

最近の TL 年代測定の進歩－ SAR 法によるテフラの RTL 年代測定－ 鷹澤 好博*, 臼井理沙**, 田中瞳***, 篠原 緑*

Recent progress of TL dating –RTL dating of tephra using SAR protocol–
Yoshihiro Ganzawa*, Risa Usui**, Hitomi Tanaka***, and Midori Shinohara*

* 北海道教育大学教育学部函館校, Faculty of Education, Hokkaido University of Education, Hakodate Campus.

** 利尻富士町立鷺泊小学校, Primary School of Washidomari, Rishirifuji-cho, Hokkaido.

***南足柄市岩原小学校, Primary School of Iwahara, Minamiashigara-cho, Kanagawa.

Abstract

A recent developed luminescence dating method, SAR protocol was employed for Toya tephra dating using RTL of quartz grains. RTL counts were corrected by a test dose measurement, monitoring of sensitivity change of RTL, originated in readout cycles of heat and radiation. The corrected RTL ages of Toya derived from SAR, MAR and MAAD protocols were well agreed with an age estimation deduced from tephra correlation.

はじめに

赤色熱蛍光 (Red thermoluminescence ; RTL) は 1980 年代から 90 年代前半に, Hashimoto et al.(1986,1993)や Miallier et al.(1991)によってその存在が指摘され, 青色熱蛍光(BTL)より安定で, 古い時代を対象とする年代測定に適していることが明らかにされた. RTL は主に火山岩に含まれる β 型石英に見出され, 600-650nm の波長を持ち, 350-380℃ 付近に発光のピークを持つ. Fattahi and Stokes(2000)は捕獲電子が常温下で 10^9 年の寿命を持つことを述べ, これまで 2ka から 1.2Ma の年代測定に応用されている (Fattahi and Stokes,2003). したがって, 更新世中期から後期の時代を, 最も得意とする年代測定法である.

筆者らはこうした点に注目し, これまで主に更新世テフラを対象に RTL 年代測定の基本的な研究を進めてきた. TL 研究の開始は 1970 年代に

さかのぼり, Aitken(1985)による総括的なテキストも出版されているが, TL の発光原理や現象は複雑なため, 実験方法も鉱物によって異なるなど多様で, 研究者間で統一化された測定方法が確立されているわけではない. したがって, 年代測定に優れた RTL を対象とする場合でも, テキストの慣用的な手法だけでは満足できる結果を得ることはできなかった. また, RTL 測定装置も次項で述べるように, 市販の装置では十分な検出感度を得ることができず, 独自の開発が必要であった.

本論では, 最近, Murray and Wintle (2000)によって提案された single-aliquot regenerative-dose 法 (SAR 法) を用いて, Toya を対象に RTL 年代測定を行った結果について述べる.

実験

a) 試料

実験試料として洞爺火砕流堆積物 (試料名: Toya-GE) から抽出した石英を用いた. 採取地点は洞爺火砕流堆積物の模式地である北海道伊達市長流川河畔に位置しており, 採取試料は 3 層に区分される flow unit の中位層準 (TpfⅢ) に相当する (Ganzawa et al., 2005).

b) TL 装置

本研究で用いた装置は, これまで筆者らが開発した装置で, 受光装置, 加熱装置, X 線照射装置からなり, 全体をパソコンで制御している. 光電子増倍管には赤領域の受光特性に優れた R649S

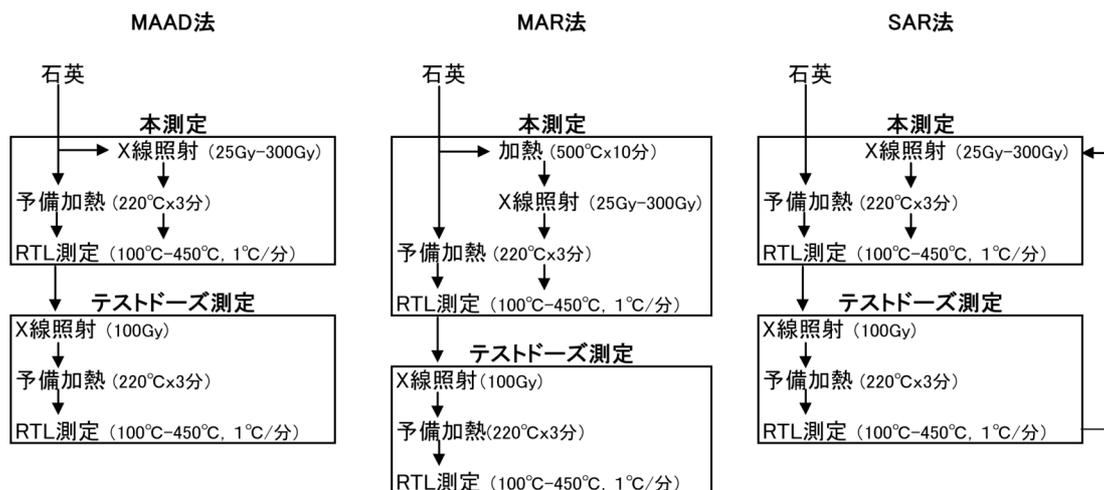


図1 MAAD 法, MAR 法および SAR 法の実験手順.

本論では MAAD 法および MAR 法も test dose 法を本測定の後に加え、本測定の RTL 測定強度の感度補正を行った。

を用い、これを電子冷却装置に格納している。ヒーターは Watrou を用い、最大 600°C まで、1°C/sec の加熱が可能である。照射線源として、橋本ほか (2002) が開発した X 線 (Variant) を用い、50W, 0.1mA の出力で 6.1Gy/m の線量を供給できる。照射部前面には 200 μm のアルミ板を置き、低エネルギー X 線をカットしている。フィルターには HoyaO56 あるいは O60 (3mm) と SchottBG39(3mm) を用いている。パソコンでこれらの測定環境を制御し、SAR 測定が可能な装置である。

c) RTL 測定手法

SAR 法は「本測定」と「Test dose 測定」からなる。まず、「本測定」は 30 程度の粒子が入った 1 ディスク (あるいは 1 粒子) を対象に、天然蓄積 TL を測定後、人工照射+TL 測定を繰り返す。また、「本測定」の間に後述の「Test dose 測定」を挿入する。以上の連続測定から、照射線量と TL 強度で示される成長線を描き、天然蓄積線量を求めることができる (図 1)。

この方法の長所は、TL 測定において常に同じ試料を用いるため、試料の geometry が同じであることである。従来、天然 TL 測定試料と照射 TL 測定試料は異なる粒子群を用いたので、両者の校正は重量による補正 (TL 強度/mg) だけを行っ

てきた。この方法では、試料間の発光特性の違いなどの geometry を補正することができない。SAR 法のもう一つの優れた点は、同じ試料を用いるので測定に必要な試料は最低限で済むことである。multi grain で行う場合でも 30 粒子程度で十分である。筆者らは測定装置の受光感度改良を進め、1 粒子の年代測定を実現することに成功した (Ganzawa et al., 2005)。従来の手法では 1000 粒子以上が必要であったので、大きな進歩である。

一方、SAR 法には次の欠点がある。それは試料に対し、繰り返し人工照射および加熱を加えるため、試料の測定感度が変化する点である。これを補正するため、同じ強度の放射線照射 (本実験 100Gy) +TL 測定「Test dose 測定」を「本測定」の間につねに差し込み、Test dose TL 強度をモニターする方法を用いる。このため、測定は従来の 2 倍の時間と手間を要するが、自動化されているので大きな支障はない。

本論では SAR 法と比較するため、従来の手法である Multi-aliquot regeneration 法 (MAR 法) と Multi-aliquot additive dose 法 (MAAD 法) も併用して実験を進めた。測定方法は図 1 に示したとおりである。本論で進めた MAR 法と MAAD 法が従来の手法と異なる点は、それぞれの人工照射+TL 測定の後、100Gy 照射+TL 測定からなる

「Test dose 測定」を新たに加えた点である。これにより各測定の感度変化をモニターすることを試みた。

また、年間線量測定のため、東海原研において原研施設共同利用を利用して、U および Th の定量を行った。K については原子吸光法によって決定した。また、試料の含水率や宇宙線量は Ganzawa et al.(2005)にしたがった。

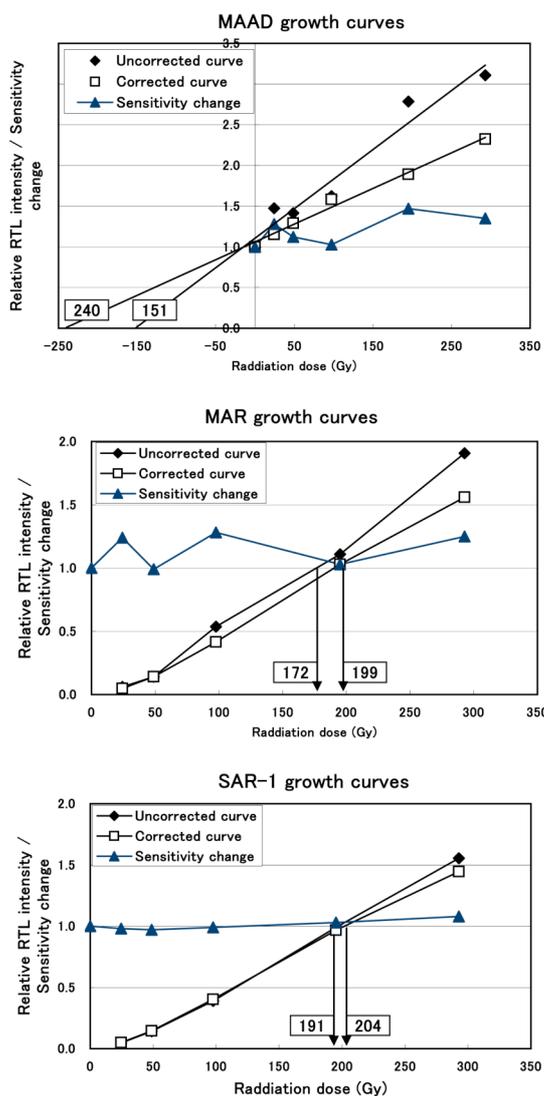


図2 MAAD 法, MAR 法および SAR 法で得られた RTL 成長線, RTL 感度変化および蓄積線量. 天然 RTL 測定後の test dose 強度を基準に, 感度変化を▲印で示し, 感度補正前の成長線 (◆印) と補正後の成長線 (□印) を描いた. 矢印および数字は成長線から示された蓄積線量を示す.

実験結果

a) RTL の感度変化

MAAD 法, MAR 法および SAR 法において「Test dose 測定」から得られた石英の RTL 感度変化を図2に示した. その際, RTL 強度は発光曲線のプラトーテストに基づいて, 340-360°C 間の発光数の総計とした. 「Test dose 測定」でモニターすると, 「本測定」の照射線量 25Gy から 300Gy に対し, いずれの手法においても「Test dose 測定」時の RTL 強度 (感度) が変化している. MAAD 法では 200Gy 照射時に最大 1.48 の感度上昇が, MAR 法では 100Gy および 300Gy 照射時に最大約 1.28 の感度上昇が認められる. なお, ここで基準値 (1.0) としたのは, 天然 TL 測定後の「Test dose 測定」で得られた RTL 強度である. これに対し, SAR 法では 300Gy で最大 1.1 程度の感度変化にとどまっている. MAAD 法と MAR 法で感度変化が不安定である原因の一つは, 試料間の geometry が異なっていることに由来すると思われる.

これに対し, SAR 法では同じ試料を用いるので geometry は同じとみなされるので, 感度変化は, 純粹に繰り返し測定 (x 線照射と加熱) の結果と考えられる. geometry の問題があるものの, ここで重要な点は, MAAD 法と MAR 法のいずれもが, SAR 法よりかなり強い感度変化を示している点である. この理由は明確ではないが, 少なくとも人工照射によって石英感度の変化は明瞭で, これを補正することが必要であることを示している. この点を従来の手法は考慮に入れていなかった.

b) 蓄積線量の決定と RTL 年代

Toya-GE の蓄積線量の決定は MAAD 法, MAR 法でそれぞれ 1 セット, SAR 法では 4 試料で行った. その際得られた RTL 感度変化補正前と補正後の成長線を示した (図2). RTL の感度補正は Murray and Wintle (2000)にしたがって, 「本測定」で得られた RTL 強度を, 直後に測定した「Test dose 測定」で得られた RTL 強度で, 除算して行った. 照射高線量域で感度変化が増す

表 1 RTL の各種測定法によって得られた Toya-GE の年代.

method	Sample code	uncorrected De (Gy)	corrected De (Gy)	corrected ratio	U (ppm)	Th (ppm)	K ₂ O (%)	Water content (dry)	Da(U+Th+K ₂ O) (mGy/a)	Cosmic ray (mGy/a)	Da (mGy/a)	corrected age (ka)	particle size(μm)
MAAD	TBGE	151 ± 13	240 ± 13	1.59	1.66 ± 0.14	4.76 ± 0.26	2.04	0.14	1.90	0.01	1.91	126 ± 7	250-355
MAR	TBGE	172 ± 22	199 ± 22	1.16								104 ± 12	250-355
SAR-1	TBGE	191 ± 11	204 ± 11	1.07								107 ± 6	250-355
SAR-2	TBGE	201 ± 10	208 ± 10	1.03								109 ± 5	250-355
SAR-3	TBGE	176 ± 11	216 ± 11	1.23								113 ± 6	250-355
SAR-4	TBGE	206 ± 12	233 ± 12	1.13	122 ± 6	250-355							
SAR ave.		194 ± 11	215 ± 11	1.12								113 ± 6	

MAAD 法と MAR 法では 1 セットの測定から De を決定し, SAR 法では 4 試料からそれぞれ De を決定した. 用いた試料の粒径を最終欄に示した

傾向があるので, 感度補正を行うと成長線の傾きは小さくなる. したがって, 天然 RTL 強度 (Y 軸上で 1.00) と成長線の交点から導かれる X 軸上の蓄積線量は, いずれの手法においても補正前の値より高い値となった. その上昇率は, MAAD 法, MAR 法, SAR 法でそれぞれ 59%, 16%, 12%であった. また, こうした感度補正を加えた後の蓄積線量 (De)は, 240Gy, 199Gy, 215Gy となった.

年間線量決定のため用いた値は次のとおりである. U=1.66±0.14ppm, Th=4.76±0.26ppm,

K₂O=2.04%, 含水率=0.14, 宇宙線=0.01mGy/a.

Adameic and Aitken (1988)の新コンバージョン係数を用いた計算で, 年間線量 (Da) =1.91mGy が得られた. De および Da から計算される RTL 年代は, MAAD 法, MAR 法, SAR 法の順で, 126ka, 104ka, 113ka となる. この結果は町田・新井(2003)が Toya で想定した年代, 100ka-115ka に近いといえる(表 1).

結論

本論では, 石英の RTL が熱安定性に優れ, 強いシグナルを持つ性質に注目し, 最近利用されつつある SAR 法に基づいて, Toya の年代測定を試みた. この測定のため, これまで開発した RTL 装置を用いた. 実験では, SAR 法ばかりでなく, 従来の手法である MAAD 法や MAR 法についても「Test dose 測定」による感度変化をモニターした. その結果, いずれの手法でも感度変化が起きていることが明らかとなった. 感度変化は SAR

法で最も小さく, この原因は同じ試料を用いるので, geometry に変化が生じないためと考えられる. この点から, 石英の RTL 年代測定には SAR 法が優れていると結論した. 以上の実験結果は, 最少量の石英による RTL 年代測定への道が開かれことを示している.

謝辞

本研究は 2006 年度科学研究補助金 (課題番号: 18540448) 2006 年度南北海道学術振興財団助成金を利用した. また, 放射化分析については, 2005 年度年度原研施設共同利用 (課題番号: 5126) を利用した. TL 装置開発について新潟大学の橋本哲夫先生のご援助をいただいた. 装置製作にあたっては, MEDEC K.K.にお世話になった. 以上の方々に記してお礼申し上げます.

文献

- Adamic, G. and Aitken, M., 1988, Dose-rate conversion factors: update. *Ancient TL* 16, 37-50
- Aitken, M.J., 1985, *Thermoluminescence Dating*. Academic Press, London. 359P.
- Fattahi, M., Stokes, S., 2000, Extending the time range of luminescence dating using red TL (RTL) from volcanic quartz. *Radiat. Meas.* 32, 479-485.
- Fattahi, M. and Stokes, S., 2003, Dating volcanic and related sediments by luminescence

- methods: a review. *Earth-Science Review*, 62, 229-264.
- Ganzawa, Y., Furukawa, H., Hashimoto, T., Sanzelle, S., Miallier, D., Pilleyre, T., 2005, Single grains of volcanic quartz grains from pyroclastic flows using Red TL. *Radiat. Meas.* 39, 479-487.
- Hashimoto, T., Koyanagi, A., Yokosaka, H., Hayashi, Y., Sotobayshi, T., 1986, Thermoluminescence colour images from beach sands. *Geochem. J.* 20, 111-118.
- Hashimoto, T., Kojima, M., Shirai N. and Ichino M., H., 1993, Activation Energies from Blue- and Red-TL of Quartz Grains and Mean Lives of Trapped Electrons Related to Natural Red-TL. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 21, 217-223.
- 橋本 哲夫, 中川 貴博, 薄田 隼人, 八幡 崇, 2002, 小型 X 線発生装置を搭載した蓄積放射線線量評価用ルミネセンス自動測定システムの開発. *BUNSEKI KAGAKU*, 51, 625-632.