩	両輝石角閃石安山岩質					
生	-	下部	下 部	下 部	下 部		万年山熔岩	五馬熔岩 万年山熔岩	両 輝 石 斜 長 流 紋 岩 黒 雲 母 斜 長 流 紋 岩		
	忙	更新		日向神	▶ 熔 岩	両輝石角閃石安山岩					
		世	一里		第3熔岩	角閃石輝石安山岩					
代	代		系	筑紫熔岩	第2熔岩	両輝石安山岩					
					第1熔岩	両輝石角閃石安山岩					
	第	上	瀬	貫見	熔岩	両輝石安山岩					
	Ξ	部中	戸	松原	熔岩	斜方輝石安山岩					
	紀	- 新 世	内系	大山 (第三編	 層 己層)	<ul> <li>         ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・</li></ul>					

0.24Ma が得られ, 耶馬溪火砕流堆積物の年代(約1Ma) より若い, すなわち層序的に耶馬溪火砕流堆積物が下 位に, 大山層が上位であることがより明確になった (表2).

#### 大山層上部火砕流堆積物のFT 年代

1) 試料

日田市立博物館による「大山層足跡化石調査事業」 に関連して得られた大山層上部火砕流堆積物のFT年 代測定結果を報告する.測定試料は大山町を流れる筑 後川の支流,吾々路川中流部に露出する大山層上部火 砕流堆積物(図3,試料番号161128-3)である.

今回,大山層上部火砕流堆積物(試料番号 161128-3) を対象に, LA-ICP-MS-FT 法 (レーザーアブレーショ ン誘導結合プラズマ質量分析法を用いたFT法)によっ て年代測定を行った(表3). FT 法では, これまでジ ルコン結晶のウラン濃度を測定するために原子炉で熱 中性子照射を行ってきた(原子炉法によるFT法と呼 ぶ). しかし我が国では, 2011年3月の東日本大震災 以降、すべての研究用原子炉が停止されたため、原子 炉を用いた FT 年代測定が困難となった. それに代わ るものとして LA-ICP 質量分析装置を利用して FT 年 代測定を行うとともに、同一結晶でウラン鉛(U-Pb) 年代も平行して測定(ダブル年代測定)し、 試料ジル コン結晶の年代情報を複合的に得ることが出来るよう になった(檀原・岩野, 2013). 今回の測定に用いた手 法では前述のように、FT 年代算出に必要なウラン濃 度測定を岩野ほか (2012) に準拠した LA-ICP-MS 法に よった.

表2 大山地域の層序(岩内・長谷, 1989)



#### 表3 測定条件一覧表(東京大学大学院理学系研究科地殻 化学実験施設のLA-ICP-MSシステム)

試料:	名:161128-3	
1	レーザーアブレーションシ	ステム
	製造元	サイバーレーザー株式会社
	製品名	IFRIT
	レーザー種類	Type-C Ti:S femtosecond laser
	パルス幅	230 fs
	波長	260 nm(THG)
	出力	30%
	ビーム径	15 μm
	周波数	10 Hz
	照射時間	20 s
	ガルバノ光学系	4 spots $ imes$ 50 cycles (200 shots)
	キャリアガス (He)	0.60 L min <sup>-1</sup>
2	ICP 質量分析計	
	製造元	ニューインスツルメンツ社(Nu Instruments)
	製品名	Nu Plasma II
	ICP-MS 種類	マルチコレクター型
	RFパワー	1300 W
	キャリアガス (Ar)	0.88 L min <sup>-1</sup>
	ThO <sup>+</sup> /Th 酸化物生成率	<1%
	データ取得方法	Time-resolved analysis
	データ取得時間	~30 s (~15 s gas blank, ~15 s ablation)
	測定同位体	<sup>202</sup> Hg, <sup>204</sup> Pb, <sup>206</sup> Pb, <sup>207</sup> Pb, <sup>208</sup> Pb, <sup>232</sup> Th, <sup>238</sup> U
	滞留時間	1 s for all
3	スタンダード試料	
	1 次スタンダード (U-Pb)	Nancy 91500 <sup>*1</sup>
	2次スタンダード (U-Pb)	OD-3 *2, 3, 4
	3 次スタンダード (U-Pb)	Fish Canyon Tuff <sup>*5</sup> , Buluk Member Tuff <sup>*5</sup> のどちらか

\* 1, Wiedenbeck et al. (1995) ; \* 2, Iwano et al. (2012) ; \* 3, Iwano et al. (2013); \* 4, Lukács et al. (2015); \* 5, Danhara and Iwano (2013)

#### 2) 測定結果

試料から抽出されたジルコン結晶は 3000 個 /0.30kg と豊富で,かつ見かけ上均質な桃色の自形結晶から構 成され,良好な測定条件を備えていると判断された. 粒子 FT 年代が χ<sup>2</sup> 検定に合格することで,全体とし て単一年代集団に属すとみなすことができる.粒子 毎の年代を表4に,その分布を図4に示す.結果と して全測定粒子の加重平均値 0.36±0.09Ma が FT 年代 値となる.大山層上部火砕流堆積物の測定結果は表 5にまとめられる.

### 大山層下部火砕流堆積物のFT 年代の再測定とU-Pb 年代測定

大山層下部火砕流堆積物(図3のOT-003)について は岩内・長谷(1989)によりそのFT年代は0.77±0.24Ma と報告されていた.したがって,今回大山層上部火 砕流堆積物の年代が求められたことにより,大山層 の形成についての年代的な理解が確立したと考えら れた.しかし,FT年代測定はその手法の改善により 測定年によって異なる手法での測定結果が示されて いることで,年代値のみによる単純な比較は行えな い.そのため,従前の手法によって得られていた大 山層下部火砕流堆積物の年代については,改善され てきた今日の新しい手法での再測定が必要になる. 岩内・長谷(1989)で示された大山層下部火砕流堆 積物についてLA-ICP-MS 法によるFT年代の再測定 および U-Pb 年代測定が行われた.

#### 1) 試料

測定試料は岩内・長谷(1989)の大山層下部火砕 流堆積物(図3,試料番号 OT-003:採取地は日田市 大山町綿打)で,測定値0.77±0.24Maを示した試料の 残部であり,それを使用して FT および U-Pb ダブル 年代測定を実施した.試料中のジルコンは細粒なも のが多く,結果として1989年当時より測定条件が低 下したことは否めなかった.

#### 2) LA-ICP-MS-FT 年代測定結果

測定結果としては、測定した粒子28個のうち、ゼロ・トラック粒子は75%に及ぶため(表6,図5)、粒子 データの統計的な検討は効果を発揮できない.加え て併行して実施された U-Pb 粒子年代データからは、 測定ジルコンの大部分は外来結晶の可能性が示唆さ れた.それでも全測定粒子28個の粒子 FT データが $\chi^2$ 検定に合格することからすべてリセットしたものと みなされる.28粒子の加重平均値0.5±0.2Maをもっ て年代値とした(表7).この値の誤差は大きく、かつ 自発 FT 総数が7本で有効数字は一桁である.しかし、 後述する U-Pb 粒子年代で、ディスコーダントながら

表4	大山層上部火砕流堆積物中のジルコン粒子毎の FT	年代値
----	--------------------------	-----

Sample Name	:上部火砕流堆積物	LA-ICP-MS-FT	age(Ma)

Grain Number	Grain age Error 1				
no.1	0.69	0.69			
no.2	1.23	0.88			
no.3	0.63	0.63			
no.4	1.01	0.72			
no.5	0.00	#DIV/0!			
no.6	0.00	#DIV/0!			
no.7	0.00	#DIV/0!			
no.8	0.97	0.97			
no.9	0.00	#DIV/0!			
no.10	0.00	#DIV/0!			
no.11	0.59	0.59			
no.12	0.00	#DIV/0!			
no.13	0.98	0.70			
no.14	0.63	0.63			
no.15	0.00	#DIV/0!			
no.16	1.94	1.95			
no.17	0.00	#DIV/0!			
no.18	0.00	#DIV/0!			
no.19	1.34	1.34			
no.20	0.00	#DIV/0!			
no.21	0.00	#DIV/0!			
no.22	0.00	#DIV/0!			
no.23	0.91	0.91			
no.24	0.00	#DIV/0!			
no.25	0.00	#DIV/0!			
no.26	0.00	#DIV/0!			
no.27	0.00	#DIV/0!			
no.28	0.00	#DIV/0!			
no.29	0.00	#DIV/0!			
N0.30	0.87	0.62			
Weighted mean	0.36 ±	0.09			



#### 表5 大山層上部火砕流堆積物のFT年代測定結果

試料名	(1) 測定 鉱物	(2) 測定 方法	結晶数 (個)	枚 自発核分 <sup> ク</sup> s (cm <sup>-2</sup> )	裂飛跡 N s	し約 ク <sub>リ</sub> (cm <sup>-2</sup> )	計数 N u	U ス ()	(3), (4) タンダー クustd (10 <sup>11</sup> cm	- ド計数 N ustd <sup>-2</sup> )	Zeta 値 (cm²• yr <sup>-1</sup> )	(5) 相関 係数 r	(6)	ウラン 濃度 (ppm)	(7), (8), (9) 年代値(Ma) Age ±1 <i>σ</i>
- 大山層上部火砕流 堆積物 (161128-3	<sup>č</sup> Zr	Ext.S	30	1.772×10 <sup>4</sup>	16	3.658×10 <sup>1</sup>	<sup>1</sup> 330,334	4,555	1.735	1,225,889	42.8±3.3	0.001	51	160	0.36±0.09
<ul> <li>(1)測定鉱物</li> <li>(2)測定方法</li> <li>(3)<sup>238</sup>U濃度</li> <li>(4)レーザー</li> <li>(5)r: P<sub>s</sub> と</li> </ul>	Zr: :LA-I ,U-PI ビーム 。 。P <sub>U</sub> の	ジルコ ICP-MS- b 年代源 A径:15 D相関係	ン FT(内 り定用標 5 µ m × 4 読数	部面:IntS, 夕 準試料:915 4 点 (Galvano	↓部面: 00(Zr), )	: Ext.S) , Durango( <i>i</i>	(6) (7) (8) (9)	Pr(χ <sup>2</sup> 年代値 誤差: <sup>238</sup> Uの	:χ <sup>2</sup> 值 :T=(1/ σ <sub>T</sub> =T× 9全壊変短	の自由度 λ <sub>D</sub> )・1n[ [1/ΣNs+ 定数:λ <sub>D</sub>	(n-1) $\mathcal{O}\chi^2$ $1 + \lambda_D \cdot \varepsilon \cdot$ $1/\Sigma Nu + 1/2$ =1.55125×1	分布にる ( ρ <sub>s</sub> /ρ <sub>t</sub> Σ Nustd 0 <sup>10</sup> yr <sup>-1</sup>	おける上側 <sub>u</sub> )・ <sub>クust</sub> l+( <i>σε / ε</i> ) ı	则確率(( <sub>d</sub> ](Int.S )2] <sup>1/2</sup>	Galbraith,1981) 5 は ρ <sub>s</sub> ×1/2)

#### 表6 大山層下部火砕流堆積物のジルコン粒子毎のFTおよびU-Pb年代値

Sample Name :	下部火砕流堆積物(0T	-003) FT age(Ma)		U-Pb age(Ma)			
Spot Number	Grain Number	Grain age Error 1 $\sigma$	<sup>238</sup> U- Error 2 <i>σ</i>	<sup>235</sup> U- <sup>207</sup> Pb Error 2 <i>σ</i>			
no.1	no.2	0.00 ± #DIV/0!	1.47 ± 0.03	1.88 ± 0.22			
no.2	no.11	$1.54 \pm 1.54$	$1.37 \pm 0.03$	$1.48 \pm 0.18$			
no.3	no.13	$0.00 \pm \#DIV/0!$	$1.62 \pm 0.04$	4.51 ± 0.38			
no.4	no.16	$0.00 \pm \#DIV/0!$	$1.50 \pm 0.03$	1.77 ± 0.22			
no.5	no.19	0.00 ± #DIV/0!	$1.45 \pm 0.04$	2.18 ± 0.27			
no.6	no.20	0.00 ± #DIV/0!	1.44 ± 0.04	1.27 ± 0.19			
no.7	no.21	0.00 ± #DIV/0!	$1.42 \pm 0.03$	$2.05 \pm 0.25$			
no.8	no.22	1.73 ± 1.74	$1.35 \pm 0.03$	$1.85 \pm 0.19$			
no.9	no.23	$0.00 \pm \#DIV/0!$	$1.22 \pm 0.03$	1.29 ± 0.21			
no.10	no.24	<u>1.14 ± 1.14</u>	1.41 ± 0.02	1.26 ± 0.12			
no.11	no.25	0.00 ± #DIV/0!	$1.30 \pm 0.03$	1.46 ± 0.21			
no.12	no.26	$0.00 \pm \#DIV/0!$	$1.17 \pm 0.03$	$1.50 \pm 0.21$			
no.13	no.27	0.00 ± #DIV/0!	1.69 ± 0.04	$1.55 \pm 0.21$			
no.14	no.28	$0.00 \pm \#DIV/0!$	$0.61 \pm 0.02$	1.26 ± 0.19			
no.15	no.30	$0.00 \pm \#DIV/0!$	1.58 ± 0.04	2.43 ± 0.30			
no.16	no.31	0.00 ± #DIV/0!	$1.45 \pm 0.04$	3.44 ± 0.31			
no.17	no.32	$2.71 \pm 2.71$	$1.43 \pm 0.03$	$1.56 \pm 0.17$			
no.18	no.33	$0.00 \pm \#DIV/0!$	$1.29 \pm 0.03$	$1.66 \pm 0.18$			
no.19	no.34	$0.00 \pm \#DIV/0!$	$1.49 \pm 0.04$	1.54 ± 0.21			
no.20	no.35	$0.00 \pm \# DIV/0!$	$1.35 \pm 0.03$	2.04 ± 0.22			
no.21	no.36	3.21 ± 3.22	$1.50 \pm 0.03$	$1.21 \pm 0.16$			
no.22	no.37	$0.00 \pm \#DIV/0!$	$1.42 \pm 0.04$	$1.36 \pm 0.20$			
no.23	no.38	$2.55 \pm 2.55$	$1.33 \pm 0.03$	1.56 ± 0.21			
no.24	no.39	$0.00 \pm \#DIV/0!$	$1.39 \pm 0.03$	1.45 ± 0.19			
no.25	no.40	$0.00 \pm \# DIV/0!$	$1.41 \pm 0.03$	<u>1.49 ± 0.17</u>			
no.26	no.41	$0.00 \pm \#DIV/0!$	$1.30 \pm 0.04$	$1.41 \pm 0.24$			
no.27	no.42	$0.00 \pm \#DIV/0!$	1.24 ± 0.03	$1.75 \pm 0.22$			
no.28	no.43	$1.55 \pm 1.55$	1.46 ± 0.03	1.98 ± 0.21			

#### 表7 大山層下部火砕流堆積物の再測定によるFT年代

	(1)	(2)						(3), (4	)		(5)	(6)		(7), (8), (9)	
討料名	測定 注	測定 約	詰晶数	自発核分	裂飛跡	し総計	†数	U スタン 🤅	ズード計数	Zeta 値	相関	X <sup>2</sup>	ウラン	年代値	U-Pb 年代値
	鉱物じ	方法	(個)	Ps -2	Ns	$\rho_{\rm U}$	Nu	Pusto	hustd Nustd		係数	検定	濃度	(Ma)	(Ma)
				(cm <sup>-</sup> )		(cm <sup>-2</sup> )	-	(×10'²c	m <sup></sup> 2 )	(cm <sup>2</sup> • yr <sup>-1</sup> )	r	Pr $(\chi^2)$	(ppm)	Age ±1	$\sigma$ Age $\pm 2\sigma$
大山層下部火砕流 堆積物 (OT-003) (再測定)	Zr E	xt.S	28 9	9.94×10 <sup>3</sup>	7 1.	64×10 <sup>12</sup>	1,097,66	2,069 1.513	14,547,219	49.3±2.4	0.602	68	80.4	0.5±0.2	1.29±0.02 (参考)
(1)測定鉱物	] Zr:	ジルコ	コン					(6) $Pr(\chi^2)$	:χ <sup>2</sup> 値の自F	由度(n-1)の	Dχ²5	う 布にお	ける上側	J確率(Gal	braith,1981)
(2) 測定方法	: LA-	ICP-M	S-FT (I	内部面:lr	ntS, 外語	部面:Ext.S	.)	(7)年代値	$: T=(1/\lambda_D)$	• 1n[1+ $\lambda_{\rm D}$	• E • (	ρ <sub>s</sub> /ρ <sub>u</sub> )	• pusto	ៀ (Int.S ដេ	: ρ.×1/2)
(3) <sup>23 8</sup> U 濃度	, U-P	b 年代	測定用	標準試料	: 9150	0(Zr), Dura	ngo(Ap)	(8)誤差:。	σ =T×[1/Σ	$Ns + 1/\Sigma Nu$	+1/Σ	Nustd+	$(\sigma_{\varepsilon}/\varepsilon)$	2 ]1/2	3
(4) レーザー	ビーム	ム径:1	15 µ m 2	×4点(Ga	lvano)			(0) <sup>238</sup> 110	「 ・ △描亦宁粉・	)11111	$V = \sqrt{10^2}$	-101	,		
(5)r: P。と	P. 0	の相関	係数					(9) 00	土塚文足奴・	ND -1.3312	23 ~ 10	yı			
	U														



図5 大山層下部火砕流堆積物のジルコン粒子毎の FT および U-Pb 年代値の分布

<sup>206</sup> Pb/<sup>238</sup> U 年代が 0.61±0.02Ma を示す No.28 粒子(表 6, 図 5 の Spot no.14)を含む事実が見いだされた.この 値は FT 値と誤差内で一致するため、本試料は 0.6±α の生成年代(三噴出年代)をもつ可能性がある.なお、 この値は従前の FT 年代値 0.77±0.24Ma とも誤差内で 一致する.

#### 3) U-Pb年代測定結果

測定結果として、コンコーダント粒子比率は 40%と 低いが、<sup>206</sup> Pb/<sup>238</sup> U 年代は大部分が 1.22-1.69Ma 間に収 まる.しかし、併行して得られた FT 年代と比較する と明瞭に古い値を示す.この事実から測定ジルコン粒 子の大部分は噴出年代を示すのではなく、結晶生成年 代の古い外来結晶と考えられる.ただし、上記のよう に No.28 (Spot no. 14)結晶のみは 0.61Ma (表 6, 図 5) と若い<sup>206</sup> Pb/<sup>238</sup> U 年代を示し、0.6Ma±程度の若い年代 をもつ"本質結晶"が微量含まれている可能性を示唆 する.結論として U-Pb 年代データからは本試料の積 極的な年代情報は得られなかったが、FT 年代を解釈 する上で、参考情報が提供されたと評価できる.すな わち、マグマ生成後のジルコン結晶の晶出は約 130 万 年前で、その火砕流としての噴出は 70 ~ 60 万年前と の解釈が可能である.

#### 過去30年間におけるFT法の改良の歴史

今回の測定結果に基づく大山層下部火砕流堆積物の 噴出年代が得られたことから,約30年前に測定され た岩内・長谷 (1989) の測定値との関わりを考察する には、この間に起きた FT 法の技術的、方法論的な大 きな改良の歴史を知る必要がある.FT 年代測定の原 理は、鉱物中に含まれる放射性元素の崩壊に伴うト ラックを計数することで鉱物の年代を知ることである が、これまでトラックの把握技術や計数の信頼性につ いての改良への努力が行われてきた.その内容につ いての大事なポイントは以下の3点である.最初に ゼータ較正法の採用、次に<sup>238</sup>Uの壊変定数の決定な どの理論的基盤が確定したこと、最後に<sup>238</sup>U 濃度定 量方法が原子炉から LA-ICP-MS 装置の利用へと変わ り、U-Pb 年代測定も併用 (double dating) できるように なったことである.それぞれについて簡単に説明する.

ゼータ較正法とは、年代標準試料を基準とした相対 測定法のことで、Hurford(1990a,b)により国際地質学 連合の年代小委員会から全世界に向けて勧告されたも のである.そのため、1990年以降は、ゼータ較正を 行わないFT年代値は、査読論文として公表できない ことになった.したがって、岩内・長谷(1989)の測定 値は、ゼータ較正以前の値のため、規格外という扱い になる.

このゼータ較正法の導入によりFT法は熱年代学の 応用分野で飛躍的な発展を遂げたが、1990~2000年代 にかけて理論面で主に3つの画期的な進歩があった。 1つ目は、原子炉での熱中性子線量の正確な定量であ り、2つ目は異なる鉱物やディテクターでのFTの検 出効率の仕組みが分かるようになって、再エッチ法や 外部ディテクター法といった測定手法を用いても,統 一的な年代算出式で年代値が導出されるようになった ことである.3つ目は長年異なる値を支持する2派によ って分かれていたが,<sup>238</sup>Uの壊変定数が新たに測定さ れ,年代算定式の理論的整備によって,壊変定数の一 本化が広く受け入れられることになったことである.

FT 年代測定の理論的基盤が確立した結果,原子炉 法から LA-ICP-MS 法への移行の準備が整った.そこ で国際的にも原子炉を必要としない FT 法の開発が急 ピッチで進められ,そんな中で我が国では 2011 年 3 月の東日本大震災が発生し,LA-ICP-MS-FT 法が一気 に実現化された.

以上のようにこの 30 年間は FT 法の再構築の期間 といってもよく、本論のようにそれ以前の測定値と再 構築後の手法による測定値を比較することにより、従 前の測定結果が「規格外」ということであっても、原 理的には意味のある値であり、改めて下部火砕流堆積 物の FT 年代値としての位置付けが明確になったと言 える.

#### おわりに

大分県大山層中の上部と下部の火砕流堆積物につい て新たな手法による FT 年代が測られた.その結果, 上部火砕流堆積物については 0.36±0.09Ma が得られ, また,下部火砕流堆積物については 0.5±0.2Ma が得ら れた.特に下部火砕流堆積物については今回,0.77± 0.24Ma という値が示されていた従前の測定試料につ いての再測定が行われ,取り扱われた手法の違いによ る測定値についての検証が行われて,結果として誤差 範囲で重複したことにより,測定手法の改良過程にお ける FT 年代値の位置付けがなされたと考えられる.

#### 引用文献

- 檀原 徹・岩野英樹 (2013): 独立した FT 年代測定の 確立—LA-ICPMS-FT 法に向けてのここ 10 年間の 歩みー.月刊地球 / 号外 No. 62, 111-116.
- Danhara, T. and Iwano, H. (2013) : A review of the present state of absolute calibration for zircon fission track geochronometry using the external detector method. Island Arc. **22**, 264-279.
- 長谷義隆・岩内明子(1985):中・北部九州後期新生 代の植生と古環境―その1 阿蘇野地域―.地質 学雑誌,91,753-770.
- 長谷義隆・岩内明子(1990):大分県玖珠盆地北部の 上部新生界―その1 層序―. 熊本大学教養部紀

要,自然科学編,**25**,87-112.

- 長谷義隆・岩内明子(1992):中部九州の湖成層を含む上部新生界の対比一熊本・大分地域一. 熊本 大学教養部紀要,自然科学編, 27,69-95.
- 日田市立博物館(2018):大山層足跡化石発掘調査報告書.日田市立博物館,65p.
- Hurford, A. J.(1990a) : Standardization of fission track dating calibration: Recommendation by the Fission Track Working Group of the I. U. G. S. Subcommission of Geochronology. Chem. Geol., 80, 171-178.
- Hurford, A. J.(1990b) : International Union of Geological Sciences Subcommission on Geochronology recommendation for the standardization of fission track dating calibration and data reporting. Nucl. Tracks Radiat. Meas. 17, 233-236.
- 岩内明子・長谷義隆(1986):中・北部九州後期新生 代の植生と古環境―その2 安心院-院内地域 (上部鮮新統)-. 地質学雑誌, **92**, 591-598.
- 岩内明子・長谷義隆(1987):中・北部九州後期新生 代の植生と古環境―その3 玖珠盆地南部(下 部・中部更新統)-. 地質学雑誌, 93,469-489.
- 岩内明子・長谷義隆(1989):中・北部九州後期新生 代の植生と古環境―その4 大山・杖立地域(下 部更新統)―. 地質学雑誌, **95**, 1, 63-75.
- 岩野英樹・折橋裕二・檀原 徹・平田岳史・小笠原 正継(2012):同一ジルコン結晶を用いたフィッ ション・トラックと U-Pb ダブル年代測定法の評 価―島根県川本花崗閃緑岩の均質ジルコンを用 いてー.地質学雑誌, 118,365-375.
- 岩野英樹・檀原 徹・坂田周平・平田岳史(2013): LA-ICP-MS 法によるウラン定量と第四紀ジルコ ン年代測定.日本地質学会第120回学術大会(東 北大学), R22-P-14.
- Lukacs, R., Harangi, S., Backmann, O., Guillong, M., Danisik, M., Buret, Y., von Quadt, A., Dunkl, I., Fodor, L., Sliwinski, J., Soos, I., Szepesi, J. (2015): Zircon geochronology and geochemistry to constrain the youngest eruption events and magma evolution of the Mid-Miocene ignimbrite flare-up in the Pannonian Basin, eastern central Europe. Contrib. Mineral. Petrol. 170, 52.
- 松本徰夫・宮地貞憲・宮地六美・西田民雄(1972): 大分県玖珠川流域の火山地質.九州大学教養部 地学研究報告, 17,2-24.
- 小田 実(1978):大分県日田郡大山町の地質.昭和

52年度国内留学研究報告書, 49p.

- 首藤次男(1953):豊州累層群の地史学的研究(I). 地質学雑誌, **59**, 225-240.
- Wiedenbeck, M., Alle, P., Corfu, F. et al. (1995): Three natural zircon standards for U-Th-Pb, Lu-Hf, Trace element and REE analyses. Geostandards News letter. **19**, 1-23.

(2019年2月1日受理)