

5. 光ルミネッセンス法による忠類晩成地点における堆積物の年代推定

Estimation of deposition ages of sediments by optically stimulated luminescence
at Cyurui- Bansei, Hokkaido, Japan

下岡順直*・長友恒人**

Yorinao Shitaoka and Tsuneto Nagatomo

1. はじめに

北海道中川郡幕別町忠類晩成において2007年10月に行われたトレンチ調査の際、調査地点の水成堆積物を採取して光ルミネッセンス (optically stimulated luminescence: OSL) 法 (Huntly *et al.*, 1985) による年代測定を行った。OSL法は、鉱物 (石英または長石) が太陽光に露光後に堆積 (埋没) してから現在までに吸収した自然放射線量から年代を推定する方法であり、レスなど風成堆積物や湖底堆積層など水成堆積物を対象とする年代推定が可能であることから、近年測定例が増えてきている (例えば、下岡ほか, 2008; Sugisaki *et al.*, 2009; 幡谷・白井, 2003)。

今回のOSL測定では、1969年に発見されたナウマンゾウ化石骨を包含していた第三泥炭層の年代を推定することを目的として、当該層のほかに3層から試料を採取して測定した。

2. 試料について

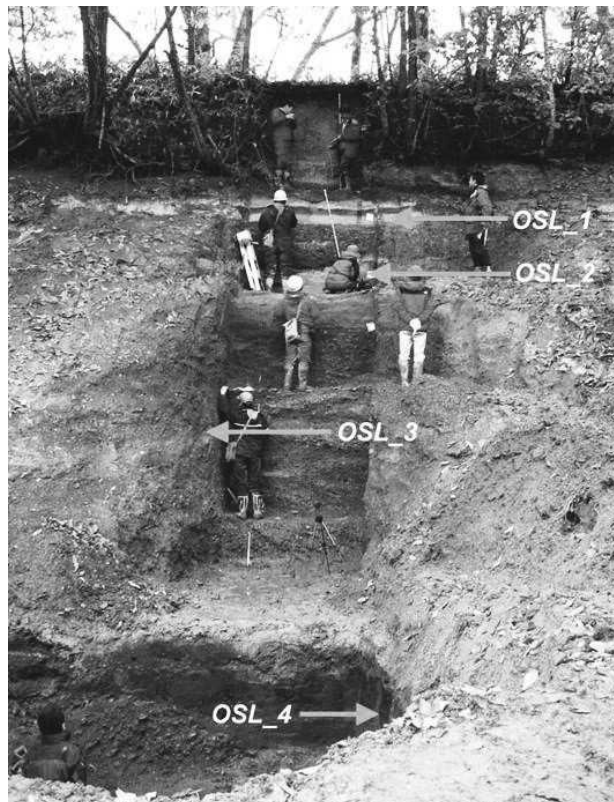
(1) 試料採取

試料は、表層下約3m付近 (第0泥炭層直下)、表層下約4m付近、表層下約6.8m付近および表層下約8.5m付近 (第三泥炭層) から採取し、試料名を上層からOSL_1, OSL_2, OSL_3 および OSL_4 とした (第5-1図)。

試料採取においては、採取した試料が露光しないようにするために、直径50mm、長さ30cmの塩化ビニール製パイプをトレンチ壁に打ち込むか、暗幕で遮光した状態で、露光している表面を数cm程度削り落とした後にその内部の試料を採取した。

(2) 試料処理

石英を測定試料とする青色光励起ルミネッセンス (blue-light stimulated luminescence: BLSL) 法でOSL測定を行うために、10x程度の暗赤色灯下において以下の手順で試料処理を行った。まず、試料を水中に入れて土塊を手でほぐして砕きながら肉眼で確認できる有機物を除去した。攪



第5-1図 OSL測定用試料の採取位置。
正確な採取位置は、第1-3図を参照。

拌後3分間放置して浮遊物と沈殿物に分離し、浮遊物を10%の過酸化水素水で16時間処理を行って微細な有機物を溶解させた。次に、アセトン中で試料を懸濁させ、沈降法により試料の粒径を4~10µm程度に揃えた。それを20%の塩酸溶液で2時間処理を行い、炭酸塩鉱物を除去した。最後に、20%のケイフッ化水素酸溶液を用いて3日間処理を3回行った。ケイフッ化水素酸処理後、試料を赤外光励起ルミネッセンス (infra-red stimulated luminescence: IRSL) 測定を行い、長石からのIRSL信号が確認された場合は再度ケイフッ化水素酸処理を行って、長石を完全に溶解除去した。

*金沢大学環日本海域環境研究センター

Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University

**奈良教育大学教育学部

Faculty of Education, Nara University of Education

3. 測定

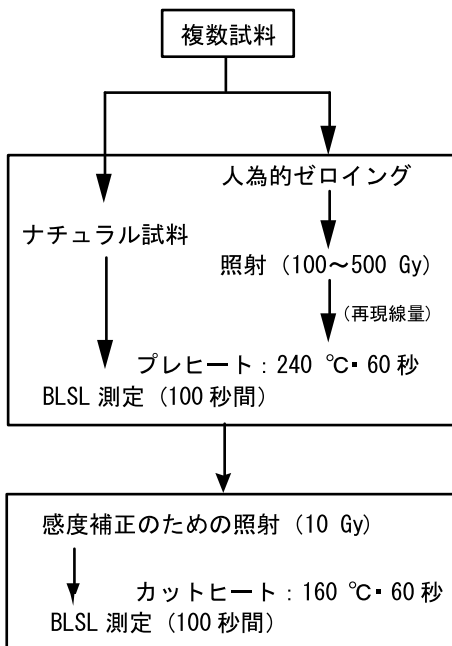
(1) 蓄積線量評価

蓄積線量評価のBLSL測定は、TL/OSL自動測定装置(NRL-99-OSTL)(長友ほか, 2007)を用い、上述の処理をした試料(ナチュラル試料)とナチュラル試料を人為的にゼロイングした複数の試料を用いる多試料再現法(Aitken, 1985)により、第5-2図に示した測定フローチャートにしたがって行った。

測定は、青色LED(日亜化学製:励起光波長 470 ± 40 nm, 励起光強度 18.1 mW/cm²)で励起し、発生したルミネッセンスを透過波長 $250 \sim 380$ nmの光学フィルター(ネオアーク社製:S-UV)を使用して検出した。測定直前の加熱処理(プレヒート)は、 240°C で60秒間とし、測定温度 120°C で100秒間測定した(下岡・長友, 2001)。再現生長曲線(BLSL強度の線量依存性)を得るための測定は、ナチュラル試料を人工太陽光源(セリック社製SOLAX XC-500)により 60 klxで8時間露光することにより人為的にゼロイングした後、校正された⁶⁰Co線源(線量率 0.20 Gy/min)で $100, 200, 300, 400, 500$ Gyの再現線量を人工照射してBLSL測定を行った。各線量の測定後に装置に装着した⁹⁰Sr線源(線量率 4.8 Gy/min)で 10 Gyの基準線量を照射して、人為的ゼロイングに起因する感度変化や試料皿ごとのばらつきを補正するためのBLSL測定(感度補正測定)を行った。その場合、感度補正用測定の際のプレヒート(カットヒート)は 160°C で60秒間とした。

(2) 年間線量評価

年間線量の評価は、 γ 線スペクトロメトリーによる間接測定法(長友, 1991)で行った。試料処理をしていない採取試料を乾燥させた後、 75 μm 程度に粉碎して、 30 gを秤量してプラスチックケースに封入した後、無酸素銅と低バックグラウンド鉛で遮蔽した高純度Ge検出器を用いて試料中の放射



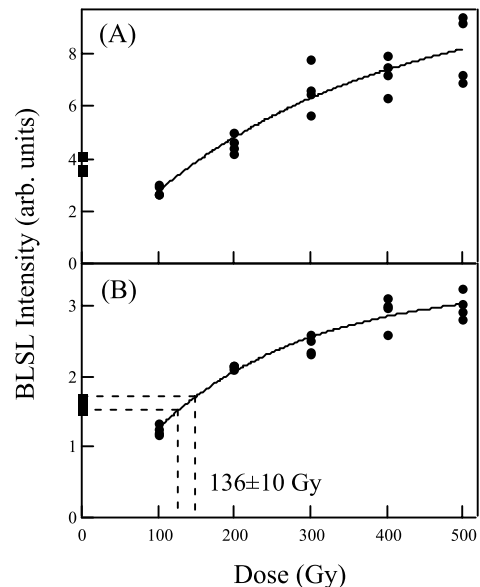
第5-2図 BLSL測定のプロフローチャート。

性元素U, Th, ⁴⁰Kの γ 線を計測した。 γ 線の計測率からU, Th, Kの含有率を決定するために、産業技術総合研究所の岩石標準試料(Ando *et al.*, 1987) JG-1a, JR-1, JB-2, JB-3, JA-3で作成した検量線を用い、Adamiec and Aitken (1998)による換算式により放射性元素含有率から年間 α 線量, 年間 β 線量, 年間 γ 線量を計算した。換算式によって年間線量を計算するにあたって、含水率補正(Zimmerman, 1971)を行った。補正は、採取した試料の乾燥重量に対する水分量の比を含水率として行ったが、試料を採取した層が堆積した後、現在までに含水率の変化があったことは明らかであり、含水率が一定ではなかったことによる年間線量評価の不確かさと、その結果として現れる年代の不確かさについては結果と考察の項で詳述する。 α 線のルミネッセンス効率はZimmerman (1971), Lang *et al.* (2003)や七山ほか (2009)を参考にして10%とし、年間宇宙線量は試料採取地点の緯度と各試料の埋没深度を考慮してPrescott and Hutton (1994)の近似式を参考に $0.04 \sim 0.09$ ($\pm 5\%$ mGy/a)と仮定した。

4. 結果と考察

(1) 蓄積線量評価

測定したBLSL減衰曲線の測定開始後0~1秒を積算してBLSL強度とした。ナチュラル試料測定および再現線量測定の際のBLSL強度は感度補正測定のBLSL減衰曲線で規格化(感度補正)して解析用のBLSL強度とした。第5-3図はOSL_1試料を例として、感度補正前後の生長曲線を示したものである。感度補正をしていないBLSL強度(第5-3図(A))に対して感度補正をした生長曲線(第5-3図(B))は、各線量でのばらつきが小さくなっており、生長曲線を指数関数でフィッティングした場合の相関関数も向上した。蓄積線量は、感度補正したナチュラル試料のBLSL強度を生長曲線に内挿して求めた。



第5-3図 OSL_1の生長曲線(感度補正前(A)と感度補正後(B))。

(2) 年間線量評価

各試料の放射性元素含有率と含水率を第5-1表にまとめた。これに基づいて評価した年間α線量、年間β線量、年間γ線量と年間宇宙線量、およびそれらの和である総年間線量を第5-2表に示した。第5-2表の年間線量は現在の含水率を用いて補正を行った値であるが、実際には各層が離水するまでの水分は飽和状態であったと考えられ、第5-2表に示した年間線量は過大に評価されている可能性がある。そこで、乾燥させた試料50gに対して水200mlを含ませて攪拌し、試料が完全に沈殿するまでそのままの状態に放置して、その状態で試料が吸収した水分重量と乾燥した試料重量の比を飽和含水率とした場合に、年間線量がどのように変化するかを試算した。

試料OSL_1, OSL_2, OSL_3, OSL_4の飽和含水率はそれぞれ87%, 69%, 59%, 122%であり、それに対応する年間線量は第5-3表に示したとおりである。各層が離水した時期は不明であるが、離水してから現在までの含水率に大きな変動がなかったとすれば、年間線量は現在の含水率に対応する第5-2表に示した値と第5-3表に示した値の間にあることになる。

年間宇宙線量は、記述したように試料採取地点の緯度と現在の埋没深度を考慮してPrescott and Hutton (1994)の近似式から求めた値である。各層の地表面からの深度は埋没後次第に大きくなるが、年間宇宙線量が総年間線量に占める割合は数%であって、経年変化の補正をすることによる総年間線量への影響は小さいので、ここでは補正を行わなかった。

(3) ルミネッセンス年代

各試料のルミネッセンス年代を第5-4表に示した。ルミネッセンス年代は層序とほぼ整合性のある結果であるが、OSL_2の年代値は、上層にあたるOSL_1の年代値と比較して同じ年代値となった。その原因として、OSL_2試料の含水率が過小評価されている、あるいは上層からの攪乱が生じたため、などが考えられる。風成堆積物の場合には、生物攪乱などによって層準に対して年代値が逆転することもある(長友ほか, 2008)が、今回測定対象とした水成堆積物についても上記のような現象が生じる可能性が考えられる。現時点では、OSL_1とOSL_2の年代値の逆転に関して、上記の要因の中で何が主要な原因であるかを確定することはできないが、含水率の評価がその原因として大きく関係していると考えるのが妥当であろう。

飽和含水率を仮定した場合の年間線量については既述のとおり(第5-3表)であるが、各層が堆積後最近まで飽和含水率を維持していたとすれば、ルミネッセンス年代は第5-3表に示した値になる。ナウマンゾウ化石骨産出層準であるOSL_4の離水時期は不明であるが、仮に10~100kaに離水した後、最近まで含水率に変化がないとした場合に堆積した年代の試算を第5-4図に示した。それによれば、10kaに離水したとすれば堆積した年代は176kaとなり、50kaとすれば堆積した年代は148kaとなった。

以上より、ナウマンゾウ化石骨産出層準である第三泥炭層

(OSL_4)のルミネッセンス年代は110~180kaと推定されるが、その年代を絞り込むためには含水率の経年変化、とくに離水した時期についての情報が不可欠である。

	U (ppm)	Th (ppm)	K (%)	含水率 (%)
OSL_1	1.91±0.12	5.37±0.43	1.33±0.08	36
OSL_2	1.95±0.12	5.99±0.42	1.58±0.09	44
OSL_3	1.66±0.11	5.47±0.40	1.81±0.11	29
OSL_4	1.81±0.11	5.99±0.38	1.60±0.10	37

第5-1表 各試料の放射性元素含有率と含水率。

	年間α線量 (mGy/a)	年間β線量 (mGy/a)	年間γ線量 (mGy/a)	年間宇宙線量 (mGy/a)	総年間線量 (mGy/a)
OSL_1	0.50±0.02	1.01±0.05	0.56±0.02	0.09±0.004	2.15±0.06
OSL_2	0.49±0.02	1.08±0.05	0.59±0.02	0.07±0.004	2.24±0.06
OSL_3	0.50±0.02	1.32±0.06	0.66±0.03	0.05±0.002	2.53±0.07
OSL_4	0.51±0.02	1.15±0.05	0.62±0.02	0.04±0.002	2.32±0.06

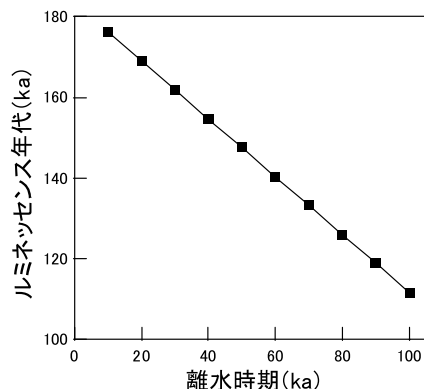
第5-2表 各試料の年間線量。

	飽和含水率 (%)	年間線量 (mGy/a)	ルミネッセンス年代 (ka)
OSL_1	87	1.52±0.04	90±7
OSL_2	69	1.88±0.05	75±6
OSL_3	59	1.99±0.06	112±18
OSL_4	122	1.35±0.04	183±43

第5-3表 飽和含水率を基準とした年間線量とルミネッセンス年代の試算。

	蓄積線量 (Gy)	年間線量 (mGy/a)	ルミネッセンス年代 (ka)
OSL_1	136±10	2.15±0.06	63±5
OSL_2	142±11	2.24±0.06	63±5
OSL_3	222±36	2.53±0.07	88±14
OSL_4	248±58	2.32±0.06	107±25

第5-4表 ルミネッセンス年代測定結果。



第5-4図 離水時期を10~100kaと推定した場合にOSL_4が堆積した年代の試算。

引用文献

- Adamiec, G. and Aitken, M.J., 1998, Dose - rate conversion factors: update. *Ancient TL*, 16, 37-50.
- Aitken, M.J., 1985, *Thermoluminescence dating*. 359p, Academic Press.
- Ando, A., Mita, N. and Terashima, S., 1987, 1986 values for fifteen GSJ rock reference samples, "igneous rock series". *Geostandards Newsletter*, 11, 159-166.
- 幡谷竜太・白井正明, 2003, 浅海成堆積物のOSL年代測定. *第四紀研究*, 42, 347-360.
- Huntley, D.J., Godfrey-Smith, D. and Thewalt, M.L.W., 1985, Optical dating of sediments. *Nature*, 313, 105-107.
- Lang, A., Hatté, C., Rousseau, D.-D., Antoine, P., Fontugne, Zóler, M. L. and Hambach, U., 2003, High-resolution chronologies for loess: comparing AMS ^{14}C and optical dating results. *Quaternary Science Review*, 22, 953-959.
- 長友恒人, 1991, TLおよびESR年代測定法のための年間線量率の測定. *月刊地球*, 13, 249-253.
- 長友恒人・下岡順直・國木田大, 2007, ロシア沿海州新石器遺跡堆積物の赤外光ルミネッセンス (IRSL) 年代測定. *奈良教育大学紀要*, 56, 1-6.
- 長友恒人・下岡順直・小畑直也, 2008, 考古遺跡を形成する堆積物の光ルミネッセンス (OSL) 年代測定—多試料法と単試料法による蓄積線量評価の比較—. *日本文化財科学会第25回大会研究発表要旨集*, 132-133.
- 七山 太・長友恒人・下岡順直・須崎憲一・古川竜太・重野聖之・石井正之・猪熊樹人・北沢俊幸・中川 充, 2009, ルミネッセンス法を用いた津波堆積物の年代測定の試み: 北海道東部, 根室沿岸低地の試料を例として. *地質学雑誌*, 115, 249-260.
- Prescott, J.R. and Hutton, J.T., 1994, Cosmic ray contributions to dose rates for luminescence and ESR dating: Large depths and long-term time variations. *Radiation measurements*, 23, 497-500.
- 下岡順直・長友恒人, 2001, 石英・長石を試料とした光励起ルミネッセンス年代測定法の基礎研究. *RADIOISOTOPES*, 50, 381-389.
- 下岡順直・長友恒人・小畑直也, 2008, ルミネッセンス法を用いた原田遺跡堆積物の年代測定. *原田遺跡(4)*, 尾原ダム建設に伴う埋蔵文化財発掘調査報告書, 12, 155-161.
- Sugisaki, S., Buylaert, J.P., Murray, A., Tsukamoto, S., Nogi, Y., Miura, H., Sakai, S., Iijima, K. and Sakamoto, T., 2009, High Resolution OSL dating back to MIS 5e in the central Sea of Okhotsk. *ESR応用計測*, 25, 41.
- Zimmerman, D.W., 1971, Thermoluminescence dating using fine grains from pottery. *Archaeometry*, 13, 29-52.