

## 湖沼堆積物のルミネッセンス年代測定；化学分析と年間線量評価

住田亮輔\*・長谷部徳子\*\*・山本正儀\*\*・荒井章司\*

### Luminescence dating of lake sediments; chemical analysis and annual dose estimation

Ryousuke Sumita\*, Noriko Hasebe\*\*, Masayoshi Yamamoto\*\* and Shoji Arai\*

\* 金沢大学理学部地球学教室, Dept. Earth Sciences, Kanazawa Univ.

\*\* 金沢大学自然計測応用研究センター, Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa Univ.

#### はじめに

近年、人間活動の活発化に伴う二酸化炭素の増加により地球温暖化が問題視されている。将来の気候変動を予測するには、過去の気候変動の情報を得て、気候変動のモデルを構築する必要がある。湖沼堆積物のボーリングコアは環境変動の研究に利用されている。アジア大陸の内陸部に位置する世界最古のバイカル湖は堆積物の擾乱が少ないので、陸域の気候変動の情報を良い保存状態で保持し、過去数十万年～数百万年の気候変動の情報が得られるが、5万年より古い時代の放射年代の報告は少ない。

そこで本研究では放射年代値空白域を埋めるためにルミネッセンス年代測定を試みることを考え、そのために不可欠な年間線量の見積りに必要な化学分析法や計算方法の吟味を行った。放射性同位体の濃度を求めるために、従来よく用いられていた放射化分析や $\alpha$ 線測定器より簡便なLA-ICP-MSとXRFを用いた分析法を、湖沼堆積物に適用すべく新たに考案した。また、ルミネッセンス年代測定では放射平衡を仮定して年間線量を一定としている。本研究では得られた値を利用して年間線量を計算する際に、ウラン系列の放射性元素の非平衡や放射能の経年変化を考慮した厳密な計算方法を試み、従来法と比較することも目的とした。

#### ルミネッセンス年代測定

鉱物を加熱や光曝で刺激（励起）すると発光する。この発光現象がルミネッセンスと呼ばれる。

出てきた光の強さ（ルミネッセンスの量）が、天然に存在するUやThなどの放射性物質に起因する蓄積放射線量に比例することを、年代測定に応用するのがルミネッセンス年代測定である。一般的なルミネッセンス年代測定法では、ルミネッセンス強度から求めた蓄積線量を、1年間にその試料が受ける放射線量（年間線量）で除することで年代を求める。

#### 試料

本研究で用いている試料は、1998年にロシア共和国シベリア南東部の丘陵地帯に位置するバイカル湖のアカデミシャンリッジで採取された柱状堆積物試料VER98 st.5である。VER98 st.5は北緯53°44'46"、東経108°24'38"で採取されたBDP98（全長600mで長期の気候変動を記録している非常に貴重な試料）の近傍で採取された（中川、2000卒論）。試料の長さは約8mであり、柱状試料の上部から268cm付近の2C-32、308cm付近の2D-06、708cm付近の4A-18という試料を使用した。酸素同位体比から推定した年代は2C-32が110ka、2D-06が120ka、4A-18が200kaである（中川、2000修論）。

#### 実験・結果

LA-ICP-MSでの分析では、標準試料にガラスを使用するので試料も一定の固さがなければならない。また、粉末のままレーザー照射すると粉末が舞い上がる可能性があり、シグナルの不安定化や

機器の故障につながる。この問題を解消するために、粉末を圧縮してペレットにする方法を考案し、最適な作成条件を決定した。直径 8 mm のアルミチューブを長さ 3 mm に切断したものをサンプルホルダーとして使用し、乾燥させた試料を 0.5 g ほど入れて 300 kN で 30 秒間圧縮してペレットを作成した。

各試料でペレットを作成し、LA-ICP-MS で分析した。測定した同位体は  $^{29}\text{Si}$ ,  $^{43}\text{Ca}$ ,  $^{87}\text{Rb}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  であり、サンプルホルダーからのアルミなどの汚染は測定同位体とは無関係なので無視した。ペレットが均一に圧縮されているのかを確認するためにペレットの中央部 (C) および縁の部分 (E) を分析した。レーザー照射におけるレーザー径やパルス周波数などの実験条件についても吟味した。また、 $^{29}\text{Si}$  を内部標準同位体とした。XRF で主要元素を測定し、 $\text{SiO}_2$  濃度と  $\text{K}_2\text{O}$  濃度を放射性同位体濃度の計算や年間線量の見積りに利用した。LA-ICP-MS の分析精度を確認するために  $\alpha$  線測定器による測定結果との比較を行った。

レーザー照射の条件 (レーザー径やパルス周波数) によっては質量分析計に十分な試料が送り込めず、濃度の低い同位体 ( $^{234}\text{U}$ ) については検出限界を超えて測定を行えないことが分かった。しかしその条件を適切に設定することによって、濃度、同位体比とも  $\alpha$  線測定器の値と非常に近く信頼できる値を得られることが分かった。 $^{87}\text{Rb}$  については今後さらに  $^{87}\text{Sr}$  の寄与など議論する必要がある。

## 年間線量の計算

年間線量の見積もりは Adamiec and Aitken (1998) と Stokes et al. (2003) に基づく式を使用して、測定した放射性同位体濃度を利用して行った。Adamiec and Aitken (1998) は試料が放射平衡に達していることを前提に線量率を求めているのみである。Stokes et al. (2003) は非平衡に対応した年間線量の計算式を作成したが、線量の経年変化は考慮に入られていない。本研究で測定した試料では  $^{234}\text{U}$  と  $^{238}\text{U}$  が放射平衡ではないので、 $^{238}\text{U}$  系列の中で特に半減期の長い  $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{230}\text{Th}$  に注目して濃度から線量に変換する式を作成し、過去にさかのぼって経年変化する放射性同位体の濃度を考慮に入れた式を作成した。

$D_\alpha$ ,  $D_\beta$ ,  $D_\gamma$  はそれぞれ  $\alpha$  線,  $\beta$  線,  $\gamma$  線由来の放射線量であり、蓄積線量  $D_e$  が年代  $T$  から現在 ( $T=0$ ) までに受けた放射線量の積算であることを示す。

$$D_e = \int_0^T (D_\alpha(t) + D_\beta(t) + D_\gamma(t)) dt$$

その結果、測定された蓄積線量 (伊藤, 私信) を利用して年代を求めると 2C-32 が 15 ka, 2D-06 が 29 ka, 4A-18 が 24 ka であった。Adamiec and Aitken (1998) の方法で計算すると 2C-32 が 11 ka, 2D-06 が 16 ka, 4A-18 が 21 ka となった。酸素同位体比年代と比較して (両計算方法とも) 相当に若いものの、本研究の方法がより厳密な値を見積

表 1. 測定した濃度と  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  放射能比

		$^{87}\text{Rb}$ (ppm)	$^{232}\text{Th}$ (ppm)	$^{234}\text{U}$ (ppm)	$^{238}\text{U}$ (ppm)	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比
2C-32	A	274.7 ± 5.1	33.6 ± 1.2	(7.6 ± 0.8) × 10 <sup>-4</sup>	12.1 ± 0.8	1.15 ± 0.18
	B		31.6 ± 0.9	(5.7 ± 0.2) × 10 <sup>-4</sup>	9.3 ± 0.4	1.13 ± 0.04
2D-06	A	66.3 ± 5.5	7.6 ± 1.0	(8.4 ± 1.1) × 10 <sup>-4</sup>	10.4 ± 1.8	1.55 ± 0.10
	B		9.4 ± 0.5	(9.1 ± 0.5) × 10 <sup>-4</sup>	10.7 ± 0.6	1.57 ± 0.08
4A-18	A1	130.1 ± 3.9	14.7 ± 2.8	(10.7 ± 1.2) × 10 <sup>-4</sup>	18.2 ± 2.4	1.11 ± 0.44
	A2	122.5 ± 4.1	14.0 ± 0.6	(13.1 ± 0.7) × 10 <sup>-4</sup>	17.3 ± 0.6	1.38 ± 0.10
	B		16.4 ± 0.9	(10.4 ± 0.5) × 10 <sup>-4</sup>	14.4 ± 0.7	1.35 ± 0.05

A: LA-ICP-MS 測定, B:  $\alpha$  線測定器による。

A1 はレーザーの照射条件が十分でなく適切な値が得られなかった例である。

もることができる。一方, Stokes et al. (2003)の方法を用いると本研究の値とあまり変わらなかったため、濃度の経年変化の影響は小さいことも分かった。

## まとめ

堆積物を圧縮ペレット化することで LA-ICP-MS による微量同位体分析が可能になった。LA-ICP-MS で測定した濃度は  $\alpha$  線測定器で測定した濃度と大きな差異がなく信頼できる結果が得られた。ただし、濃度の低いもの (例えば  $^{234}\text{U}$ ) を測る際はレーザー照射のときレーザー径やパルス周波数を適切に設定する必要がある。

## 謝辞

本研究の一部は三谷研究開発支援財団の平成 17 年度研究助成金によった。

## 文献

- Adamic, G. and Aitken, M., 1998, Dose-rate conversion factors: update. *Ancient TL*, 16, 37-50.
- 中川裕文, 2000, バイカル湖底堆積物の分析に基づく過去数十万の陸水・気候シグナル. 金沢大学修士論文
- Stokes, S., Ingram, S., Aitken, M.J., Sirocko, F., Anderson, R. and Leuschner, D., 2003, Alternative chronologies for Late Quaternary (Last Interglacial – Holocene) deep sea sediments via optical dating of silt-sized quartz. *Quaternary Science Reviews*, 22, 925-941.