

OSL法ではどこまで古い地層がはかれるか

— 宮城県築館丘陵の堆積物のBLSL年代 —

下 岡 順 直*

The ages of the sediments at Tsukidate Hill in Miyagi pref., Japan,
measured by BLSL (OSL) dating

Yorinao SHITAOKA

要 旨

ルミネッセンス年代測定法は、理論的には100万年まで測定が可能であるとされる。しかし、年間線量に関する様々な要因などが絡み、実際には100万年までの測定は困難であると考えられる。ただし、様々な条件が整った場合、50万年よりも古い試料のルミネッセンス年代測定が可能であることは、過去の測定例からも明らかである。本研究は、年代の古い試料に青色光励起ルミネッセンス (BLSL) を適用するために、ブラジル産石英を用いて、BLSL年代測定に最適なプレヒート条件の決定を行った。まず、ブラジル産石英のTL特性を調べ、これまでに得られているデータと比較した。そして、BLSLのプレヒート効果とTL特性の相関について考察した。次に、宮城県築館丘陵でサンプリングした堆積物のBLSL年代測定を行った。BLSLの感度変化の補正などを考慮する必要はあるものの、層序と合理的な約60万年前後のBLSL年代を得ることができた。

I はじめに

(1) ルミネッセンス年代測定法

鉱物を加熱すると生じるルミネッセンス現象に関する記述は、13世紀の文献にはすでに登場していた (長友, 2003)。1940年代に光電子増倍管が実用化され、微弱な光の強度を測定することができるようになると、1953年にはDanielsらによって鉱物の熱ルミネッセンス (Thermoluminescence, TL) による地質年代に関する研究が報告された (Daniels *et al.*, 1953)。1960年には、Kennedyらによってギリシャの土器によるTL年代測定が行われた (Kennedy *et al.*, 1960)。さらに、1985年には、Huntlyらによって堆積物の光励起ルミネッセンス (Optically stimulated luminescence, OSL) 年代測定が報告された (Huntly *et al.*, 1985)。

日本におけるルミネッセンス年代測定は、1963年に市川米太らによって始まり、土器の年代測定や広島・長崎の原爆線量評価などに適用された (市川, 1963)。1982年には、火山灰にTL年代

平成17年9月30日受理 *奈良女子大学共生科学研究センター協力研究員

測定が試みられる (市川他, 1982)。そして、TL法は、陶磁器などの真贋判定にも応用されてきた (例えば、長友, 2005)。一方、OSL年代測定は、1995年に長友らがOSLの基礎研究を開始し (長友他, 1995)、ロシア沿海州ウスチノフカ3遺跡土器包含層上層に適用したのが日本では最初とされる (下岡, 2005)。

ルミネッセンス年代測定のタイムゼロイングは、加熱や光ブリーチによりそれまでに蓄積した鉱物中のルミネッセンス信号がゼロになることによってなされる。TL年代測定法は加熱により、OSL年代測定法は光ブリーチによりタイムゼロイングが行われた試料に有効である。ルミネッセンス年代測定は、

$$\text{ルミネッセンス年代} = \text{蓄積線量} \div \text{年間線量} \cdots \textcircled{1}$$

タイムゼロイングから現在までに蓄積したルミネッセンス量 (蓄積線量) を一年間に試料が被ばくする放射線量 (年間線量) で除することでルミネッセンス年代を求める方法である。考古学においては、土器や焼土、焼石、レンガ、屋根瓦、タイルなどは過去の人為的な加熱によって、火山灰は火山噴火によってタイムゼロイングがなされていることでTL年代測定法に適用できる。OSL年代測定法は、TL年代測定に適用できる試料のほか、遺物包含層 (文化層) などに適用することが可能である。OSL年代測定法では、そのほかにレスなどの風成堆積物や湖成層、海成層といった水成堆積物など様々な堆積物に適用可能とされ、その応用研究は幅広い。崖錐性や洪水性の堆積物への応用も試みられているが、これら堆積物のタイムゼロイングの確認は難しい様である。

堆積物に含まれる石英や長石鉱物の太陽光によるタイムゼロイングの時間は、石英で5分、長石で9分という結果が報告されている (Godfrey-Smith *et al.*, 1988)。著者も石英や長石鉱物の光ブリーチテストを行い、完全にタイムゼロイングするには前述の結果よりも少し時間がかかるという結果を得ている (下岡他, 2001)。いずれにせよ、試料のタイムゼロイングが完全であることはルミネッセンス年代測定法では前提条件であることから、個々の試料を測定する際には、タイムゼロイングが完全であることを確認する必要があるだろう。

年間線量評価に関連した前提条件では、タイムゼロイングから現在まで年間線量が一定であることが挙げられる。しかし、ラドン損失による放射非平衡、埋没深度の変化、地下水の変動やそれに伴うウランの溶脱などの検討が必要である (高島, 1995)。また、埋没 (堆積) 環境の変化にも留意しなければならない。長友らは、唐招提寺金堂に敷かれてある塼の年代推定を試み、塼がいつ敷かれたかといういくつかのシミュレーションを考え、最も適當年間線量を導き出している (長友他, 2004)。

ルミネッセンス年代測定では、上記のような前提条件のもとに蓄積線量と年間線量が導き出され、ルミネッセンス年代におけるこの二つの物理量の相関は、式①に示される通りである。そして、ルミネッセンス年代の誤差 (相対誤差) は、誤差伝播則より二つの物理量の各々の相対誤差を二乗し、その和を平方根した値によって求められる (ツルファニディス, 1986)。つまり、この二つの物理量について同精度で測定しなければ、ルミネッセンス年代の誤差は精度の悪い物理量の方に引っ張られてしまう。このように、ルミネッセンス年代測定法は、蓄積線量と年間線量の両方で誤差要因となる項目の検討を行い、同じ精度で求めることで、高精度な数値年代を得るこ

とができる。

(2) ルミネッセンス年代測定の実用年代—500kaよりも古いTL年代、OSL年代

自然科学的年代測定法には、適用（範囲）年代が存在する。適用できる年代幅を決める要素は、年代測定に使用される「時計」の物理的・化学的特性に依存する。年代測定に使用される「時計」は、放射性同位体の壊変、化学反応や地球磁場の変動などがある。ルミネッセンス年代では、固体結晶の放射線損傷による自由電子の動きを計測している。これを結晶のエネルギーバンドモデルに従って説明すると、放射線が結晶に作用し価電子帯で電子と正孔が生成され、正孔は正孔中心に、電子は伝導帯を通過して電子捕獲中心（電子トラップ）に捕獲される。電子トラップにおける電子の捕獲量は、年代が古くなるほど多くなる。このとき、電子トラップは、いろいろなエネルギー単位（伝導帯からの距離に比例）に存在し、エネルギーが小さいほど電子を捕獲する力（時間）は小さい。捕獲された電子が電子トラップにとどまる時間（寿命： τ)は、

$$\tau = s^{-1} \times \exp(E/kT) \dots \textcircled{2}$$

s ：振動数因子、 E ：電子トラップの活性化エネルギー、 k ：ボルツマン定数、 T ：絶対温度、によって理論的に求めることができる（Aitken, 1985）。捕獲電子が励起され、それらが再捕獲されない一次の反応（First order kinetics）であるとする、電子トラップに捕獲された電子の寿命は絶対温度： T に依存する。Aitkenによれば、②式を用いて $T=288\text{K}$ （ $=15^\circ\text{C}$ ）における電子の寿命は、 $E=1.60\text{eV}$ （ 240°C TLピーク）で340ka、 $E=1.68\text{eV}$ （ 310°C TLピーク）で450Maとなる（Aitken, 1985）。これを用いて長友は、捕獲された電子の残存する割合を考察し、TL法において大まかに10kaまでの年代であれば 250°C 以上、10kaより古い試料であれば 300°C 以上のTLピークを解析において用いることができるという一応の目安を考察している（長友, 1999）。また、 $E=1.66\text{eV}$ （ 375°C TLピーク）では電子の寿命は1億年以上であることから、理論的にはルミネッセンス年代測定は1Maの試料について測定可能である。しかし、年代測定に関する専門書を概観すると、ルミネッセンス年代測定法の適用範囲は狭い。例えば、中村・福澤によればTL法、OSL法ともに1000～300000年（中村他, 1999）であり、兼岡によれば、数十万年前まで測定可能とされている（兼岡, 1998）。この原因として、測定例が500kaより古い試料への適用例が少ないために信頼性が低いと考えられている。また、捕獲電子の数は格子欠陥や不純物中心の密度によって制限されるため、電子トラップが飽和すればそれ以上捕獲する能力は低下することが挙げられる。さらに、年間線量が大きく見積もられる試料の場合は、電子トラップの飽和が早く生じるため、年代の古い試料は測定できない場合がある。また、年間線量が一定であるという前提条件も地殻変動を考慮すると難しくなる。

これまでに測定された500kaよりも古い数値年代としては、TL法によって、高島らは、福島県会津田島地域の火砕流堆積物（溶結凝灰岩）で0.85～1.11Ma（高島他, 1989）、八甲田第1期火砕流で0.51～0.55Ma（高島他, 1990）、滝の上軽石流堆積物で0.90Ma、壮瞥軽石堆積物で1.59Ma（高島他, 1992）という結果を得ている。これらは、K-Ar年代との比較が試みられている。長友らは、福島県安達町の露頭から採取したテフラにおいて、It-fで $630 \pm 250\text{ka}$ 、It-bで $770 \pm 90\text{ka}$ 、It-aで $730 \pm 80\text{ka}$ （長友他, 2002）、埼玉県秩父市の露頭から採取したテフラでは、Od2で500±

100ka、 $Od1$ で $440 \pm 70ka$ (長友, 2002) という結果を得ている。これらの試料において古い年代が得られた要因は、年間線量が小さかったために蓄積線量が飽和することなく、これにより測定ができたことが挙げられる。OSL法においては、その方法の一つである赤外光励起ルミネッセンス (Infrared stimulated luminescence, IRSL) 法を用いて、著者はサハリンや韓国の河川堆積物を測定し、200ka程度の数値年代を得ている (Alexander *et al.*, 2002、Shitaoka *et al.*, 2004)。イスラエルのPoratらは、カリウムリッチな長石を用いたIRSL年代測定を行い、最も古い年代で $638 \pm 91ka$ という結果を得ている (Porat *et al.*, 2002)。蓄積線量評価で著者が微粒子法を採用したのに対して、Poratらは粗粒子法を採用している。蓄積線量評価における方法の違いは、 α 線が寄与するルミネッセンスの考慮の有無の差である。Poratらは、 α 線が寄与するルミネッセンスを無視することができる粗粒子法を採用したことにより、年代の古い試料でも測定が可能であったと考えられる。青色光励起ルミネッセンス (Blue-light stimulated luminescence, BLSL) 法では、Tsukamotoらが宮城県築館丘陵においてテフラ下のロームから抽出した石英微粒子を用いて、 $160 \pm 22ka \sim 476 \pm 171ka$ という古い年代を得ている (Tsukamoto *et al.*, 2003)。

本稿では、宮城県築館丘陵においてTsukamotoらが報告した層準よりも下層の堆積物について、石英粗粒子法を用いてBLSL測定を行った。BLSL年代測定において重要なBLSL測定前の熱処理 (プレヒート処理) の検討とあわせて報告する。

II OSL信号のプレヒート処理による影響

OSL測定は、光励起の前に熱による処理 (プレヒート処理) が行われる。プレヒート処理では、浅いトラップに捕獲されている不安定状態にある電子を除去する目的がある。これまでに、石英のOSL測定に際して様々なプレヒート条件が提示されてきた。160℃で16時間 (Stokes, 1992) という長時間の条件や、220℃で10分間 (例えば、Folz *et al.*, 1999) など短時間の条件がある。一般的には、220℃、240℃、280℃ (例えば、幡谷, 2003など) など200~300℃までの温度で行われていることが多い。また、試料のプレヒート温度を変化させてOSL測定を行い、各プレヒート温度において求められた等価線量値が安定している温度をプレヒート条件に決定する方法もある (例えば、Tsukamoto *et al.*, 2003)。今回、鉱物標本試料 (ブラジル産石英) を用いてプレヒートテストを行った。そして、プレヒート後のOSL信号が安定している温度領域をプレヒートの最適条件に決定する方法を採用した。

(1) 鉱物標本試料の電子捕獲中心 (電子トラップ) モデル

プレヒートテストを行った鉱物標本試料の電子トラップがエネルギー的にどのような分布を示しているかをThermal cleaning法 (以下、TC法) を用いて確認した。測定には、ブラジル産石英を用いた。試料調製は、まず万力を用いて $250 \mu m$ 以下に粉碎後、20%フッ酸溶液を用いて1時間処理を行った。乾燥後、標準篩で $75 \sim 150 \mu m$ に粒度を揃えた。そして、照射前に電気炉を用いて500℃で60分間アニールを行い、人為的タイムゼロイングを行った。鉱物への人工放射線照射は、Co-60 γ 線源を用い、0.3~0.4Gy/分の線量率で行った。TC法を行う前に、試料調製済み

試料（以下、調製試料）に1000Gy照射し、ルミネッセンスの発光色を観察した。窒素雰囲気では試料を300～400℃まで加熱したときのルミネッセンスをISO1600のカラーフィルムに感光させる方法を用いた。その結果、ブラジル産石英のTL発光色は青色を示した。

次に、調製試料をTC法によってTLピークの分離を行った。通常TL測定では、100～500℃まで連続昇温法を用いて測定を行うため、TLグローブは見かけ上複数のTLスペクトルが合成した形状をしている。TC法では、最初のピークが見え始めると、昇温を止めていったん昇温前の温度（スタート温度）にまで下げる。再度昇温を行い、次のピークが見え始めると、昇温を止めてスタート温度にまで下げるといった繰り返しの測定を最高温度が500℃になるまで行った。測定にはHarshaw2000Aを用い、X-Yレコーダーでデータを記録した。測定条件は、昇温速度5℃/秒、検出波長350～600nmで行った。結果をFig. 1-1に示す。分離したTLピークは、220℃、230℃、300℃、330℃、430℃、470℃であった。Aitkenによれば、石英において、110℃、190℃、230℃、240℃、310℃、325℃、375℃のTLピークの存在（Fig. 1-2）が確認されている（Aitken, 1985）。今回の測定で200℃以下のTLピークが観察されなかったのは、1000Gy照射後に50℃で1週間保管後測定を行ったため、寿命が短い電子トラップの捕獲電子が減衰し、消滅したためと考えられる。Aitkenの報告したデータと比較すると、200～400℃にかけてのTLピークは、ほぼ一致する結果であった。400℃以上では、新たに2つのTLピークが検出された。Aitkenの報告したデータでは、波長の短いルミネッセンスを検出しているため、400℃以上のTLピークは観察できなかったと考えられる。今回の測定では、検出波長を350～600nmという広い範囲で観察を行ったため、長波長域のルミネッセンスについても観察ができたと考えられる。カラーフィルムでの観察では、長波長のルミネッセンス強度は小さく検出不可能であるうえに、400℃以上では黒体放射が大きく現れるため、検出が難しい。今回の結果は、ルミネッセンス発光色が青色と確認された石英においても、高温領域において波長の長いルミネッセンスが存在することを示唆している。

(2) 石英試料の最適なプレヒート処理条件—鉱物標本試料を用いて—

次に、プレヒート処理の効果を観察した。500℃で60分間アニールした調製試料に γ 線を50Gy照射し、プレヒートした後、測定温度を40℃に設定してGLSL（Green-light stimulated luminescence）測定を行った。プレヒート温度は、90～140℃、180～240℃、280～380℃（いずれも10℃間隔）とし、プレヒート保持時間は、各温度で10秒、60秒、300秒に設定した。測定は、Daybreak1150装置を用い、励起光波長は514nm、検出波長を280～370nmに設定した。結果をFig. 2に示す。横軸にプレヒート温度、縦軸にプレヒートしていないGLSL強度に対するGLSL強度比で表し、プレヒート・プラトー温度領域を破線部分で示した。

Fig. 2より、100～130℃（保持時間10秒）、210～240℃（保持時間10秒）、290～330℃（保持時間300秒）において、プレヒート・プラトー領域を観察することができた。これは、110℃、220℃ないし230℃、300℃ないし330℃のTLピークに対応している。これにより、プレヒート処理では、これらTLピークに対応する電子トラップに捕獲された電子の除去を目的としていることがわかる。緑色光から青色光のエネルギーは、約2.4～2.6eVであり、330℃のTLピークにおい

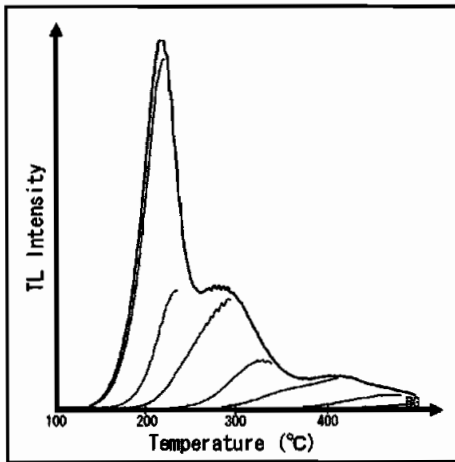


Fig. 1-1 Thermal cleaning法によるブラジル産石英のTLグローカーブのピーク分離。昇温速度5℃/sec、検出波長350～600nm。分離したTLピークは、220℃、230℃、300℃、330℃、430℃、470℃である。

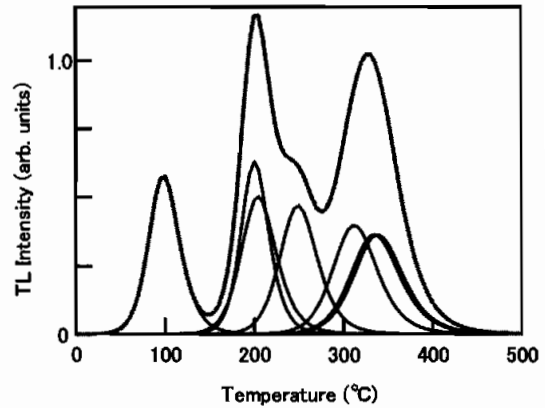


Fig. 1-2 石英のTLピークと合成したTLグローカーブ (Aitken, 1985)。TLピークは、110℃、190℃、230℃、240℃、310℃、325℃、375℃。Tatumiらのシミュレーション (Tatumi *et al.* 1998) を基に行った。

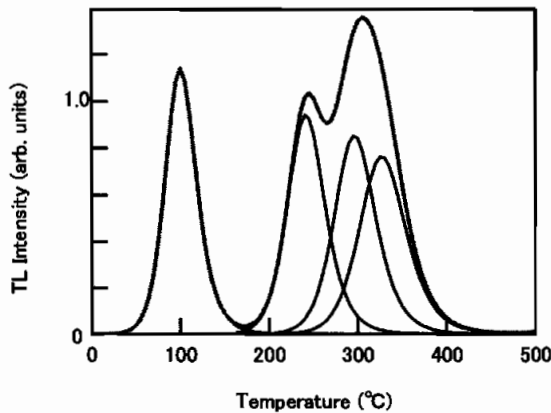


Fig. 1-3 Baileyが使用した石英のパラメーター (Bailey, 2001) を用いてシミュレーションしたTLグローカーブとTLピーク。OSLFast成分とOSLMedium成分では、約325℃と約295℃にTLピークができた。「Deep trap」のTLピークは、約650℃付近になり、図では確認できない。

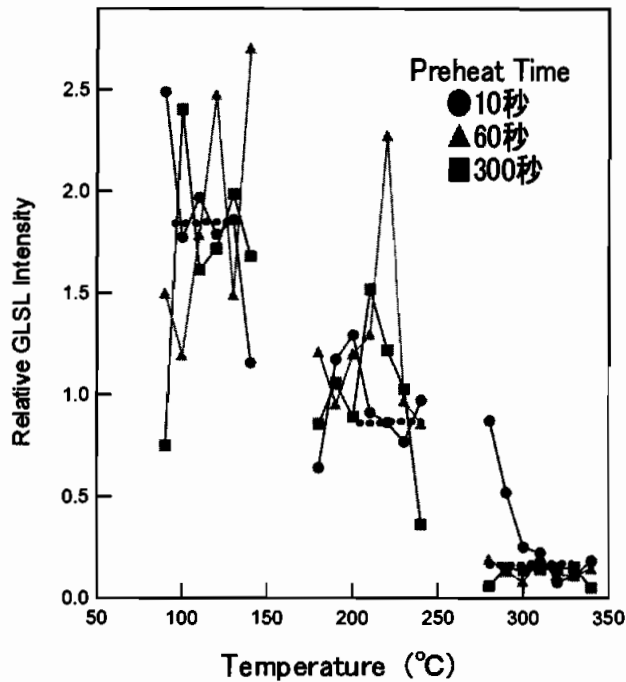


Fig. 2 石英（ブラジル産石英）のプレヒートテスト。破線部分は、プレヒート・プラトー領域。縦軸は、プレヒートを行っていないGLSL強度に対するGLSL強度比。横軸は、プレヒート温度。

でも電子トラップの活性化エネルギーは、約 $1.57 \pm 0.04 \text{ eV}$ （Fractional glow法より求めた数値）であることから、OSL測定においてどの単位の電子トラップをターゲットにするのかをプレヒート処理によって決定することが必要である。この場合、それぞれの電子トラップに捕獲される電子の寿命が大きく関与すると考える。Aitkenによれば、式②より 15°C の状態において、電子の寿命は 110°C TLピークで7時間、 $230^\circ\text{C} \sim 240^\circ\text{C}$ TLピークで $130 \text{ ka} \sim 340 \text{ ka}$ 、 310°C TLピークで 450 Ma と報告されている（Aitken, 1985）。よって、測定する試料が古いほどターゲットにする電子トラップは高温側のものを使用する必要があるだろう。しかし、パルスアニール法（Pulse annealing法）を用いて長石のIRSLに関与する電子トラップの寿命を観察すると、同レベルの活性化エネルギーをもつTLに関与する電子トラップの寿命よりもIRSLに関与する電子の寿命は、 $0.1 \sim 0.01\%$ （長石の組成によって異なる）まで短くなっていることがわかっている（下岡, 2005）。石英においても、電子トラップの寿命が同程度短くなるとすると、 300°C 付近の電子トラップにおいても 500 ka よりも古い試料を測定することが難しくなる。

Baileyによる石英のOSLについてのシミュレーションで用いられた電子トラップのパラメータ（Bailey, 2001）を用いて、TL測定をシミュレーションすると、Fig. 1-3のようなTLグローカーブを得ることができる。このシミュレーションでは、 110°C TL、 230°C TLに関与する電子トラップと約 330°C でTLピークを生ずる電子トラップが関与するOSL Fast、Mediumの2つの成分（Slow成分は原著論文では議論の対象外になっている）を用いて行った。その結果、OSL Fast成分と

OSL Medium成分では、約325℃と約295℃にTLピークができるグローカーブを得ることができた。この二つの成分が関与する活性化エネルギーは、ほとんど同じ (1.70eVと1.72eV) であるが、OSL Fast成分のTLピーク温度は、OSL Medium成分のそれよりも高い。この原因として、一つに振動数因子が異なることが考えられる。また、2つの成分に分けられるのは、この2つの成分の光に対する励起速度、いわゆるPhotoionisation cross sectionと呼ばれるパラメーターに起因することが示唆される。約330℃TLピークなどOSLに直接関与する電子トラップは、Rapidly bleaching peak (RBP) と呼ばれている (Murray *et al.*, 1998)。今回、プレヒートテストに使用したブラジル産石英では、300℃、330℃TLピーク付近がRBPに当たると考えられる。しかし、前述したように300℃TLピーク付近の電子トラップの寿命がTL信号よりもOSL信号の方が短いとするならば、430℃、470℃TLピークなどの電子トラップをOSL測定に使用する必要があるだろう。

なお、Baileyの電子トラップモデルでは、熱的に安定した「Deep trap」(E=2.00eV) が提示されている。この「Deep trap」のパラメーターを用いてTL測定をシミュレーションすると、約650℃付近にピークを持つTLグローカーブを得ることができる。そこで、ブラジル産石英を用いて、「Deep trap」からのBLSLを観察した。調製試料を400℃まで加熱した後、冷却してからBLSL測定を試みた (測定温度120℃)。その結果をFig. 3に示す。BLSL信号は毎秒50カウント以下であり、線量に対して生長的な線量依存性は観察することができなかった。これだけでは、「Deep trap」の存在を否定することはできないが、「Deep trap」が寄与するBLSL信号はほとんど無視できることがわかった。

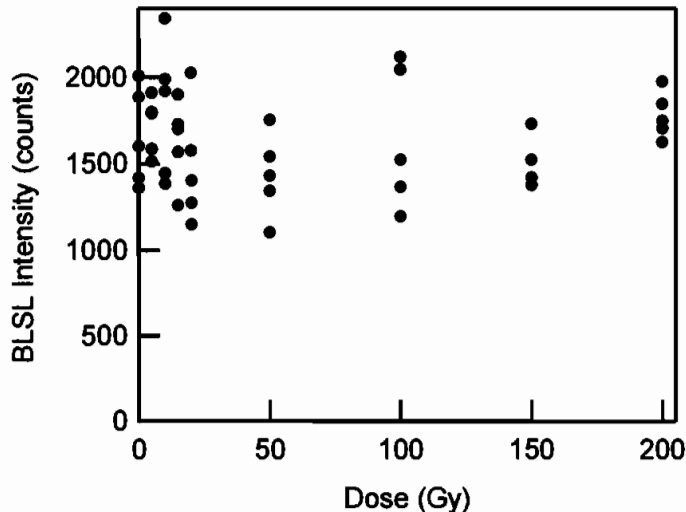


Fig. 3 ブラジル産石英の「Deep trap」からのBLSLの線量依存性。400℃まで加熱後冷却し、測定温度120℃でBLSL測定を行った。

以上の検討より、安定したBLSL信号が得られるプレヒート条件として、120℃で10秒、220℃で10秒、310℃で300秒という3条件を提示しておく。次章において、古い試料に適したプレヒート条件についての検討を行った。

Ⅲ 築館丘陵における堆積物のBLSL測定

(1) 試料および試料処理

OSL年代測定に用いた試料は、宮城県北部の築館丘陵において採取した。この地域は、早田らによるテフロクロノロジー研究と各種自然科学的年代測定による火山灰の数値年代の蓄積が20年来行われてきた。試料は、長友らによってTL年代で 490 ± 40 ka、広岡らによる古地磁気法でEmperor event、470kaに対比された高森第一テフラ (Tm-1) (Nagatomo *et al.*, 1999) 下位に位置する倉ノ沢第一テフラ (Ks-1) とさらにその下位の堆積物を3試料採取した (Fig. 4)。Ks-1はTL年代測定を、その他の堆積物はBLSL年代測定を行った。

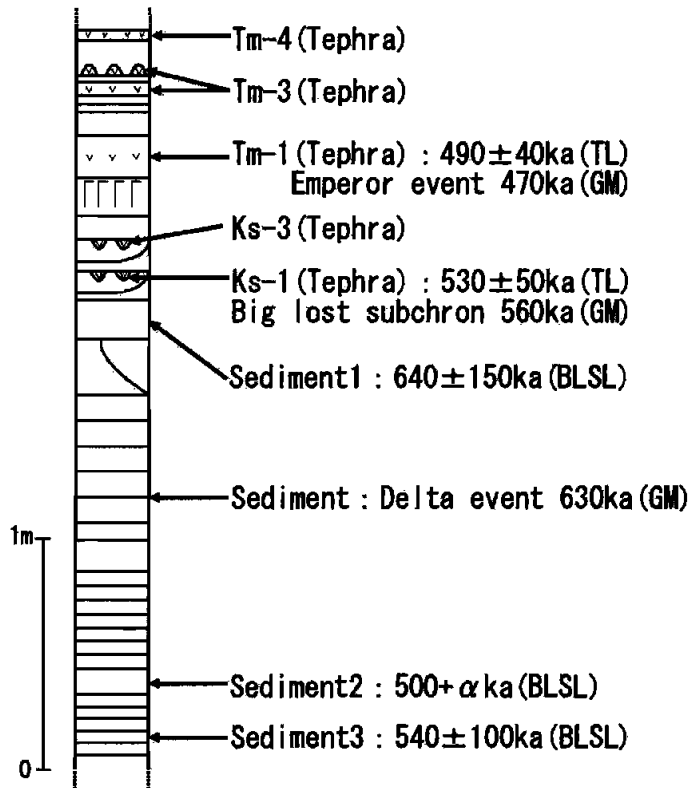


Fig. 4 宮城県築館丘陵のサンプリング地点の地層の基本柱状図 (上高森遺跡検証発掘調査団, 2002) およびルミネッセンス年代。BLSL年代は、感度変化による補正を行っていない。Sediment2は、スプラリニアリティー補正 (+ α) を行っていない。

試料は、石英粗粒子法を用いて蓄積線量を評価した。採取した試料を水中で細かく碎き、木根など有機物を除去した。攪拌後、5分間放置し浮遊物と沈殿物に分離した。得られた沈殿物を石英粗粒子試料として処理を行った。まず、ヘキサメタリン酸ナトリウム3%水溶液を加え、除去できなかった微粒の鉱物を除去し、さらに標準篩を用いて50~250 μm に粒度を調整した。塩酸20%溶液で炭酸塩鉱物を除去し、フランツ型マグネティックセパレーターで有色(磁性)鉱物を除去した。残った白色(非磁性)鉱物をフッ酸溶液で、石英以外の鉱物を溶解させるとともに、石英鉱物の表面をエッチングした。抽出した石英試料をアルコールと蒸留水を用いて洗浄し乾燥させた後、標準篩で75~150 μm に粒度を再度調整した。

(2) 蓄積線量測定

蓄積線量評価には、一つの試料を複数の試料皿に分配して測定を行うMultiple aliquot additive dose法を用いて行った。ルミネッセンスは、付加線量がタイムゼロイングから直線的に比例して生長した場合、等価線量は蓄積線量に等しくなる。しかし、多くの場合、低線量域では直線の傾きが小さいスプラリニアリティーを呈する。これを補正するために、アニーリングにより人為的にタイムゼロイングを行った試料を用いて測定するスプラリニアリティー補正を行う。スプラリニアリティー補正值評価のためのアニールは、350 $^{\circ}\text{C}$ で60分間の条件で行った。等価線量とスプラリニアリティー補正值の和によって求まるのが蓄積線量である。TL測定は、奈良教育大学に設置されているDaybreak1150自動測定装置を用い、昇温速度10 $^{\circ}\text{C}/\text{秒}$ で最高温度500 $^{\circ}\text{C}$ まで連続昇温法によって行った。検出波長は、310~440nmである。BLSL測定は、奈良女子大学に設置されているRiseo社製のTL-DA-15測定装置を用いた。測定条件は、励起光波長を470nm、検出波長を250~400nmとし、測定温度を40 $^{\circ}\text{C}$ に設定して100秒間BLSL測定を行った。

まず、前章で設定した3通りのプレヒート条件(120 $^{\circ}\text{C}$ で10秒、220 $^{\circ}\text{C}$ で10秒、310 $^{\circ}\text{C}$ で300秒)を堆積物試料(Sediment1)に適用してBLSL測定を行い、プレヒートの最適な条件を決定した。その結果、等価線量値は3通りのプレヒート条件において、それぞれ192Gy、204Gy、330Gyであった。これらの結果より、最も直線的な線量依存性が得られたのは、プレヒート条件を120 $^{\circ}\text{C}$ で10秒に設定した場合であった。しかし、今回のように年代が古いと考えられる試料の場合、電子トラップに捕獲された電子の寿命を考えると、120 $^{\circ}\text{C}$ で10秒のプレヒート条件ではプレヒート処理が十分でない可能性がある。そのため、今回の堆積物試料には、最も等価線量値を大きく見積もることができた310 $^{\circ}\text{C}$ で300秒のプレヒート条件が適していると考えられる。よって、今回の堆積物試料には、310 $^{\circ}\text{C}$ で300秒をプレヒート条件として採用し、BLSL測定を行った。

(3) 測定結果と考察

TL測定したKs-1とBLSL測定によるSediment1の線量評価の結果をFig. 5に示す。蓄積線量評価は石英粗粒子法を用いたため、年間線量は年間 β 線量と年間 γ 線量と年間宇宙線量の和で求められる。年間線量の測定は、すべてTLD素子を用いた直接測定法によって求めた(Table1-1)。各試料の蓄積線量、年間線量およびルミネッセンス年代をTable1-2にまとめ、層序とルミネッセンス年代の相関をFig. 4に示した。

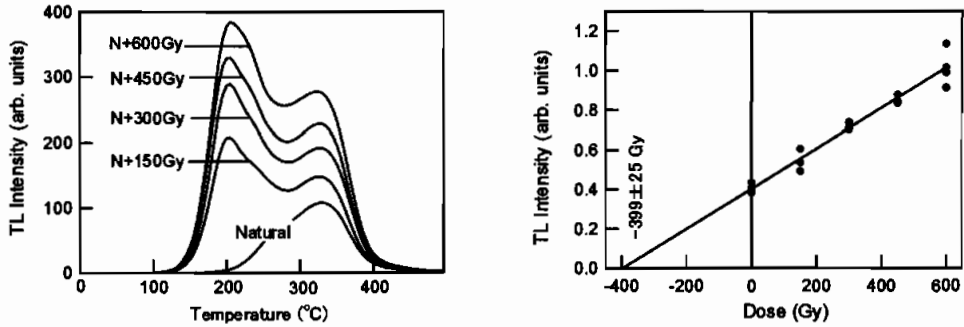


Fig. 5-1 倉ノ沢第一テフラ (Ks-1) のTLグローカーブと生長曲線。TL測定は、昇温速度10℃/sec、最高温度500℃、検出波長310～440nmで行った。TL強度の積算範囲は、335～350℃である。

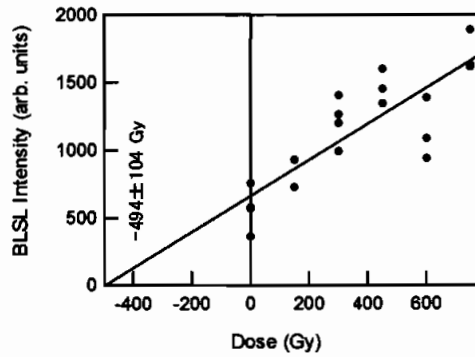


Fig. 5-2 Sediment1の等価線量評価のための生長曲線。BLSL測定は、プレヒート条件310℃で300秒間行い、測定温度40℃で100秒間行った。BLSL強度は、40～80秒間を積算した値である。

Table1-1 テフラおよび堆積物の年間線量。

	β ray (Gy/ka)	γ +cosmic ray (Gy/ka)	Annual dose (Gy/ka)
Ks-1	0.36±0.06	0.50±0.02	0.86±0.06
Sediment1	0.26±0.03	0.51±0.02	0.77±0.04
Sediment2	0.35±0.04	0.56±0.02	0.91±0.04
Sediment3	0.48±0.03	0.54±0.02	1.02±0.04

Table1-2 宮城県築館丘陵のテフラおよび堆積物のルミネッセンス年代測定結果。蓄積線量 (PD)、年間線量 (AD)、ルミネッセンス年代の順に示す。kaは、千年前を示す。Sediment2は、スプラリニアリティー補正 (+ α) を行っていない。

	PD (Gy)	AD (Gy/ka)	Age (ka)
Ks-1	459±29	0.86±0.06	530±50
Sediment1	462±115	0.77±0.04	600±150
Sediment2	451+ α	0.91±0.04	500+ α
Sediment3	568±160	1.02±0.04	560±160

Ks-1は、古地磁気法によってBig lost subchronに対比され、560kaの結果が報告されている(長友, 2003)。今回のTL年代は、古地磁気法の結果と整合性がみられた。堆積物試料では、測定値としてはSediment3がSediment1より若干若い年代値を示した。また、これらのデータはばらつきが大きく、年代の誤差も蓄積線量の誤差に引っ張られて約30%程度にまで大きくなった。しかし、Ks-1のTL年代と比較すると堆積物試料は古い年代値を示し、堆積物のBLSL年代は層序的に矛盾のない合理的な結果となった。また、プレヒート処理では、310℃で300秒の条件が古い試料において最適であることがわかった。

脊梁山脈の太平洋側、特に築館丘陵を含む宮城県北部地域では、周辺地域から供給される火山噴出物に含まれるカリウム濃度は低い。そのため、堆積物について、 γ 線スペクトル測定を別途行った。その結果、堆積物中に占めるK-40濃度は0.25~0.42%であり、他地域と比較して低かった。これに起因して、堆積物の年間線量は小さい値を示した (Table1-1)。よって、堆積物中の石英の電子トラップの飽和が起きず、BLSLはほぼ直線的な線量依存性を得ることができたと考えられる。

今回の結果より、堆積物のBLSL年代測定は、蓄積線量はさることながら年間線量についても一定の条件が整った場合、500kaを越える試料でも適応可能であることを示した。ただし、蓄積線量評価では、プレヒート処理や人為的アニール処理に伴うBLSLの感度変化の補正などの問題が残っている。また、火山性起源の石英で観察されるBLSL Medium成分の回復現象 (Recuperation) についての検討を行う必要がある。この手法の実用化に向けて、解決していかなければならない課題は山積している。

謝辞

奈良教育大学長友恒人先生には、年代測定について終始御指導・御教示を賜りました。奈良女子大学高田将志先生には、測定などにおいて御協力を賜りました。水野正好先生には、奈良大学博士後期課程在学中いろいろと御指導を賜りました。奈良教育大学院生西村誠治氏、奈良女子大学院生高田愛子氏には粗稿を読んでいただき、貴重なアドバイスをいただきました。このほか、多くの方の御協力を賜りました。末筆ながら、篤く御礼申し上げます。

参考文献

- 長友恒人 (2003) ルミネッセンス年代測定法—自然放射線を利用して地層の年代を測定する、化学、vol. 58、No. 10、24-28
- F. Daniels, C. A. Boyd and D. F. Saunders (1953) Thermoluminescence as a Research tool, Science, 343-349
- Kennedy, G.C. and Knopff, L. (1960) Dating by thermoluminescence, Archaeology, 13, 147-148
- Huntly, D. J., Godfrey-Smith, D. I. and Thewalt, M. L. W. (1985) Optical dating of sediments, Nature, 313, 105-107
- 市川米太 (1963) 熱ルミネッセンスによる土器の年代測定 I、奈良学芸大学紀要、第11巻、55-61
- Ichikawa, Y., Hagihara, N. and Nagatomo, T. (1982) Dating of pyroclastic flow deposits by means of the quartz inclusion method, PACT 6, 409-416
- 長友恒人 (2005) 熱ルミネッセンス法による鏡範の真贋判定、鏡範研究 2—草葉文鏡範の日中共同研究報告一、74-78
- 長友恒人、藤本研、平賀章三 (1995) 石英・長石のルミネッセンス、固体及び表面・界面における動的過程の研究と物質科学教育への適用、27-32
- 下岡順直 (2005) 東アジア旧石器時代研究におけるルミネッセンス年代測定、奈良大学大学院博士論文
- Godfrey-Smith, D. I., Huntly, D. J. and Chen, W. H. (1988) Optical dating studies of quartz and feldspar sediment extracts, Quat. Sci. Rev. 7, 373-380
- 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、RADIOISOTOPE, Vol. 50, No. 9, 381-389
- 高島勲 (1995) 熱ルミネッセンス年代測定—特に石英による火山岩類の測定精度について—、第四紀研究、34-3、209-220
- 長友恒人、西村誠治 (2004) 年間線量が一定でない場合のTL年代測定—唐招提寺基壇場のTL年代と基壇修理年代の推定—、ESR応用計測、第21巻、p. 31
- ニコラス ツルファニディス (阪井英次 訳) (1986) 放射線計測の理論と演習 上巻、p. 40
- Aitken, M. J. (1985) Thermoluminescence Dating, Academic Press, 359p
- 長友恒人 (1999) ルミネッセンス法によって測定可能な年代と誤差要因、月刊地球、号外No. 26、125-132
- 中村俊夫、福澤仁之 (1999) 総論：高精度年代決定法とその応用—第四紀を中心として—、月刊地球、号外 No. 26、6-12
- 兼岡一郎 (1998) 年代測定概論、315p
- 高島勲、本多朔郎 (1989) 福島県会津田島地域の火砕流堆積物のK-Ar年代とTL年代の比較、地質学雑誌、第95巻、第11号、807-816
- 高島勲、本多朔郎、納谷宏 (1990) 青森県八甲田地域の火災堆積物のTL年代、岩鉱、85、459-468

- 高島勲、山崎哲良、中田英二、湯川公靖 (1992) 北海道洞爺湖周辺の第四紀火砕岩及び火山岩のTL年代、岩鉱、87、197-206
- 長友恒人、西村誠治、後藤峰昭 (2002) 一斗内松葉山遺跡における熱ルミネッセンス年代測定、一斗内松葉山遺跡試掘確認調査報告、43-47
- 長友恒人 (2002) 熱ルミネッセンス年代測定、埼玉県前期旧石器問題検討報告書、95-97
- Vasilevski Alexander A., Nagatomo Tsuneto, Shitaoka Yorinao, Mikishin Yuri A (2002) To the problem of Lower and Middle Palaeolithic in Sakhalin (Stratigraphy. Industry. Chronology.), 17th congress of The Indo-Pacific Prehistory Association
- Y. Shitaoka and T. Nagatomo (2004) IRSL dating of Imjin-Hantan basin sediments and relevant Paleolithic sites, Aspects of Quaternary History of the Imjin Basin Joint Korea-Japan Research Group
- N. Porat and A. Ronen (2002) Luminescence and ESR age determinations of the lower paleolithic site Evron Quarry, Israel, Advances in ESR applications, vol. 18, 123-130
- S. Tsukamoto, W. J. Rink and T. Watanuki (2003) OSL of tephric loess and volcanic quartz in Japan and an alternative procedure for estimating De from a fast OSL component, Radiation Measurements, 37, 459-465
- S. Stokes (1992) Optical dating of young sediments using quartz, Quaternary Science Reviews, 11,153-159
- Elise Folz and Norbert Mercier (1999) A Single-aliquot OSL protocol using bracketing regenerative doses to accurately determine equivalent doses in quartz, Radiation Measurements, vol. 30, No. 4, 477-485
- 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、42-5、347-359
- S. H. Tatumi, T. Nagatomo, D. Sengupta, S. Watanabe, A. M. F. Barreto and K. Suguio (1998) Thermoluminescence dating of eolian sediments from Sao Francisco river, state of Bahia, Brazil, Radiation effects and Defects in Solids, vol. 146, No. 1-4, 285-295
- R. M. Bailey (2001) Towards a general kinetic model for optically and thermally stimulated luminescence of quartz, Radiation Measurements, vol. 33, No.1, 17-45
- A. S. Murray and A. G. Wintle (1998) Factors controlling the shape of the OSL decay curve in quartz, Radiation Measurements, vol. 29, No.1, 65-79
- Nagatomo, T., Kajiwara, H., Fujimura, S., Kamada, T. and Yokoyama, Y. (1999) Luminescence dating of tephra from paleolithic sites in Japan (from 10ka to 500ka), Radiation Protection Dosimetry, vol. 84, No. 1-4, 489-494
- 上高森遺跡検証発掘調査団 (2002) 宮城県築館町上高森遺跡検証発掘調査報告書、80p
- 長友恒人 (2003) 捏造遺跡関連地層の自然科学的数値年代、前・中期旧石器問題の検証、417-422

Summary

The luminescence dating technique is considered to be applicable to the samples as old as ~1Ma. However it might be difficult to measure the very old sediments, because of the saturation of the growth curve due to the high annual dose (the dose-ray rate) of the sample. When the annual dose is lower than ~1Gy/ka, we could estimate the sediments older than 500ka. In the present work, the optimum preheat condition had been tested using the Brazil quartz before Blue-light Stimulated Luminescence (BLSL) dating was applied to the sediments from Tsukidate Hill, Miyagi prefecture, Japan. The ages of three sediments were successfully evaluated as old as ~600ka. The measured ages of theirs are consistent with their geological stratigraphy.