

## ルミネッセンス年代測定における年間 $\alpha$ 線量の粒径依存性の検討と準微粒子法への適用

長友恒人・下岡順直\*・小林由弥\*\*  
奈良教育大学教育実践開発講座(古文化財科学)  
(平成16年5月6日受理)

### Correction Factor for $\alpha$ Dose Rate in Luminescence Dating with Semi-fine Grain

Tsuneto NAGATOMO, Yorinao SHITAOKA\* and Yoshimi KOBAYASHI\*\*  
(Department of Archaeological Science, Nara University of Education, Nara 630-8528, Japan)  
(Received May 6, 2004)

#### Abstract

Fine (1 - 8  $\mu$ m) or coarse ( $\sim$ 100  $\mu$ m or  $>$ 50  $\mu$ m) mineral has been used in luminescence datings. Minerals of semi-fine sizes (8 - 50  $\mu$ m), however, have not been used for luminescence dating samples because of the difficulty in assessing the effective  $\alpha$  dose rate. In this article, we propose a simple formula which gives a correction factor for  $\alpha$  dose rate in luminescence dating with semi-fine grains. The formula is based on an effective range of  $\alpha$  particles which is incident to spherical mineral grains.  $\alpha$  dose-rate correction factors are calculated for quartz with a diameter of 0 - 50  $\mu$ m assuming the effective  $\alpha$ -particle range of 7.5, 10, 15 and 20  $\mu$ m. The results were applied to IRSL datings of tephra and sediments from archaeological sites, and reasonably accurate ages were obtained.

**Key Words :** Luminescence dating,  
semi-fine grain,  $\alpha$  dose rate,  
correction factor

**キーワード :** ルミネッセンス年代測定, 準微粒子,  
 $\alpha$ 線量率, 粒径補正係数

#### 1. はじめに

熱ルミネッセンス (TL) 現象および光ルミネッセンス (OSL) 現象はアクシデントドジメトリーや年代測定に应用されている。これらの应用では放射線を吸収した石英や長石などの鉱物が、熱または光のエネルギーを与えられることによって、吸収線量に依存して発光する

現象を利用するが、測定する鉱物の大きさによって約1 ~ 8  $\mu$ mの鉱物を試料とする微粒子法<sup>(1)</sup>と約100  $\mu$ mの鉱物を試料とする粗粒子法<sup>(2)</sup>に大別される。これら2種類の測定法の大きな相違は、微粒子法では吸収線量に $\alpha$ 線量を含めるのに対して、粗粒子法では $\alpha$ 線が透過する表面部分を除去して $\alpha$ 線を除く放射線の吸収線量を評価する点である。微粒子と粗粒子の中間に当たる大きさの

\* 奈良大学大学院博士後期課程

\*\* 奈良教育大学大学院

鉱物（以下、準微粒子）が従来、測定試料として利用されなかったのは、 $\alpha$ 線の吸収線量評価に難しさがあるからである。

ルミネッセンス年代測定は当初セラミック試料に適用され<sup>(3)</sup>、胎土中に粗粒の鉱物を含む古代土器には粗粒子法が、それ以外の試料には微粒子法が利用された<sup>(2)</sup>。TL年代測定がテフラに適用され<sup>(4)</sup>、さらにOSL年代測定法の開発<sup>(5)</sup>によって、適用範囲が風成堆積物や水成堆積物を含む第四系堆積物にまで広がるにつれて<sup>(6)</sup>、微粒子と粗粒子を微量にしか含まない試料の年代測定のために、準微粒子を試料とする測定法（準微粒子法）を適用することが必要になった<sup>(7)</sup>。

本研究では、ルミネッセンス年代測定における年間 $\alpha$ 線量（以下、 $\alpha$ 線量率）の粒径依存性を簡単なモデルを基にして考察し、その結果から決定した補正係数を準微粒子法による年代測定に適用した例を報告する。

## 2. $\alpha$ 線量率の粒径依存性

### 2.1. 自然放射線のエネルギーと飛程

吸収線量は物質が吸収した放射線のエネルギーとして定義され、物質の密度、放射線の線質とエネルギーなどに依存する。

年代測定で利用する主な鉱物は石英または長石であり、その比重はおおよそ2.38から2.76（石英の比重は2.65）の比較的狭い範囲に限定される<sup>(8)</sup>ので、年代測定においては吸収線量の密度に対する依存性は少ない。一方、吸収線量のエネルギー依存性は線質によって大きく異なる。自然放射線源の $\alpha$ 放射体は、 $^{232}\text{Th}$ 系列、 $^{238}\text{U}$ 系列及び $^{235}\text{U}$ 系列中にあるが、最小エネルギーは $^{232}\text{Th}$ 系列にある $^{232}\text{Th}$ の3.954MeVであり、最大エネルギーは同じく $^{232}\text{Th}$ 系列にある $^{212}\text{Po}$ の8.784MeVである。 $\beta$ 線源は、これらの系列中にある元素の他に、 $^{40}\text{K}$ と $^{87}\text{Rb}$ が主なものである。これらの放射性元素から放出される $\beta$ 線は連続的なエネルギー分布をしているが、その最大エネルギーの範囲は、 $^{211}\text{Bi}$ の0.0017MeVから $^{234}\text{mPa}$ の2.2647MeVであり、その平均エネルギーは、それぞれ0.0004MeVから0.8372MeVまで分布している。 $\gamma$ 線源は上記の系列中にある元素と $^{40}\text{K}$ が主な放射体であり、最小エネルギーは $^{211}\text{Po}$ の0.00002MeV、最大エネルギーは $^{208}\text{Tl}$ の2.614MeVである<sup>(9)</sup>。

これらの放射線の鉱物中での透過度を推定するために、ルミネッセンス年代測定で使用する鉱物中での $\alpha$ 線と $\beta$ 線の平均飛程及び $\gamma$ 線の平均自由行程を考える。各種のNuclear Data Tableに掲載されている元素や物質のうち、石英や長石の比重に近いのはAl（比重2.7）であり、近似的に土壌やコンクリートの遮蔽計算に用いられる。ここでもAl中での平均飛程と平均自由行程を石英や長

石のそれに代用する。図1に示したAl中での $\alpha$ 線と $\beta$ 線の飛程はそれぞれ山崎文男（1981）<sup>(10)</sup>とM.J. Berger and S.M.Seltze（1983）<sup>(11)</sup>から作成したものであり、 $\gamma$ 線の平均自由行程はJ.H.Hubbell（1969）<sup>(12)</sup>から計算したものである。

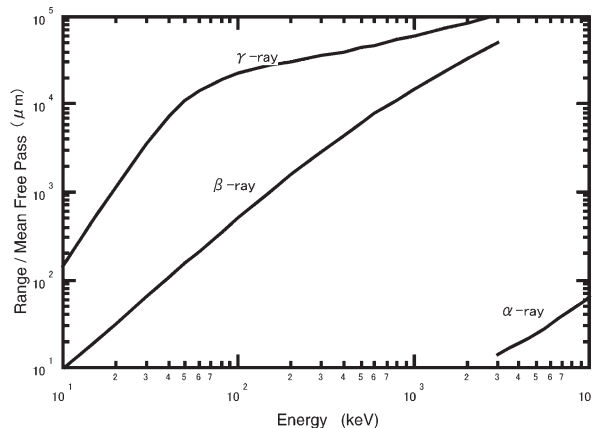


図1 石英における $\alpha$ 線と $\beta$ 線の飛程および $\gamma$ 線の平均自由行程

図1から分かるように、 $\gamma$ 線の平均自由行程は10keVで144 $\mu\text{m}$ であるから、年代測定で使用する鉱物の大きさではその減衰は無視できる。一方、 $\beta$ 線の飛程は10keVで約10 $\mu\text{m}$ 、30keVで約64 $\mu\text{m}$ であり、自然放射線源からの $\beta$ 線のエネルギーは大部分が30keVより大きいことを考慮すれば、微粒子法と準微粒子法で用いる鉱物の大きさに対しては $\beta$ 線の減衰は無視できる。しかし、粗粒子法や粗粒子より大きい鉱物を使用する単粒子法では減衰を考慮する必要がある。例えば、石英中での $\beta$ 線量の補正に関しては、エッチングをした粗粒子法の100 $\mu\text{m}$ の石英に対して11%程度の補正が必要であることが報告されている<sup>(13)</sup>。

Bowman（1982）は土器胎土の実効原子番号 $Z_{\text{eff}}$ を10.6、実効原子量 $A_{\text{eff}}$ を21.4として、土器胎土中での $\alpha$ 線の飛程を計算し、約3.75~12.4 $\text{mg}/\text{cm}^2$ とした<sup>(14)</sup>。土器胎土の比重を2.3としてこれを長さの単位で表せば、16.3~53.9 $\mu\text{m}$ である。M.J.Aitken（1985）はBowman（1982）のデータから $^{232}\text{Th}$ 系列、 $^{238}\text{U}$ 系列及び $^{235}\text{U}$ 系列における $\alpha$ 線の平均の飛程をそれぞれ、69.5 $\mu\text{g}/\text{mm}^2$ 、58.5 $\mu\text{g}/\text{mm}^2$ 及び68.6 $\mu\text{g}/\text{mm}^2$ と見積もっている<sup>(9)</sup>。これは土器胎土中で、それぞれ30.2 $\mu\text{m}$ 、25.4 $\mu\text{m}$ 及び29.8 $\mu\text{m}$ の長さに相当する。石英の $Z_{\text{eff}}$ は10.2、 $A_{\text{eff}}$ は20.2であり<sup>(14)</sup>、土器胎土と大差ないので、比重を2.65として計算すれば、石英中での上記の $\alpha$ 線の飛程は26.2 $\mu\text{m}$ 、22.0 $\mu\text{m}$ 及び25.9 $\mu\text{m}$ である。 $^{235}\text{U}$ の存在比は0.7%にすぎないので、 $^{235}\text{U}$ 系列の放射性元素からの $\alpha$ 線の吸収線量に対する寄与は小さい。さらに、通常は $^{232}\text{Th}$ の含有量の方が $^{238}\text{U}$ の含有量より多いので、自然の $\alpha$ 線の飛程を25

μmと仮定してよいであろう。

年代測定で利用する鉱物は石英と長石であるが、これらの鉱物は内部に<sup>232</sup>Th系列または<sup>238</sup>U系列、<sup>235</sup>U系列の元素を含まない。<sup>232</sup>Th系列または<sup>238</sup>U系列、<sup>235</sup>U系列のα放射体は石英や長石の周囲の粘土鉱物などに含まれているが、これらのα放射体は石英・長石の表面に密着しているとは限らない。密着していない場合には、石英・長石の表面に到達するまでにそのエネルギーの一部を失う。また、放射されたα線が石英・長石の表面から垂直に侵入するとは限らない。この状況を図2のように考えると、α線の飛程が25μm程度であっても、石英・長石に入射して到達する実効飛程は25μmよりかなり短いと考えるのが適当である。

2.2. α線によるルミネッセンスの粒径依存性

TL及びOSLは石英または長石に入射した放射線が結晶の価電子帯にある電子を励起して禁止帯にある電子捕獲センターに電子を捕獲させ、これを熱または光で励起させたときに発生するルミネッセンスである。年代測定において粒径が大きい石英または長石を試料とする場合、α線は表面から入射して到達可能な深さにある価電子帯の電子を励起して電子捕獲センターに捕獲させるが、飛程より深い中心部にある価電子帯の電子を励起することはできない。年代測定において、試料の重量で規格化する場合には、α線によるルミネッセンスが発生しない部分の重量を考慮することが必要である。従って、α線の実効的なルミネッセンスへの寄与は実際上、鉱物に侵入したα線の実効飛程までの表面付近の体積と鉱物全体の体積の比になる。以下、これをα線の粒径補正係数と称することにする。

図2のように、鉱物を半径R<sub>1</sub>の球と仮定し、α線の実効飛程をR<sub>0</sub>とすれば、α線の粒径補正係数 K<sub>α</sub> は

$$K_{\alpha} = \frac{V_1 - V_2}{V_1} = \frac{R_1^3 - R_2^3}{R_1^3} = 1 - \frac{R_2^3}{R_1^3} \dots \textcircled{1}$$

である。ただし、R<sub>2</sub> = R<sub>1</sub> - R<sub>0</sub> であり、V<sub>1</sub>、V<sub>2</sub>は半径R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>の球の体積である。

R<sub>0</sub>が7.5μm、10μm、15μm及び20μmの場合について計算した結果を図3に示す。図3から、実効飛程R<sub>0</sub>が7.5μm、10μm、15μmまたは20μmのとき、それぞれ、粒径が約20μm、25μm、35μmまたは50μmまでの石英または長石のα線粒径補正係数は約1.0であることがわかる。

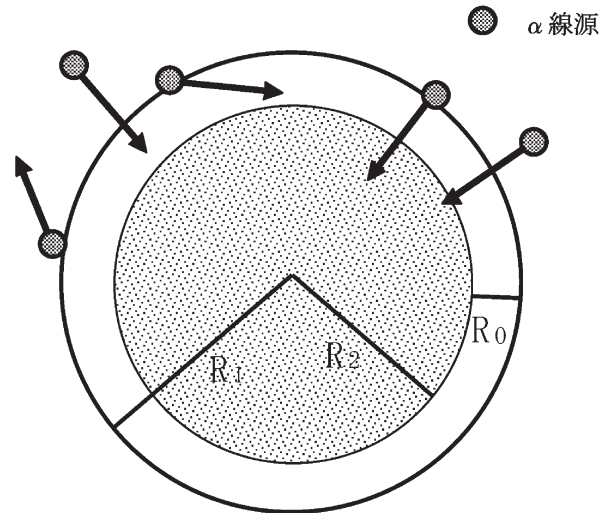


図2 球状の石英に入射するα粒子

R<sub>1</sub>は石英の半径、R<sub>0</sub>は石英の表面から入射したα粒子の実効飛程、R<sub>2</sub>=R<sub>1</sub>-R<sub>0</sub>。

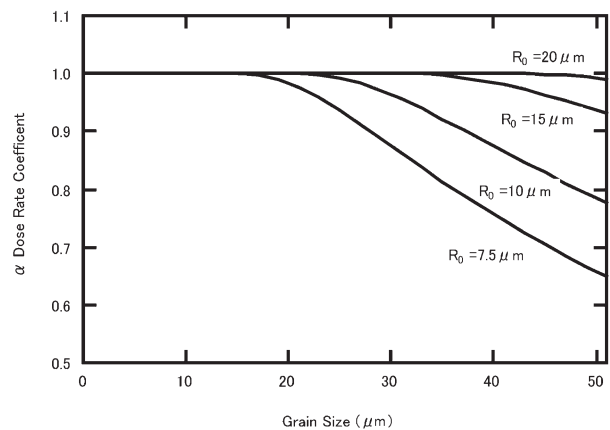


図3 実効飛程R<sub>0</sub>に対するα線粒径補正係数

3. 準微粒子法への適用

3.1. 準微粒子試料の粒径分布

準微粒子を試料とするルミネッセンス年代測定において、年間線量評価に上記の考え方を適用するため、その粒径分布を調べた。テフラ（宮崎県永牟田2遺跡）と風成または水成堆積物（韓国、佳月里遺跡など）に関しては水篩後、土器試料（イスラエル、エン・ゲヴ遺跡）に関しては粉碎後、約8~50μmの鉱物を標準篩とアセトン中の沈降速度差を利用した粒径分別法により抽出した。さらに、過酸化水素水を用いて有機物を除去し、塩酸処理によって炭酸塩鉱物を溶解した。

試料処理後の鉱物試料の粒径をデジタルマイクロスケープ（KEYENCE製、VHX-100）を用いてそれぞれの試

料について50~80個程度計測した。試料は不定形であるので、最長の長さ（長径）と最短の長さ（短径）を計測した。各試料の長径および短径を5 μm毎にグループとする粒径分布を図4に示した。図5は、試料を球形と見なし、(長径+短径)/2をその直径として粒径分布を示したものである。図4、5では粒径分布が正規分布に従うとみなして回帰している。

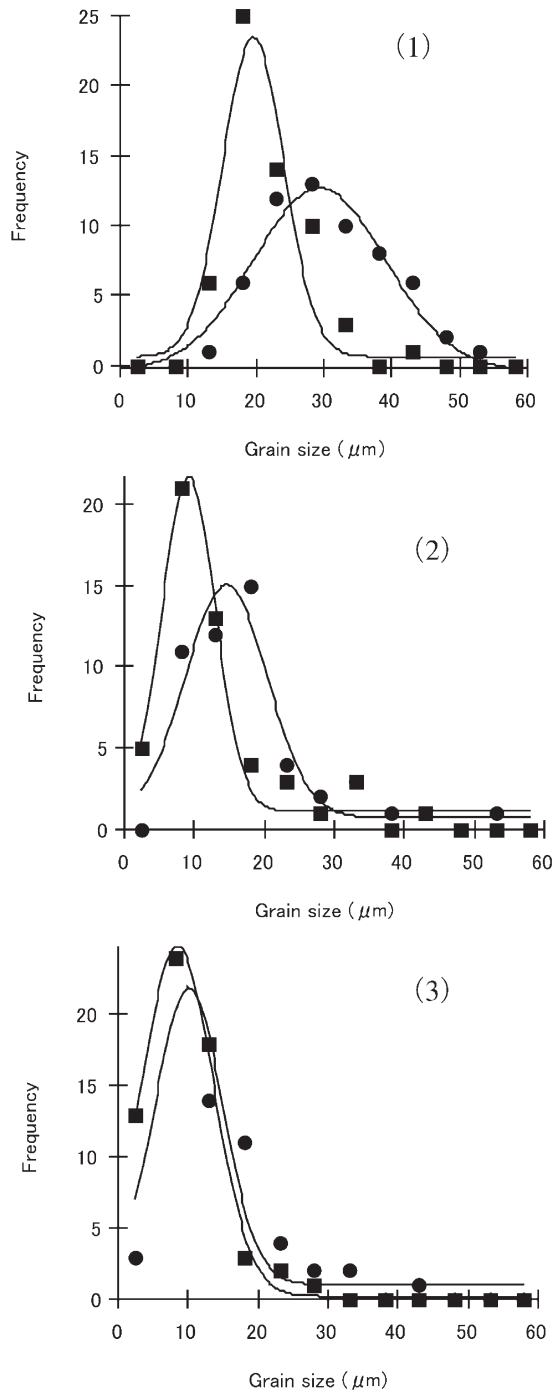


図4 準微粒子ルミネッセンス年代測定を行った試料の長径・短径の分布 (●:長径、■:短径)  
 (1) 永牟田2遺跡のKr-Aw包含層,  
 (2) 佳月里遺跡のTP19下層,  
 (3) エン・ゲヴ遺跡土器.

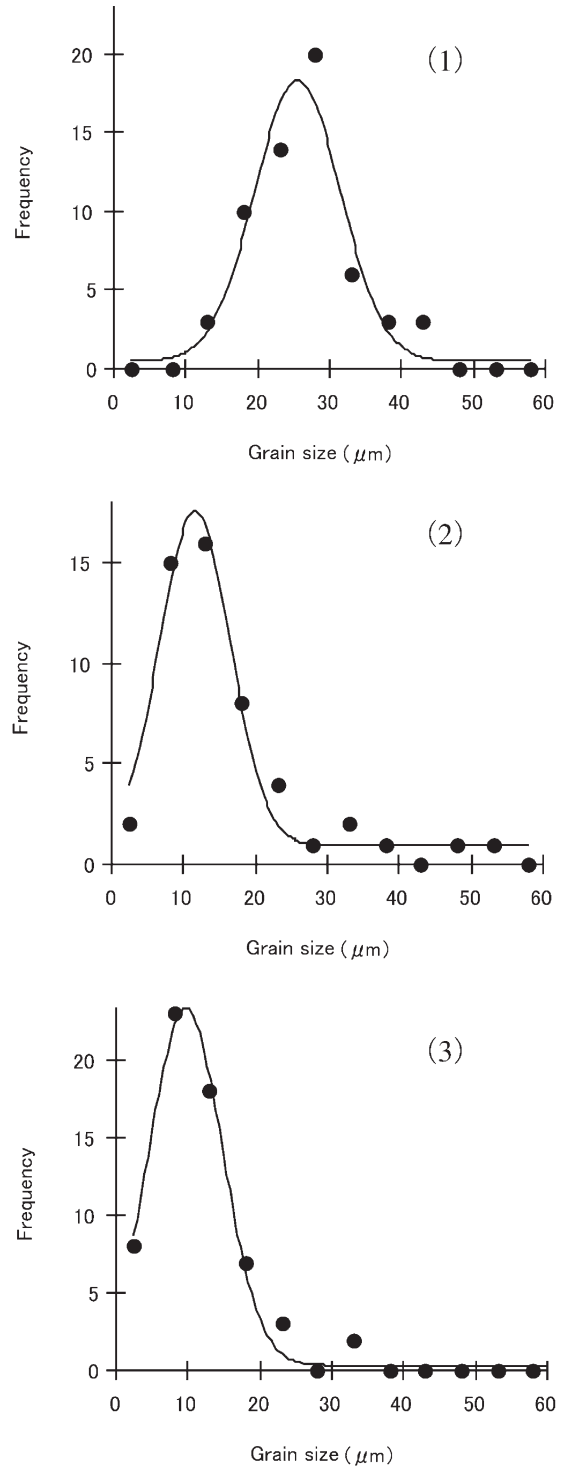


図5. 各試料の粒径 ((長径+短径)/2) 分布  
 (1), (2)及び(3)は図4に同じ

テフラの試料はほぼ左右対称な分布であり、長径は30 μm、短径は20 μmにピークがある。風成・水成堆積物もほぼ左右対称な分布を示すが、ピークは長径、短径ともテフラより小さい。図には佳月里遺跡の結果だけを示したが、他遺跡の風成・水成堆積物も同じ傾向であり、長径が30 μmより大きな粒径にピークがある試料はなかった。土器試料に関しては、風成・水成堆積物と同様な粒

径分布を示すが、ピークの粒径がより小さい。試料を球形と見なした場合の粒径分布(図5)において、テフラの分布では約25 $\mu\text{m}$ にピークがあり、粒径が35 $\mu\text{m}$ を超える試料は全体の数%に過ぎない。風成・水成堆積物と土器試料の場合はより小さな粒径にピークがあり、粒径が20 $\mu\text{m}$ を超える試料は全体の数%である。

### 3.2. IRSL年代測定への適用

宮崎県永牟田2遺跡のKr-Aw包含層と韓国佳月里遺跡のTP19下層(風成堆積物であるか、水成堆積物であるかは不明)を試料として準微粒子法によるIRSL年代測定を行い、年代の算出にあたって、年間線量評価に $\alpha$ 線の粒径補正の考え方を適用した。

測定はNRL-99-OSTL測定装置を使用し、プレヒート条件160 $^{\circ}\text{C}$ 、60秒、試料温度60 $^{\circ}\text{C}$ 、励起波長890 $\pm$ 50nm、検出波長350~600nmで、100秒間測定した<sup>(15)</sup>。シャインダウンカーブの40秒から80秒までの計数値を積算してIRSL強度とし、直線回帰で評価した等価線量とスプラリニアリティ補正線量から蓄積線量を評価した。その結果、蓄積線量は永牟田2遺跡のKr-Aw包含層は28.3 $\pm$ 9.2Gy、佳月里遺跡のTP19下層は440 $\pm$ 133Gyと評価された。

$\alpha$ 線量率評価は、高純度ゲルマニウム検出器による $\gamma$ 線スペクトロメトリーでUとThの含有量を測定により求めて線量率に換算した。 $\beta$ 線量率と $\gamma$ 線量率は直接法または間接法で評価した。 $\beta$ 線量率と $\gamma$ 線量率を含めて年間線量評価の結果を表1に示す。補正 $\alpha$ 線量率は $\alpha$ 線の実効飛程を15 $\mu\text{m}$ と仮定して粒径補正を行った結果である。

蓄積線量と総年間線量から算出した永牟田2遺跡のKr-Aw包含層のルミネッセンス年代は37,000 $\pm$ 12,000年前である。Kr-Awは宮崎県の平野部の遺跡や露頭で観察され、23,000~29,000年前<sup>(16)</sup>とされているAT火山灰層より下位にあることから、合理的な結果であると考えられる。佳月里TP19下層のルミネッセンス年代は蓄積線量と年間線量から78,000 $\pm$ 24,000年前である。佳月里TP19下層の年代については、確定的な評価はないが、出土石器群の層準などと比較して矛盾はない。

## 4. 結果と考察

試料処理後の準微粒子 $\alpha$ 線の粒径分布は、地層の成因に基づくと考えられる相違が見られた。永牟田遺跡Kr-Aw包含層は8~50 $\mu\text{m}$ の中央付近に粒径分布のピークがあらわれたが、他の火山噴出物試料(荒羽賀露頭のZa-Kw、東畦原第1遺跡のKr-Iw、二反野露頭のKr-Aw)の粒径分布も同様の傾向であり、風成・水成堆積物や土器試料より粒径が大きい傾向を示した。風成・水成堆積物は図に示した佳月里遺跡TP19下層の試料の他に、佳月里遺跡TP19上層、佳月里遺跡Loc. 3上層、サハリンSennaya遺跡5層の試料も計測したが、いずれも粒径分布のピークは火山噴出物試料のピークより小さい傾向を示した。火山噴出物が比較的短時間で堆積するのに対して、風成・水成堆積物は風または水の作用によって $\alpha$ 線がより時間をかけて精選された状態で堆積することによって、より小さな粒径になると考えられる。今回計測したローカルな火山噴出物ではなく、噴出源から遠い地域に堆積する広域テフラの場合は、風成堆積物と同様の傾向を示すことが予想される。土器胎土の場合は、22試料を計測した中で1つの例外を除いて風成・水成堆積物と同じ傾向を示した。粘土を水簸などによって人為的に精選するので、風成・水成堆積物と同様の傾向を示すと考えられる。

今回、 $\alpha$ 線粒径補正係数を適用して行ったIRSL年代測定では $\alpha$ 線の実効飛程を15 $\mu\text{m}$ と仮定して $\alpha$ 線年間線量を評価し、地層の層序や他の方法による測定結果などの年代情報と矛盾のない結果が得られた。 $\alpha$ 線の実効飛程が何 $\mu\text{m}$ であるかを直接検証することは困難であるが、今回得られた年代値が妥当であること、厚い試料(thick source)を用いる $\alpha$ 線量率の直接測定で、有効な厚さが14 $\mu\text{m}$ とされること<sup>(9)</sup>から、15 $\mu\text{m}$ と仮定することは妥当であると考えられる。

これらの結果は、①式で示した $\alpha$ 線粒径補正係数の考え方が妥当であり、ルミネッセンス年代測定法において、準微粒子法を微粒子法や粗粒子法と同様の精度で適用できることを強く示唆する。さらに一般的に適用可能

表1 永牟田2遺跡のKr-Aw包含層と佳月里遺跡のTP19下層の年間線量  
 $\alpha$ 線量率は $\alpha$ 線補正係数を用いて補正を行った

試料	$\alpha$ 線量率 (mGy/a)	補正 $\alpha$ 線量率 (mGy/a)	$\beta$ 線量率 (mGy/a)	$\gamma$ +宇宙線量率 (mGy/a)	総年間線量 (mGy/a)
永牟田第2遺跡 Kr-Aw包含層	0.16 $\pm$ 0.01	0.15 $\pm$ 0.01	0.14 $\pm$ 0.01	0.48 $\pm$ 0.05	0.77 $\pm$ 0.05
佳月里遺跡 TP19下層	1.57 $\pm$ 0.03	1.57 $\pm$ 0.03	2.58 $\pm$ 0.12	1.47 $\pm$ 0.15	5.62 $\pm$ 0.14



にするためには、微粒子から粗粒子までの粒径の鉱物を含む試料について、既に確立された方法である微粒子法や粗粒子法による年代測定結果と年間線量評価に $\alpha$ 線粒径補正係数を適用した準微粒子法による年代測定結果を多数比較検討することが必要であろう。

#### 謝辞

本研究の一部は科学研究費補助金基礎研究A「放射線損傷年代測定法の精度向上と東アジア旧石器遺跡への適用」(平成15年度：課題番号15200059)によるものである。

#### 参考文献

- (1) Zimmerman, D. W. (1971) Thermoluminescence dating using fine grain from pottery, *Archaeometry*, Vol. 13, No. 1, pp. 29-52
- (2) Fleming, S. J. (1970) Thermoluminescence dating: refinement of quartz inclusion method, *Archaeometry*, Vol. 12, No. 2, pp. 133-148
- (3) Kennedy, K. J. and Knopff, L. (1960) Dating by thermoluminescence, *Archaeology*, 13, pp. 147-148
- (4) 例えば Guerin, G., and Valladas, G. (1980) Thermoluminescence dating of volcanic plagioclase. *Nature*, 286, pp. 697-699
- (5) Huntly, D. J., Godfrey-Smith, D. I. and Thewalt, M. L. W. (1985) Optical dating of sediments, *Nature*, 313, pp. 105-107
- (6) 例えば 長友恒人, 森文幸 (2002) ルミネッセンス法によるテフラの年代測定, 後牟田遺跡 宮崎県川南町後牟田遺跡における旧石器時代の研究, pp. 304-308
- (7) 例えば 長友恒人, 下岡順直 (2003) 土器および焼土の熱ルミネッセンス年代測定, 大阪市平野区 長原遺跡東部地区発掘調査報告V 1999年度大阪市長吉東部地区 土地区画整理事業施行に伴う発掘調査報告書, pp. 98-102
- (8) J. V. Smith (1974) "Feldspar Minerals", Springer-Verlag
- (9) Aitken, M. J. (1985) *Thermoluminescence Dating*, Academic Press
- (10) 山崎文男 (1981) 放射線, 共立出版
- (11) M.J. Berger and S.M.Seltzer (1983) *Stopping Powers and Ranges of Electrons and Positrons (2nd Ed.)* NBSIR 82-2550-A (U.S.)
- (12) J.H.Hubbell (1969) Photon cross sections attenuation coefficients, and energy absorption coefficients from 10 keV to 100 GeV NSRDS-NBS (U.S.) 29
- (13) Y. ICHIKAWA and T. NAGATOMO (1978) Thermoluminescence dating of burnt sandstones from Senpukuji Cave, *PACT* 2, pp. 174-178
- (14) S.G.E.Bowman (1982) Alpha particle ranges in pottery, *PACT* 6, pp. 61-66
- (15) 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, pp. 381-389
- (16) 町田洋, 新井房夫 (2003) 新編火山灰アトラス [日本列島とその周辺], 東京大学出版会