

熱ルミネッセンス法 (石英粗粒子法) による火山灰の年代測定  
——日本地質学会第 93 年会シンポジウム『100 万年前より新しい試料の  
地質年代測定』ブライントテスト用パミスタフを試料として——

平賀 章三\*・市川 米太\*\*

Thermoluminescence dating of the pumice-tuff for the blind test  
by the quartz inclusion method

Shozo HIRAGA\* and Yoneta ICHIKAWA\*\*

**Abstract** The pumice-tuff for the blind test is dated by the quartz inclusion method. The samples were collected in Omachi city, Nagano Prefecture, and their ages are assumed to be 0.3 to 0.4 Ma geologically. The assessed TL age is  $0.29 \pm 0.03$  Ma (11% error). If the dry condition had been continued over the geological time, the expected age is  $0.26 \pm 0.02$  Ma (7%), otherwise for wet condition  $0.32 \pm 0.02$  Ma (7%) is expected.

In this TL dating, taking account of the propagation of error, the associated error is assessed, based on the experimental error due to the reproducibility of the TL intensity. The method of error assessment is described in detail on each stage of TL dating.

Thus it was revealed that the quartz inclusion method is useful with the sufficient precision for the age of the order of  $10^5$  year, though depending on the TL characteristic of the sample.

## I. 序 論

1986 年 5 月の山形大学で開催された日本地質学会のシンポジウム『100 万年前より新しい試料の地質年代測定』において、各種年代測定法の相互比較を目的としたブライントテストが計画された。今回報告するのは、カリウム-アルゴン法・フィッシュントラック法・ESR (電子スピン共鳴) 法・熱ルミネッセンス (以下 TL と略す) 法で検討されたパミスタフ: AIPm の TL 年代測定結果である。

TL 法には石英粗粒子法・微粒子法および長石法等の絶対年代測定法があるが、今回採用したのは石英粗粒子法である。100  $\mu$ m 程度の石英粒子を試料とするこの TL 法は、ICHIKAWA (1965) によって開発され、FLEMING (1970) によって発展させられたものであり、1970 年代に入って、土器・焼石等を試料として考古年代の測定に適用されてきた。

石英の TL の 375°C ピークが  $10^7$  年オーダーまで安

定であることや (FLEMING, 1969), この TL 強度の吸収線量に対する直線 (比例) 性が  $10^3$  Gy 程度まで保たれていることから、市川・萩原 (1978) はこの方法を地質年代の測定にまで拡張することを試みた。この時は南九州の火砕流等を試料として、5 千~12 万年に亘る TL 年代が求められた。放射年代測定法において、 $^{14}\text{C}$  法は約 5 万年までが測定可能であり、カリウム-アルゴン法やフィッシュントラック法は一般的には 100 万年より古い年代測定に適しているので、この間の年代を TL 法によって埋めようというのが目的であった。

なお、このような年代の試料に対して、どの程度の精度でものを言えるのかを明らかにするために、本報告では TL 年代測定の各段階における誤差の評価法を記し、またそれが結果としての TL 年代の誤差にどのように反映するのかも詳述した。

## II. 試料および試料調整法

シンポジウムの席上で初めて明らかにされたところによると、今回測定に供した試料は長野県大町市で採取されたもので、リス・ウルム間氷期より古く 30~40 万年程度の年代が、地質学的には期待されるとのことであっ

\* 奈良教育大学地学教室。Department of Earth Science, Nara University of Education, Nara, 630 Japan.

\*\* 奈良教育大学物理学教室。Department of Physics, Nara University of Education, Nara, 630 Japan.

た、このパミスタフは石英・カリ長石・斜長石・黒雲母等の粗粒の鉱物および火山ガラスから成り、タフとしては比較的多量の石英粒子を含んでいたため、石英粗粒子法を適用するのに都合の良い試料であった。

石英粗粒子を取り出すために、今回採用した試料調整法の実際は下記の通りである。①パミスタフ中の粘土成分を水簸により除去。②恒温槽中で 50°C 約 1 日間放置して乾燥。③石英粒子をなるべく砕かぬように注意して、試料をハンマーで押し分散。④篩により #28(590 μm)以上・#28~#70(590~210 μm)・#70~#100(210~149 μm)・#100~#200(149~74 μm)に篩分。⑤電磁分離機により有色鉱物を除去。最初 0.5 A で大まかに分離、再度 1.0 A で精選。⑥無色鉱物を 48% HF 溶液で 30 分間酸処理し長石を分解。⑦アセトン中で 15 分間超音波洗浄し 50°C で乾燥。⑧酸処理で生成した石英表面のフッ化物あるいは分解した長石を完全に細粉化するために乳鉢で軽く摩砕。⑨再度、篩分・超音波洗浄・乾燥。⑩試料調整の結果をチェックするため、試料の一部分を偏光実体顕微鏡下で観察。

上記の試料調整法に基づいて得られた各粒度区分のうち、#70~#100 のものについて今回測定した。もっとも望ましい #100~200 の粒度の試料は十分な量がなく、より粗粒な試料においては β 線量の減衰が顕著になるためこの粒度のものが選ばれた。なお、ブラインドテスト用として送付された 2 試料 1-2・1-4 は、本来同一試料ということであった。したがって、スーパーラニアリティの補正值あるいは β 線による年間線量の評価等は、1 試料についてのみ行いその値を両試料で共用することにした。

### III. パレオドースの評価

試料が地質年代に互って受けてきた総線量、パレオドース  $PD$  は、等価線量  $ED$  とスーパーラニアリティ補正值  $I$  を用いて次式で与えられる。

$$PD = ED + I \quad (1)$$

また、この誤差  $\sigma(PD)$  は、 $ED$  および  $I$  の誤差をそれぞれ  $\sigma(ED)$ 、 $\sigma(I)$  として次式で与えられる。

$$\sigma(PD) = \sqrt{\sigma^2(ED) + \sigma^2(I)} \quad (2)$$

#### III.1 等価線量の評価

線量を評価するための TL 測定には、HARSHAW 社製 2000 型 TL 線量計を用いた。この装置は、2000A 型 TL 検出器と、2000B 型精密積算ピコアンメーターで構成されており、さらにグローカーブを得るため、X-Y レコーダーに接続されている。もちろん、等価線量のみならずスーパーラニアリティ補正值、あるいは TL

線量計を用いて β 線や γ 線による年間線量を見積もる際にも、この装置を使用した。なお、本装置のフィルターは、370~500 nm にフラットな、また 550 nm にシャープな透過領域を有するものである。

等価線量の評価は、試料のアニーリング処理による TL 効率の変化を避けるため、付加法による。試料調整によって得られた試料を縮分器により等分し、それぞれの部分の試料に対しコバルト-60 γ 線を照射した。与えるべき付加線量は、試料から取り出したままの石英粒子の TL 強度から推定した。すなわち、今回についてはそれぞれの試料に対し、200・400・600・800・1000・1200 Gy を付加した。なお γ 線の照射は、広島大学原爆放射能医学研究所にて行われた。

試料 1-4 の場合を例として、得られたグローカーブを Fig. 1 に示してある。図中のカーブ N は付加線量を与えなかった試料、N+2・N+4...等は各々 200・400... Gy の付加線量を与えた試料からのグローカーブである。実際の測定では、各部分の試料を分割器により等分した約 20mg を用い、昇温率 9°C/s で加熱してそれぞれ数本のグローカーブを記録した。図には N ならびに各付加線量に対する平均的グローカーブを示した。図に示されているように、今回の石英試料のグローカーブは、190・230 および 375°C 付近にピークが認められ、等価線量の評価に必要な 375°C ピークが特に顕著であった。試料 1-2 からのグローカーブも、当然のことながら試料 1-4 の場合と同様であった。

Fig. 1 には、一例としてカーブ N の N+6 に対する TL 強度比を温度の関数として表した、プラトテストの結果も示してある。図で明らかなように、300~400°C の温度領域でグローカーブは安定であることが実証された。したがって、予測される年代に対して十分に長い、10<sup>7</sup> 年オーダーの寿命を有する捕獲電子による 375°C ピーク (FLEMING, 1969) の高さを用いて、TL 強度の読みとりを行い付加法による成長曲線を得た。Fig. 2 に、試料 1-4 の場合の実例を示してある。

各 TL 強度測定値に付随する誤差は、数本のグローカーブを読みとった際の標準標準偏差である。N+800 Gy の TL 強度は、誤差を考慮しても成長曲線にかかっておらず、試料 1-2 の場合にはさらに顕著であった。これは、上述の付加線量が 800 Gy に達していなかったためであるかもしれない。この点については別の考え方もあり、VI 章でさらに考察を加える。

付加法では、成長曲線の直線(比例)領域を外挿して X 軸との交点を求めることにより等価線量を得る。Fig. 2 で明らかなように、N+600 Gy の線量までは充分この

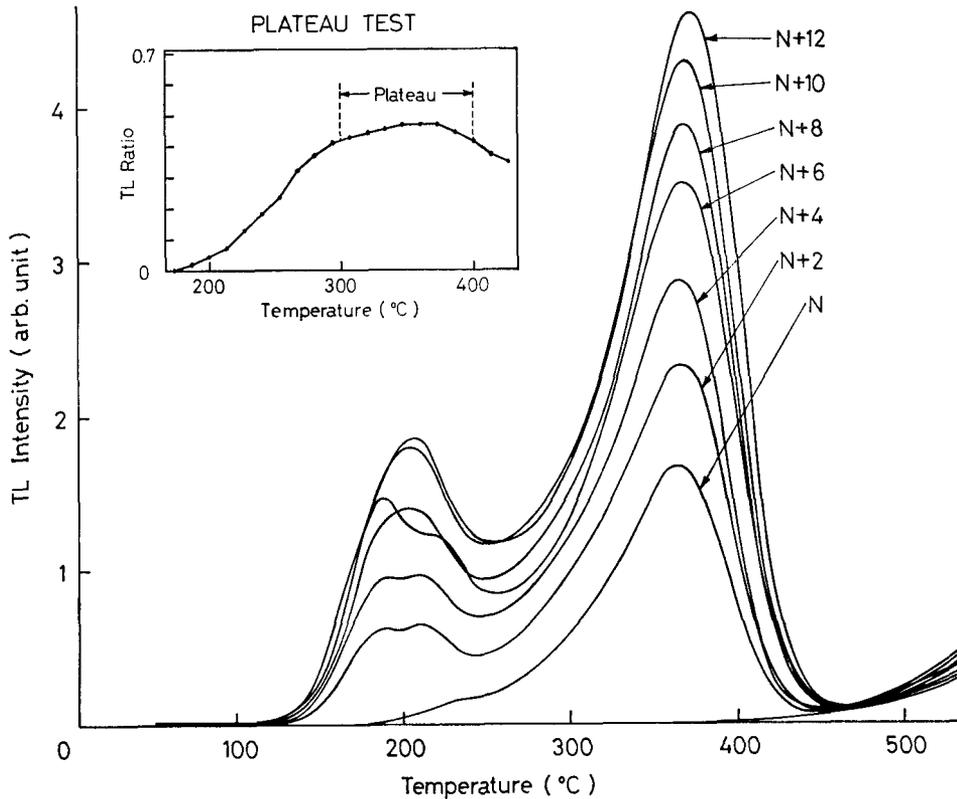


Fig. 1 TL glow-curves and plateau test of the quartz from pumice-tuff for the blind test. Curve N is the natural glow-curve and curves N+2·N+4…… are the natural plus artificial (200·400……Gy) ones, respectively; red-hot glow is also shown. TL ratio in plateau test represents the ratio of two glow-curves N and N+6.

直線領域にあると判断された。したがって、都合4つの測定点をもっとも良く近似する直線を、最小二乗法により求めた。等価線量  $ED$  の解析的表現は、 $R_i$ 、 $T_i$  を測定点  $i$  の付加線量および TL 強度とし、 $n$  を測定点数とすると、次式で与えられる。

$$ED = \frac{1}{n} \left( \frac{1}{a} \sum T_i - \sum R_i \right) \quad (3)$$

$$a = \frac{n \sum R_i T_i - (\sum R_i)(\sum T_i)}{n \sum R_i^2 - (\sum R_i)^2} \quad (4)$$

ここで、 $a$  は比例領域を表す直線の勾配である。

各測定点における TL 強度の誤差は、当然のこと等価線量の誤差の評価に反映してくる。誤差の伝播を考慮して、等価線量の評価誤差  $\sigma(ED)$  は次式で求めた。

$$\sigma(ED) = \sqrt{\sum \left( \frac{1}{a} \frac{\sum R_i T_i - (\sum T_i) R_i}{n \sum R_i T_i - (\sum R_i)(\sum T_i)} \right)^2 \sigma^2(T_i)} \quad (5)$$

ここで、 $\sigma(T_i)$  は測定点  $i$  における TL 強度の誤差で

ある。

上述の方法に従って、試料 1-2 および 1-4 の等価線量ならびにその評価誤差を求めた。ところで、これら2試料は本来同一のものであったので、平均の等価線量  $ED_m$  とその評価誤差  $\sigma(ED_m)$  も、次式に従って求めることにした。

$$ED_m = \frac{1}{2} (ED_1 + ED_2) \quad (6)$$

$$\sigma(ED_m) = \frac{1}{2} \sqrt{\sigma^2(ED_1) + \sigma^2(ED_2)} \quad (7)$$

ここで、 $ED_1$ 、 $ED_2$  および  $\sigma(ED_1)$ 、 $\sigma(ED_2)$  は、各試料の等価線量と、その評価誤差である。

### III.2 スーパーリニアリティ補正値の評価

吸収線量と TL 強度の間の比例(直線)性からのずれによる誤差を見積もるため、スーパーリニアリティ補正値を実験的に求めた。まず試料を 500°C で 20 分間アニール処理し、捕獲電子をすべてトラップから放出さ

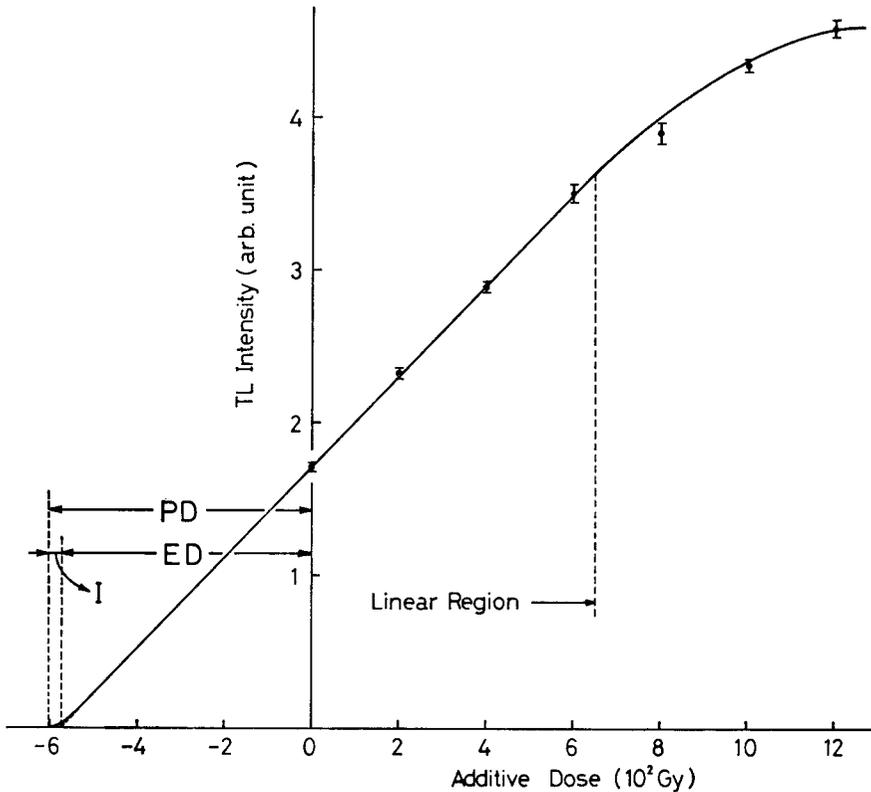


Fig. 2 First-glow growth characteristic for evaluation of the equivalent dose  $ED$  of the quartz from pumice-tuff for the blind test.

$PD$  and  $I$  represent the paleodose and the supralinearity correction, respectively.

せ熱発光量ゼロの状態にした。次にこの試料に 25・50・100・250・500 Gy をコバルト-60  $\gamma$  線により付加し、それらの TL 強度を測定した。その結果を基にして得られた成長曲線を Fig. 3 に示してある。高線量域ではきわめて良い直線性が認められたが、低線量域において成長曲線が原点をわずかに外れていたため、スーパーラニアリティに対する補正を行った。

スーパーラニア現象はより低線量域で顕著なものであるから、確実に直線領域とみなされるべき、より高線量域のデータを外挿しなければならない。100・250・500 Gy に対する 3 測定点を用い、等価線量の評価の場合と同様にして、スーパーラニア補正值  $I$  とその評価誤差  $\sigma(I)$  を求めた。なお、(4)式で示される直線の勾配からみると、アニーリング処理による若干の TL 効率の上昇が推察された。しかしこれを考慮するすべがないため、上述の方法で得た値をもってスーパーラニア補正值とすることにした。

#### IV. 実効年間線量の評価

試料調整における HF 処理によって、石英粒子の表面層はエッチングされているから、 $\alpha$  線による年間線量への寄与は無視できる。したがって、石英粗粒子法における実効年間線量  $D_r$  は、 $\beta$  線の年間線量  $D_\beta$  と、 $\gamma$  線および宇宙線の年間線量  $D_\gamma + D_c$  を用い、さらに石英粒径に依存する  $\beta$  線量の減衰に関する補正係数を  $k'$  として、次式で与えられる。

$$D_r = k' D_\beta + (D_\gamma + D_c) \quad (8)$$

また、この誤差  $\sigma(D_r)$  は、 $D_\beta$  および  $(D_\gamma + D_c)$  の誤差をそれぞれ  $\sigma(D_\beta)$ 、 $\sigma(D_\gamma + D_c)$  とし、さらに係数  $k'$  の誤差を  $\sigma(k')$  とすれば次式で与えられる。

$$\sigma(D_r) = \sqrt{(D_\beta \sigma(k'))^2 + (k' \sigma(D_\beta))^2 + \sigma^2(D_\gamma + D_c)} \quad (9)$$

##### IV.1 $\beta$ 線の年間線量の評価

$\beta$  線の年間線量の評価には、TL 線量計による直接法を採用し、市川・平賀(1988)に示された方法によった。

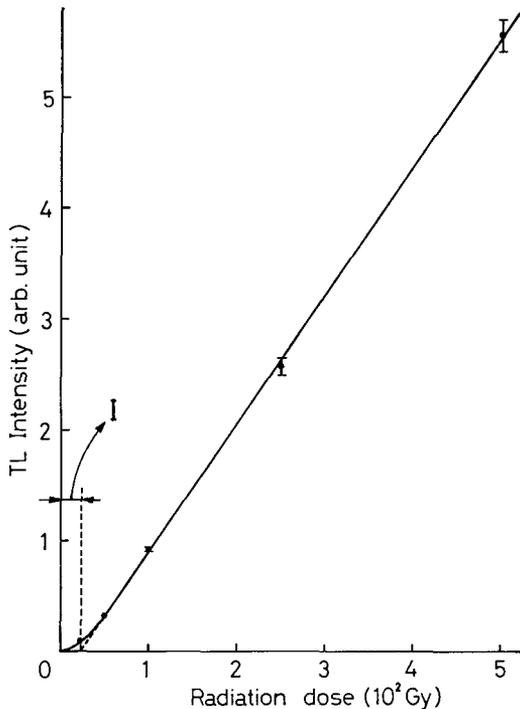


Fig. 3 Second-glow growth characteristic for evaluation of the supralinearity correction  $I$  of the quartz from pumice-tuff for the blind test.

原試料を粉碎しプレス成形した円板状のものを線源とし、線量計には  $450^{\circ}\text{C}$  で5分間アニーリング処理を行った  $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$  を用いた。被曝期間 17 日の後、線量計の TL 強度  $T_{\beta}$  を測定し、次式に基づいて  $\beta$  線の年間線量  $D_{\beta}$  を算出した。

$$D_{\beta} = 1.13 f_{\beta} T_{\beta} \quad (10)$$

ここで、1.13 は試料からの  $\alpha$  線を吸収させるために用いたポリエチレンシート(厚さ  $3.5\text{mg}/\text{cm}^2$ )による  $\beta$  線の減衰、およびエッチング効果を補正する係数である (ICHIKAWA & NAGATOMO, 1978)。また比例定数  $f_{\beta}$  は、1 Gy の線量を与えて測定した TL 強度で較正するための係数と、被曝期間を1年間に換算する係数とを含んでいる。なおこの TL 線量計の較正のための照射には、電子技術総合研究所大阪支所のコバルト-60 の基準線源が用いられた。

厳密に言えば、(10)式の係数 1.13 や比例定数  $f_{\beta}$  にも誤差が存在するが、TL 強度の再現性の良否が  $D_{\beta}$  の誤差  $\sigma(D_{\beta})$  にもっとも反映するであろう。したがって、これら両係数は実質的に誤差ゼロとみなし、 $\sigma(D_{\beta})$  を次式で算出することにした。

$$\sigma(D_{\beta}) = 1.13 f_{\beta} \sigma(T_{\beta}) \quad (11)$$

ここで、 $\sigma(T_{\beta})$  は測定した TL 強度の誤差である。

試料石英が受ける  $\beta$  線量はその環境の含水量に大きく依存する。 $\beta$  線の年間線量を評価するに際し、その上・下限をおさえることを目的として、乾燥した円板と飽和含水量の近くまで湿らせたものの2線源を用意し測定を行った。実際の  $\beta$  線の年間線量はこの両極端の値の中間に位置する、と考えるのはきわめて妥当なことと思われる。したがって  $\beta$  線の平均的年間線量  $D_{\beta-m}$  およびその評価誤差  $\sigma(D_{\beta-m})$  を、次式に従って求めることにした。

$$D_{\beta-m} = \frac{1}{2} (D_{\beta-d} + D_{\beta-w}) \quad (12)$$

$$\sigma(D_{\beta-m}) = \sqrt{\frac{(D_{\beta-d} - D_{\beta-m})^2 + (D_{\beta-w} - D_{\beta-m})^2}{2}} \quad (13)$$

ここで、 $D_{\beta-d}$  と  $D_{\beta-w}$  は、それぞれ乾燥した線源と湿った線源により得られた  $\beta$  線の年間線量である。

ところで(8)(9)式における  $k'$ 、 $\sigma(k')$  の評価は以下の方法によった。MEYDANL(1979)は、 $\beta$  線の線量が石英の粒径によりどう減衰するかを2種の典型的な基質の放射性核種の組成に対して計算している。彼の計算結果を図示すると、Fig. 4 のようになる。今回使用したバミスタフの化学組成はつまびらかではないが、この結果を代用しても大きな違いはないと判断し、 $149\sim 210\ \mu\text{m}$  に対する減衰率をそれぞれ内挿して求めた。得られた都合4つの値のうち最大および最小の値を選び、この平均値と標準偏差をまず求めた。次に、TL 線量計の粒径は  $74\sim 149\ \mu\text{m}$  であるから、この粒径に対する減衰率等を同様にして求めた。そして試料石英における相対的減衰率  $k'$  を両減衰率の比から算出し、また誤差の伝播を考慮してその評価誤差  $\sigma(k')$  を求めた。

#### IV.2 $\gamma$ 線および宇宙線の年間線量の評価

$\gamma$  線および宇宙線の年間線量の評価にも、TL 線量計による直接法を採用し、市川・平賀(1988)に示された方法によった。 $\beta$  線の場合と同様、線量計には  $450^{\circ}\text{C}$  で5分間アニーリング処理を行った  $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$  を用い、これは、ブライントテスト企画者に送付、試料採取現地に72日間埋設後回収された。この線量計の TL 強度  $T_{\gamma+c}$  を測定し、次式に基づいて  $\gamma$  線および宇宙線の年間線量  $D_{\gamma} + D_c$  を算出した。

$$D_{\gamma} + D_c = f_{\gamma+c} T_{\gamma+c} \quad (14)$$

ここで、比例定数  $f_{\gamma+c}$  は、1 Gy の線量を与えて測定した TL 強度で較正するための係数と、被曝期間を1年間に換算する係数とを含んでいる。実際の埋設期間は72日であったが、地層の含水量変動の影響を考えると

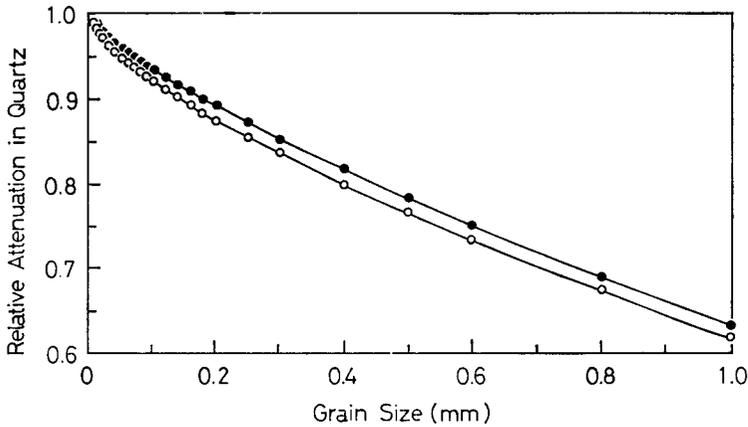


Fig. 4 Relative attenuation fractions in quartz grains for two concentrations of radio-nuclides.

Black circles are for concentrations (by weight) 12 ppm Th, 3 ppm U, 2%  $K_2O$ ; open circles for 12 ppm Th, 3 ppm U, 1%  $K_2O$ . From МЕЙДАН, 1979.

1年間の埋設が望ましいことは言うまでもない。なお  $f_{T+c}$  の算出にあたっては、測定までに要した旅行日を考慮し 80 日の被曝期間とした。

また、 $D_T + D_c$  の誤差  $\sigma(D_T + D_c)$  の評価は、 $\beta$  線の場合と同様の考察に基づき次式で算出することにした。

$$\sigma(D_T + D_c) = f_{T+c} \sigma(T_{T+c}) \quad (15)$$

ここで、 $\sigma(T_{T+c})$  は測定した TL 強度の誤差である。

$\gamma$  線および宇宙線の年間線量を評価するために今回測定した、TL 線量計  $CaSO_4 : Tm$  のグローカーブを Fig. 5 に示してある。図のカーブ①と②は、それぞれ実際現地で埋設された 2 本の線量計から得られた、2 および 3 本の平均的グローカーブである。埋設場所がほとんど離れていなかったことを反映してきわめて再現性が良かったため、(14)(15)式の  $T_{T+c}$ 、 $\sigma(T_{T+c})$  の算出は、これら 5 本のピークを等価に評価して行った。なお図のカーブ③は、埋設される機会を得られなかった線量計の示したグローカーブであり、ブラインドテスト企画者の研究室における  $\gamma$  線および宇宙線のレベルを示している。試みに年間線量を算出してみるとほぼ  $700(\pm 10) \mu Gy/a$  の値が得られた。

## V. 結果：TL 年代の評価

TL 年代は、パレオドースを実効年間線量で除した商として与えられる。したがって、Ⅲで示した(1)(2)式およびⅣで示した(8)(9)式から、TL 年代  $A$  とその評価誤差  $\sigma(A)$  を、次式に基づいて算出した。

$$A = PD/D_T \quad (16)$$

$$\sigma(A) = A \sqrt{\left(\frac{\sigma(PD)}{PD}\right)^2 + \left(\frac{\sigma(D_T)}{D_T}\right)^2} \quad (17)$$

上述の方法に従って評価した試料 1-2・1-4 および平均の各 TL 年代を、乾燥した環境・湿った環境および平

均的環境それぞれにおける場合について、Table 1 にまとめて示してある。また表には、各 TL 年代を評価する際に基礎となった、パレオドースや実効年間線量等も共に示してある。各 TL 年代は Ma 単位で、パレオドース・等価線量・スーパーリアリティ補正値は  $10^2 Gy$  単位、年間線量等は  $mGy/a$  単位で表示してある。なお、括弧内の数字はそれぞれの誤差率をパーセントで表したものである。

Table 1 に示されたように、今回測定したブラインドテスト用バミスタフの TL 年代は、 $29 \pm 3$  万年(誤差率 11%)と評価された。地質年代に互って、乾燥した環境が継続していたとするならば  $26 \pm 2$  万年(同 7%)、湿った環境が継続していたとするならば  $32 \pm 2$  万年(同 7%)が、期待される TL 年代である。

## VI. 考察および結論

今回のブラインドテストに供された、バミスタフの TL 年代評価にかかわる問題点について、以下若干の考察を加える。

第一に、Fig. 1 のカーブ N+6 についてである。200°C 付近のピークを見ると、付加線量の増加に伴い他のピークの形は、230°C ピークの方が 190°C ピークよりも顕著になっているのに対し、N+6 だけが異質である。これは試料調整が拙く、この試料のみがわずかながら不純物を含んでいたためと考えられる。より高温領域においてカーブ N+8 にかなり接近しているのも、同様の理由からであろう。ただし、今回の等価線量の評価は、ピーク面積の積分値ではなくピークの高さに基づいているため、さほどの影響は無かったと考えている。375°C ピークの TL 強度の過大評価がしいてあったとするならば、もう少し古い TL 年代が期待されるであらう。

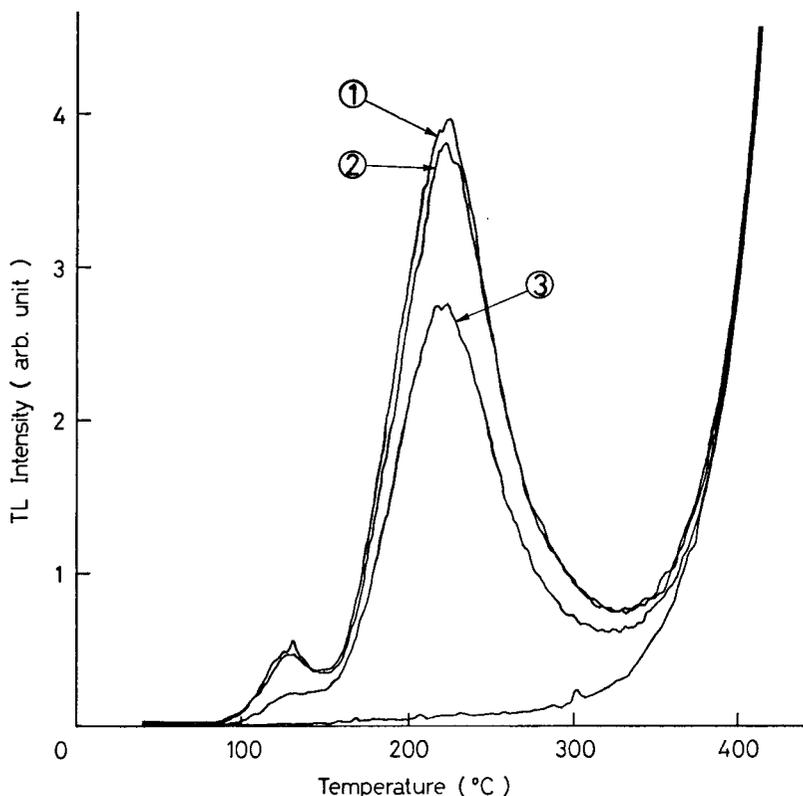


Fig. 5 Glow-curves from TL dosimeter phosphor  $\text{CaSO}_4 : \text{Tm}$  for evaluation of the gamma dose-rate.

Curves ① and ② are obtained from the TL dosimeter buried over 72 days at the sampling site in Omachi city, Nagano Prefecture. Curve ③ is obtained from the TL dosimeter not buried but left in the blind test planner's room; the red-hot glow is also shown.

う。

第二に、付加法による成長曲線 Fig. 2 についてである。付加線量 800 Gy に対する TL 強度が少しばかり低いことについて、付加線量が 800 Gy に達していなかったからかもしれないと III.1 節で述べた。しかし、1000 あるいは 1200 Gy の付加線量に対する TL 強度は、高線量付加によるトラップ数の増加のため、TL 効率が上昇して大きくなっているとも考えられる。しかも上述のように  $N+600$  Gy の TL 強度を過大評価していると考えれば、 $N+800$  Gy の TL 強度は正しい値であるかもしれない。したがって直線(比例)領域はもう少し低線量域に限られることになるが、等価線量の評価には実質的影響を与えないであろう。

Fig. 2 に示した付加法による成長曲線では、付加線量約 800 Gy から飽和に至るサブリンニア領域が認められ

る。また上述のように考えるならば、さらに低付加線量の約 600 Gy からサブリンニア領域であるとみなされる。このサブリンニア領域のデータも含めて、最小二乗法により指数関数に回帰させ、等価線量を評価することも行われている(例えば、HUXTABLE & AITKEN, 1977; VALADAS & GILLOT 1978)。また、一つの TL 強度式でスーパーリンニア領域からサブリンニア領域までを、カバーする試みもなされている(萩原ら, 投稿中)。もしこれらの方法によって等価線量を評価したならば、もう少し若い TL 年代が期待されるであろう。

第三に、 $\gamma$ 線および宇宙線の年間線量の評価についてである。IV.2 節で述べたように、TL 線量計の現地における埋設は 72 日間であった。実際の 1/30~4/12 の期間が、地層の含水量変動の年間平均値を保証しているかどうか定かではない。この期間が、1年のうちで地

Table 1 TL dating of the pumice-tuff for the blind test.

(a) Evaluated paleodose.

Sample	ED (10%Gy)	I (10%Gy)	PD (10%Gy)
1-2	6.1±0.7(11)	0.24±0.05(23)	6.3±0.7(11)
1-4	5.8±0.3( 5)		6.0±0.3( 5)
MEAN	5.9±0.4( 6)		6.2±0.4( 6)

ED : Equivalent dose. I : Supralinearity correction value.

PD : Paleodose. MEAN : Based on the mean ED.

(b) Evaluated effective dose rate under various climatic conditions.

Climate	k'	D <sub>β</sub> (mGy/a)	D <sub>γ</sub> +D <sub>c</sub> (mGy/a)	D <sub>r</sub> (mGy/a)
dry	0.97±0.03( 4)	1.41±0.04( 3)	0.97±0.02( 2)	2.34±0.07( 3)
wet		1.01±0.06( 5)		1.95±0.07( 3)
mean		1.2 ±0.2 (17)		2.1 ±0.2 ( 9)

k' : Correction factor for grain size. D<sub>β</sub> : Dose rate of β-rays.D<sub>γ</sub>+D<sub>c</sub> : Dose rate of γ- and cosmic rays. D<sub>r</sub> : Effective dose rate.

(c) Assessed TL age under various climatic conditions in Ma unit.

Sample	dry	wet	mean
1-2	0.27±0.03(11)	0.32±0.04(11)	0.29±0.04(14)
1-4	0.26±0.01( 5)	0.31±0.02( 6)	0.28±0.03(10)
MEAN	0.26±0.02( 7)	0.32±0.02( 7)	0.29±0.03(11)

All the values in parentheses are error percent.

層の含水量の多い時期であるならば、もう少し若い TL 年代が期待され、逆に少ない時期であるならば、もう少し古い年代が期待される。いずれにせよ、γ線および宇宙線の年間線量については TL 年代の評価誤差は、もう少し大きな値であるというのが実際のであろう。

最後に、V 節で示した結果は、地質学的に期待されていた 30~40 万年程度の年代の下限に近い値である。平均の TL 年代を評価するにあたり、今回は III.1 で述べたように、各試料の等価線量それぞれを等価に評価した平均値を用いた。もし精度に応じた重みを付けて平均をとっていたならば、もう少し若い TL 年代が得られていたであろう。どの程度年代が若くなるかを、通常の TL

年代の平均値ならびにその誤差を求める方法(AITKEN & ALLDRED, 1972; AITKEN, 1976, 1985) に従って評価してみた。Table 1 に示した値と共に結果を図示すると、Fig. 6 のようになる。誤差の有効数字 1 桁で見ると、湿った環境が継続していたとする場合に期待される年代が、31 万年とやや若くなった以外は変化がなかった。ただ明らかに評価誤差は小さくなっており、乾燥した環境・湿った環境・平均的環境それぞれに対し、±1 万年(誤差率 5%)・±2 万年(同 5%)・±2 万年(同 9%)であった。

最初に述べた TL 年代に影響を及ぼす二つの問題点は互いに相殺されるセンスにあり、最後に述べた評価誤差

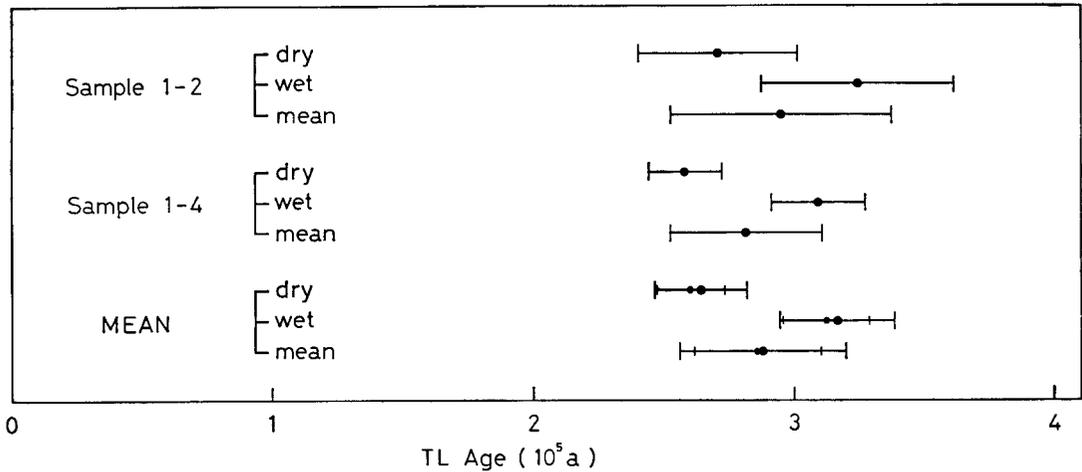


Fig. 6 TL age under the various climatic conditions of the pumice-tuff for the blind test.

Samples were collected in Omachi city, Nagano Prefecture. MEAN is based on the mean equivalent dose of the samples 1-2 and 1-4. In MEAN age, the small circles and short error bars represent the weighted mean and overall error assessed after AITKEN, 1985.

に影響を及ぼす二つの問題点も互いに相殺されるセンスにある。結局、スーパーリアリティ補正值・ $\beta$ 線の年間線量等を各試料ごとに評価しなかった今回、Table 1に示された TL 年代およびその評価誤差が、妥当な値であろうと思われる。さらにあえて言えば、試料採取地点は積雪の多い地域にあり、平均的環境よりもやや湿った環境が継続していたと考えるのが、より实际的であろう。すなわち、今回測定したパミスタフの TL 年代は  $29 \pm 3$  万年(誤差率 11%)であったが、もう少し古い値がより妥当かもしれない。

## VII. ま と め

ブラインドテスト用として送付されたパミスタフの TL 年代を、石英粗粒子法により測定した。試料は長野県大町市で採取されたもので、地質学的には 30~40 万年程度の年代が期待されていたものである。評価された TL 年代は、 $29 \pm 3$  万年(誤差率 11%)であった。乾燥した環境が地質時代に互って継続していたとした場合に期待される年代は、 $26 \pm 2$  万年(同 7%)であり、湿った環境の継続を想定した場合には、 $32 \pm 2$  万年(同 7%)が期待された。

今回の TL 年代測定における誤差は、TL 強度の再現性に由来する実験誤差の伝播を考慮して評価された。また、TL 年代測定の各段階における誤差の評価法を詳述した。ちなみに、等価線量の評価誤差は(5)式のように定式化された。この誤差評価法を用いれば、各試料ごと

に、測定結果に基づいた誤差をより直接的に評価できる。

試料の TL 特性にもよるが、このようにして、石英粗粒子法は数十万年オーダーの年代に対しても十分な精度を持ち、有効であることがわかった。

**謝 辞** この論文をまとめるにあたり、試料調整から TL 測定にいたるまで多大なお世話をいただいた奈良教育大学物理学教室の佐野勝典君、図を清書していただいた同地学教室の森田真視君に、厚くお礼を申し上げる。また、 $\gamma$ 線の照射をしていただいた広島大学原爆放射能医学研究所の星正治氏、TL 線量計の較正のための照射をしていただいた電子技術総合研究所大阪支所に対して、厚くお礼を申し上げる。

## 文 献

- AITKEN, M. J., 1976 : Thermoluminescent age evaluation and assessment of error limits : revised system. *Archaeometry*, **18**, 233-238.
- , 1985 : Thermoluminescence dating. 359p., *Academic Press, London*.
- and ALLDRED, J. C., 1972 : The assessment of error limits in thermoluminescent dating. *Archaeometry*, **14**, 257-267.
- FLEMING, S. J., 1969 : The acquisition of radioluminescence by ancient ceramics. *D. Phil. thesis, Oxford University*.
- , 1970 : Thermoluminescent dating : refinement

- of the quartz inclusion method. *Archaeometry*, **12**, 133-147.
- 萩原直樹・平賀章三・市川米太, 1988: パレオドースの新評価法——熱ルミネッセンス法の適用年代拡張の試み——. 岩石鉱物鉱床学会誌 (投稿中).
- HUXTABLE, J. and AITKEN, M. J., 1977: Thermoluminescent dating of Lake Mungo geomagnetic polarity excursion. *Nature*, **265**, 40-41.
- ICHIKAWA, Y., 1965: Dating of ancient ceramics by thermoluminescence. *Bulletin of the Institute for Chemical Research, Kyoto University*, **43**, 1-6.
- and NAGATOMO, T., 1978: Thermoluminescence dating of burnt sandstone from Senpukuji Cave. *PACT*, **2**, 174-178.
- 市川米太・萩原直樹, 1978: 熱ルミネッセンス法による焼土・焼石の年代測定. 考古学と自然科学, **11**, 1-7.
- ・平賀章三, 1988: 熱ルミネッセンス法. 地質学論集, no. 29, 73-82.
- MEJDAHL, V., 1979: Thermoluminescence dating: beta-dose attenuation in quartz grains. *Archaeometry*, **21**, 61-72.
- VALLADAS, G. and GILLOT, P. Y., 1978: Dating of the Olby lava flow using heated quartz pebbles: some problems. *PACT*, **2**, 141-150.