ルミネッセンス年代測定を開始するための心得
－日本における年代研究の現状－

奥村　輔 1)・下岡 順直 2)

要旨　外部からの刺激（熱，光，電子線，X 線など）により，物質内の電子が励起され正孔と結合するときに物質から生じる発光現象は，ルミネッセンスと呼ばれる．年代測定には，主に熱ルミネッセンス（TL）と光ルミネッセンス（OSL）の二種類が用いられている．ルミネッセンス法による年代測定は，第四紀中～後期における年代決定を得意とし，考古学や第四紀学，自然地理学に加え防災に関連する分野での適用が図られている．本稿では，ルミネッセンス年代測定法の研究史を概略し，実際に行う年代測定試料の試料採取方法と試料処理方法について詳しく説明する．また，年代測定に使用されている測定装置とルミネッセンス測定法，年間線量の評価法について記述する．さらに，日本における研究測定例や今後期待される試料，世界の近況（2009 年当時）について概観する．

キーワード：熱ルミネッセンス（TL）年代測定，光ルミネッセンス（OSL）年代測定，第四紀，試料処理方法，ルミネッセンス測定法

1. はじめに

一般に物質の発光現象は，物質が高温状態になったとき（黒体放射），もしくは外部からの刺激（熱，光，電子線，X 線など）により物質内の電子が励起され，正孔と結合するときに生じる．後者の発光現象がルミネッセンスと呼ばれる．ルミネッセンスには，加熱による熱ルミネッセンス（thermoluminescence；TL），光刺激による光ルミネッセンス（optically stimulated luminescence；OSL）のほかに，電子線照射によるカソードルミネッセンス，化学反応に伴うケミルミネッセンス，摩擦によるトリボルミネッセンスなどがある．ルミネッセンスを用いた年代測定には，TL と OSL の二種類が用いられる．

ルミネッセンス法による年代測定は，一般に数十年から数十万年前まで，つまり第四紀中～後期にお

Engineering Geology of Japan, No. 1, 5-17（2011）
An introduction to luminescence dating　-On the present of the dating in Japan-
Tasuku Okumura[1), Yorinao Shitaoka[2)]

1) Department of Applied Physics, Faculty of Science, Okayama University of Science, 1-1 Ridai-cho, Kita-ku, Okayama 700-0005, Japan
Present address: Thermo Fisher Scientific K.K.
Isotope MS Field Team, Field Support Department
C-2F, 3-9 Moriya-cho, Kanagawa-ku, Yokohama, 221-0022, Japan
2) Low Level Radioactivity Laboratory, Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, O 24 Wake-machi, Noumi, Ishikawa 923-1224, Japan
Present address: Institute for Geothermal Sciences, Kyoto University, 3088-176 Noguchibaru, Beppu, Oita 874-0903, Japan

1) 岡山理科大学理学部応用物理学科
〒 700-0005 岡山県岡山市北区理大町 1-1
（現）サーモフィッシャーサイエンティフィック株式会社
フィールドサポート部 同位体 MS フィールドチーム
〒 221-0022 横浜市神奈川区守屋町 3-9　C 棟 2F
2) 金沢大学環日本海域環境研究センター低レベル放射能実験施設
〒 923-1224 石川県能美市和気町オ 24
（現）京都大学大学院理学研究科附属地球熱学研究施設
〒 874-0903 大分県別府市野口原 3088-176

2009 年 8 月 29 日受付．© 2011 Hiruzen Institute for Geology and Chronology. All rights reserved.

ける年代決定を得意とし（塚本・岩田，2005），放射性炭素（^{14}C）法（適応年代：約 6 万年前以降）とカリウム－アルゴン（K-Ar）法（適応年代：数十万年前以前）との間の数万～数十万年の期間を埋める方法として，考古学や第四紀学，自然地理学に加えて防災に関連する分野での適用が期待されている（高田・長友，1999）．

本稿では，日本におけるルミネッセンス年代測定例を紹介し，さらに今後期待される研究分野についても若干触れたい．本稿は著者らのこれまでの経験ならびに主観が多分に含まれており，ご批判も多々あると思う．この点に関しては，積極的に御指摘，御教示いただければと考えている．まずは，ルミネッセンス年代測定を初めて行う研究者，大学院生，あるいは学部学生に少しでも役立つようなレベルで以下，話を進めていきたい．

2. ルミネッセンス年代測定の原理と研究史

年代測定に用いられる主な鉱物は，地表に普遍的に存在し，結晶構造が安定している石英と長石鉱物である．石英や長石などの鉱物の多くは絶縁物であるため，価電子帯（valence band；VB）と伝導帯（conduction band；CB）の間にエネルギーギャップ（禁制帯：band gap）が存在する（図 1）．天然の石英は純粋な結晶として存在せず，通常数 ppm ～数百 ppm 程度のアルミニウムやゲルマニウム，チタンなどがシリコンと置換した不純物中心，あるいは酸素が欠損することによる格子欠陥などが存在し，禁制帯中にエネルギー準位が形成される．これらは電子捕獲中心（electron center または electron trap）や正孔中心（hole center）となる．放射線との作用により価電子帯には電子と正孔（ホール）が生成され，その後それぞれが電子捕獲中心と正孔中心に捕獲される（図 1 の（1））．TL は，電子捕獲中心に準安定的に捕獲されている電子が熱刺激により伝導帯に励起されたのち正孔中心のホールと再結合する際に生じる（図 1 の（2））．また，OSL は，電子捕獲中心に捕獲された電子が光刺激を受け励起状態となり，ヒートアシスト（励起を補助する熱刺激）によって伝導帯に励起されたのち正孔中心のホールと再結合する際に生じる（図 1 の（2））．

自然界にはウラン（U），トリウム（Th），カリウム（^{40}K）など放射性元素から放出される α，β，γ 線と宇宙線が存在する．これら自然放射線は非常に微量ではあるが，鉱物との相互作用により結晶内に電子とホールを生成させる（放射線損傷）．これら電子とホールの量は被ばく線量の増加によりほぼ比例的に増加する（Aitken，1985；1998）．土中の石英や長石は，結晶して以来，放射線損傷によって電子捕獲中心に電子が蓄積された状態となっている（図 2）．その後，火山噴火や土器の焼成による加熱，もしくは太陽光による光刺激によって，これまで蓄積した電子が解放される．つまり，蓄積した電子がすべて放出されてゼロになる．これをタイムゼロイング（年代の初期化：長友，1999）と呼ぶ．タイムゼロイング後，周辺土壌から放出される放射線の作用によって，上記のメカニズムと同様に一定の割合で電子が電子捕獲中心に捕獲されていく．採取した石英や発掘した土器は，実験室において試料処理を経て，蓄積したルミネッセンスを計測する．このルミネッセンス量が蓄積線量（paleodose；PD）に相当する．そして，1 年間に鉱物が吸収する放射線量（年間線量，annual dose；AD）で蓄積線量を割ることにより得られた値がルミネッセンス年代（～

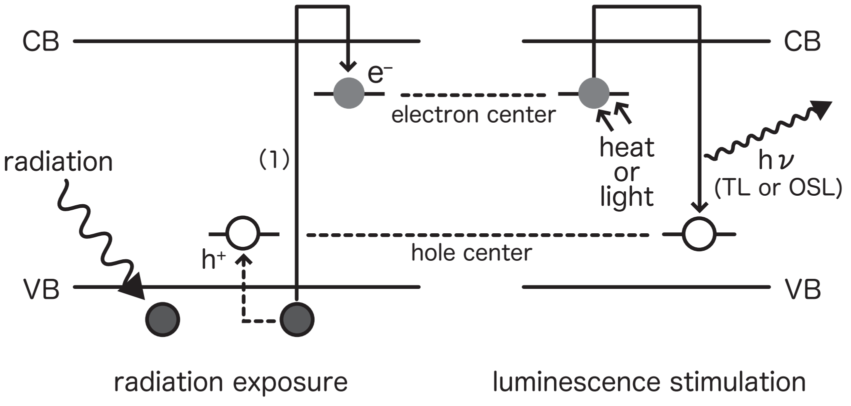

図 1　ルミネッセンス（TL および OSL）の発光メカニズム．放射線との作用により価電子帯で電子と正孔が生成され，それぞれが電子捕獲中心と正孔中心に捕獲される（1）．熱刺激もしくは光刺激により，電子捕獲中心に準安定的に捕獲されている電子が伝導帯に励起されたのち正孔中心のホールと再結合する際にルミネッセンスが生じる（2）．

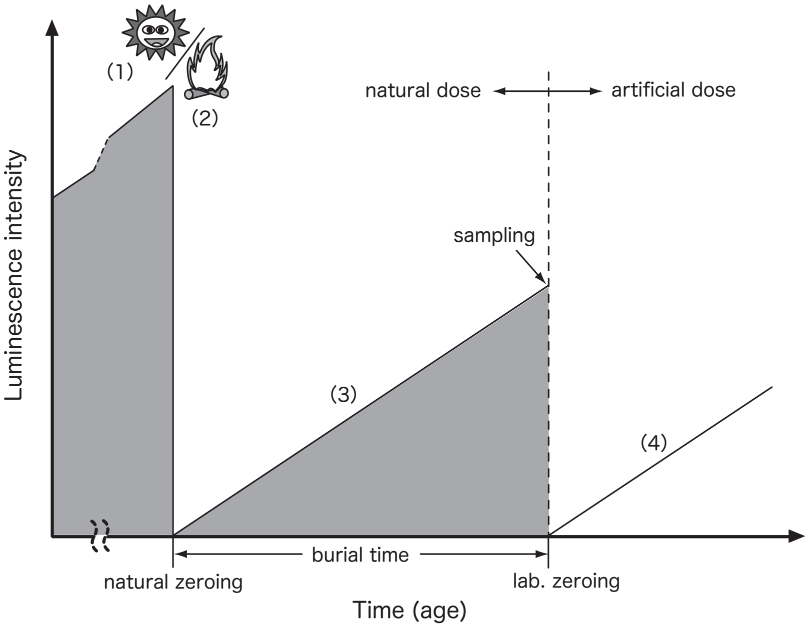

図２　ルミネッセンス年代測定法の原理．地質年代において，放射線損傷により電子捕獲中心に電子が蓄積された状態となっている（1）．火山噴火や土器の焼成による加熱，もしくは太陽光による光刺激によって，これまで蓄積した電子が解放される（タイムゼロイング：年代の初期化）（2）．タイムゼロイング後，周辺土壌から放出される放射線によって，一定の割合で電子が電子捕獲中心に捕獲されていく（3）．採取した石英や発掘した土器は，実験室において蓄積したルミネッセンスを計測する（4）．

年前；T）である（①式参照）．

$$T\,(year) = \frac{PD\,(Gy)}{AD\,(mGy/y)} \cdots ①$$

TL 法は，加熱によってタイムゼロイングされた試料に有効であり，火山灰や焼石，焼土，土器などが対象試料となる（例えば，Aitken，1985；長友，1999）．一方，OSL 法は光刺激によってタイムゼロイングされた試料に有効とされ（Godfrey-Smith *et al.*，1988），レス（黄砂）や砂丘砂などの風成堆積物や湖底・海底にある水成堆積物などが対象試料である（例えば，Aitken，1998；長友，1999；Tsukamoto *et al.*，2003）．ルミネッセンス法の考古学試料への応用は年代測定だけにとどまらず，焼石や焼土の被熱温度推定などの熱履歴の解明（Nagatomo and Nishimura，2003；西村ほか，2007）や陶磁器の新旧判定（Sun *et al.*，2009）などにも及ぶ．また堆積学では，白井ほか（2008）は河川堆積物の露光の割合を調べ，河川から浅海への土砂流入量の推定の研究を精力的に行っている．本稿では，年代測定研究に限定して話を展開する．

TL を使った年代測定への試みは，Daniels *et al.*（1953）に始まる．彼らは，岩石からの TL を観察し，古い岩石ほど TL 発光が強いことを明らかにした．その後，Kennedy and Knopff（1960）はギリシャ土器の測定によりその有効性を確認し，年代測定への道が開けた．研究の展開については，イギリスで発行された学術雑誌「Archaeometry」を中心にその成果が報告されていく．土器の TL 年代測定法は，Aitken によって 1985 年に上梓された「Thermoluminescnce Dating」に集大成される．2008 年には「Archaeometry」発行 50 年を記念した特集号で Wintle（2008）がルミネッセンス年代測定研究の 50 年をまとめているものの，初期の研究史などはあまり詳細に記述されていない．Aitken が「Thermoluminescnce Dating」を上梓した 1985 年は，くしくも Huntly *et al.*（1985）によって OSL 年代測定法の報告がなされた年でもある．レーザー光を用いて発光させた信号により年代測定を行う方法は，Ugumori and Ikeya（1980）によって考案されていたが，Huntly *et al.*（1985）は，アルゴンイオン・レーザーを用いた緑色光を励起光として OSL 年代測定を行った．1988 年には Hütt *et al.*（1988）が長石を用いた年代測定に赤外光刺激の OSL（infra-red stimulated luminescence；IRSL）が有効であることを示した．長石からの IRSL 信号は非常に強いことから信号の検出が容易であり，1990 年代は IRSL 年代測定法が主流となって研究が進められたが，長石は anomalus fading（異常減衰）現象を生じるため年代を求めるには補正が必要とされた（例えば，Watanuki，2002 など）．2000 年代に入ると，青色発光ダイオード（LED）が製品化され，また小型化，低コスト化が進んだこともあり OSL の励起光として採用された．これ以降，青色光刺激のルミネッセンスが主流となって

いる．

蓄積線量を見積もる方法としては，複数の試料皿へ定量的に試料を分画して測定するMultiple aliquot法（多試料法または多分画法）が主流であった．しかし，Murray and Wintle（2000）が single aliquot regenerative-dose（SAR）法（単試料再現法または単分画再現法）を提唱して以来この方法が国際誌の主流を占め，多試料法を用いたルミネッセンス年代測定に関する論文はわずかである（例えば，Blain *et al.*, 2007）．ただし，多試料法も手法としては有効な面がまだあると筆者らは考えている．多試料法については，Aitken（1985）や長友（1999）を参照していただくとして，このような現状をふまえ，4章の「測定装置と測定法」ではSAR法について詳しく述べる．

以上のように，ルミネッセンス法を用いた年代測定はその手法を深化させてきた．これらに関しては，Aitken（1985），Aitken（1998），高島（1995），長友（1999），塚本・岩田（2005）などに詳しく紹介されている．また，「放射線と産業」（財団法人放射線利用振興協会，2004）に電子スピン共鳴（ESR）年代測定法と合わせて特集が組まれている．近年の研究動向などについてはそちらを参照されたい．

3. 試料採取と試料処理

ルミネッセンス年代測定の試料採取は，直射日光が当たらないように十分注意して行う必要がある．これはOSL現象と同じ原理で，試料が光にさらされると，それまでに蓄積された電子（ルミネッセンス信号）が失われてしまうからである．試料に直射日光を当てないために，試料採取には通常2種類の方法が用いられる（図3）．一つは，塩化ビニール製のパイプ（塩ビパイプ）もしくはステンレス製のパイプを採取する場所に打ち込んで行う（図3a）．もう一つは，遮光できる暗幕を用意し，採取場所を遮光してから光が当たっている試料表面部分をさけ，遮光のできる容器に試料を採取する（図3b）．それぞれメリット，デメリットはあるだろうが，よく用いられているのはパイプを打ち込む方法であろう．その他，サンプリングを予定している部分を柱状に整形し，発泡ウレタンで梱包して研究室に搬入してから暗室で試料採取した例（図3c）もある．

採取試料の前処理は，数ルクス（ℓx）程度の暗赤色灯下で行う．試料処理法は，おもに粗粒子法と微粒子法に区分される．以下，それぞれ手順を示す．

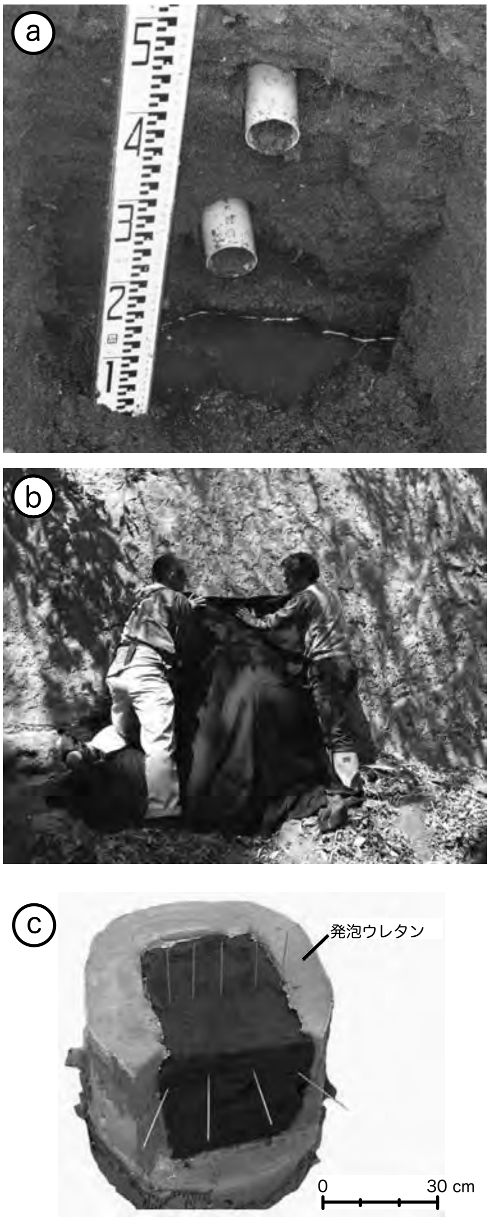

図３　ルミネッセンス年代測定用試料採取風景．（a）塩化ビニール製のパイプもしくはステンレス製のパイプを採取する場所に打ち込む方法．（b）暗幕で採取場所を遮光し，光が当たっている試料表面部分をさけて遮光のできる容器に試料を採取．（c）サンプリングを予定している部分を柱状に整形後発泡ウレタンで梱包し，研究室に搬入してから暗室で試料採取した例．

3-1. 粗粒子法

粗粒子法では主に100 μm程度の粒度の鉱物を用いる．水をはったバケツに試料を入れて，粒子一粒ずつに分けるように砕くと同時に，木根などを除去する（水簸）．その後攪拌して3～5分程度放置し，沈殿物と浮遊物に分別する．そして，沈殿物を粗粒子試料として処理を行う．ここまでの手順を（1）とし，以降の手順を記す．

(2) 水中で標準ふるい（30メッシュ）を用い，500 μm以上の鉱物を除去

(3) 過酸化水素水溶液（H_2O_2）で有機物を除去→洗浄，乾燥
(4) 標準ふるい（60 メッシュと 300 メッシュ）で，50 ～ 250 μm に粒度を調整.
(5) 塩酸（HCl）20％溶液で炭酸塩鉱物を除去→洗浄，乾燥
(6) 永久磁石もしくは磁気分離器を用いて磁性鉱物を除去
(7) フッ化水素酸（HF）で石英以外の鉱物を溶解し，石英鉱物の表面をエッチング（α線の影響のある石英表面 20 μm 程度を溶解）
(8) 塩酸（HCl）もしくは酢酸（CH_3COOH）溶液を用いて，石英表面で生成されたフッ化物の除去→洗浄，乾燥
(9) 標準ふるい（100 メッシュと 200 メッシュ）で粒度を 75 ～ 150 μm に調整.

なお，手順（6）や手順（8）のあとに偏光顕微鏡などを用いて試料を観察しておくとよい．特に手順（8）の後，石英以外の鉱物（特に長石など）が溶け残っている場合，再度フッ化水素酸やケイフッ化水素酸（H_2SiF_6）などを用いて石英のみに完全純化させる必要がある．粗粒子法では，100 μm 以上の鉱物を抽出して測定に使用する場合がある．その際は，標準ふるいの目の大きさをかえるとよい．粗粒子の長石を抽出する方法では，α線の影響のある長石表面 20 μm 程度を溶解するために，手順（7）で 5％程度のフッ化水素酸（HF）溶液を用いて 20 分程度処理を行うとよい．長石と石英が混合している場合は，長石と石英をまず重液（SPT）などで分離しておく必要がある.

3-2. 微粒子法

微粒子法では，主に 10 μm 程度（特に 4 ～ 11 μm）の鉱物を用いる．粗粒子法（3-1）の手順（1）で水簸した後の浮遊試料を用いる．これは，数日程度放置し，一度沈殿させる．これをビーカーに分取する（ここまでの手順を（1））.
(2) 過酸化水素水溶液（H_2O_2）で有機物を除去→洗浄，乾燥
(3) ストークスの法則を用いて液体（アセトン溶液やカルゴンなどの分散剤）中で粒度を 10 μm 程度に調整.
(4) 塩酸（HCl）20％溶液で 2 時間程度処理を行い，炭酸塩鉱物を除去→洗浄，乾燥

ここまでの処理は，多鉱物微粒子の抽出法である．手順（4）のあと，ケイフッ化水素酸（H_2SiF_6）20％溶液を用いて 3 日間処理を 3 回（もしくは 4 日間処理を 2 回）繰り返して微粒の石英のみを抽出する方法（以下，石英微粒子）もある．この場合，試料処理後に XRD や IRSL 測定を行い，長石など石英以外の鉱物が残存していないかチェックし，もし長石からの IRSL 信号などが検出される場合，再度ケイフッ化水素酸（H_2SiF_6）処理を行う.

上述の試料処理は，堆積物や凝固していない試料に用いられる手順である．火砕流の溶結部や溶岩，焼石などは，まずダイヤモンドカッターやワイヤーソーなどで半分に切断し，特に焼石などは焼けた部分のみを再度カッターで切り出す．その後，暗室でフッ化水素酸（HF）溶液に試料を入れて，光があたっている表面部分を溶解させる．もしくは，暗室でダイヤモンドカッターを用いて試料が熱をもたないよう注意しながら表面部分を削除する．土器や焼土などの場合，カッターや研磨機などを用いて暗室内で表面を削る．最低でも光が当たっている表面数 mm 程度は除去したい．その後は，アルミニウム板や銅板に試料を挟んで万力などを用いてゆっくりと砕いていく．このとき，急激に粉砕すると摩擦によるトリボルミネッセンスが生じる場合があるので，ゆっくりと行わなければならない．標準篩を用いて粒度をそろえた後は，上述の方法と同様に必要な粒度の鉱物抽出を行う.

4. 測定装置と測定法

SAR（single aliquot regenerative-dose）法を用いてルミネッセンス測定するためには，測定装置に放射

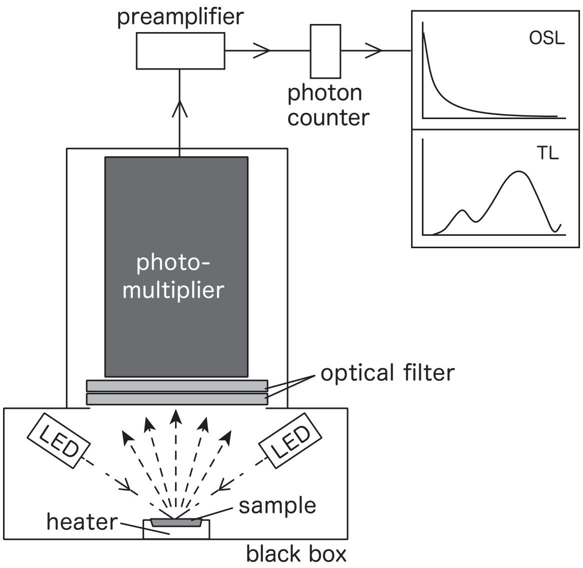

図 4　ルミネッセンス測定装置の概略図．TL ではヒーターによる加熱，OSL では LED による光刺激により発生したルミネッセンスを検出する.

線源を装着しておく必要がある．したがって，一般的なルミネッセンス測定装置の概略を述べ，つづいてSAR法を用いたルミネッセンス測定法について紹介する．

4-1．TL/OSL 測定装置

ルミネッセンス測定装置の概略図を図4に示す．TL測定装置とOSL測定装置の構成はOSLの励起光源部分を除いて基本的には同じである．TLの場合，温度制御が可能なヒーターを兼ねた試料台とルミネッセンスを検出する光電子増倍管（photomultiplier tube；PMT）からなる簡単な構造である．OSL測定装置はTL測定装置と同様に温度制御できるヒーター兼試料台とPMTに，励起光として使用するLEDあるいは波長を選択したレーザーが組み込まれる．

熱あるいは光刺激により試料から放出されたルミネッセンスは，ライトガイドもしくは集光レンズを用いてPMTで検出する．TL測定の場合，試料温度を一定の割合（1℃／秒～10℃／秒）で室温から400～500℃まで上昇させる連続昇温法で測定し，温度に対する発光強度としてプロットする．このプロットをグローカーブと呼ぶ（図5a：石英の典型的なグローカーブ）．OSL測定では，励起光に青，緑ならびに赤外光が使用される．どの波長の励起光を用いるかは鉱物ごとに異なる．年代測定では一般に，石英の励起には波長470 nmの青色LEDや514 nm前後の緑色LEDが，また長石には波長880 nmの赤外LEDがよく使われる．OSLの場合，励起光がPMTの光電面に入射してしまうとルミネッセンス検出の障害になるほかPMTの劣化を生じさせるので，励起光がPMTの光電面に入らないように光学的にカットしなければならない．また，検出光の波長選択が重要であり，励起光波長と検出波長の間隔は100 nm程度離すように組み合わせる．検出波長選択のための光学フィルターは，石英の場合HOYA社のU-340フィルター（半値幅：280～370 nm），長石の場合Schott社のBG39フィルター（半値幅：350～600 nm），もしくはそれより長波長側のフィルターが通常採用されている．堆積物から抽出した石英の青色光励起のOSL発光曲線を図5bに示す．

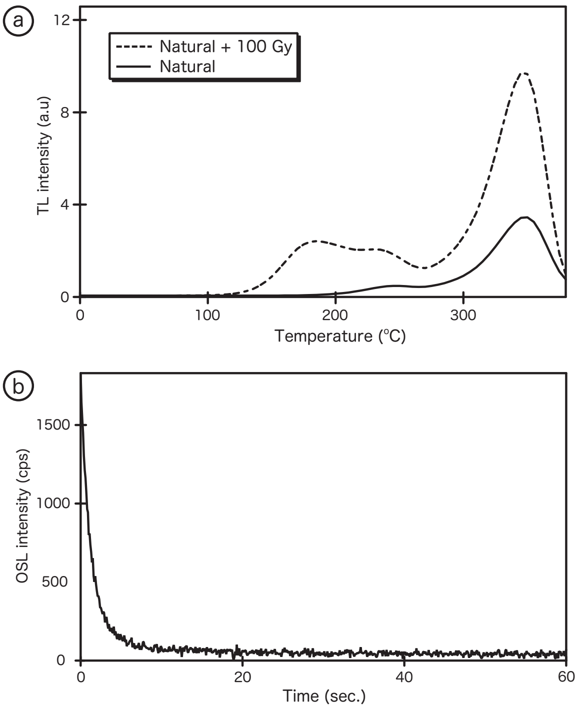

図5　石英のルミネッセンス測定例．TLグローカーブ（a），OSL減衰曲線（b）．TLグローカーブはナチュラル（N）試料とN試料にγ線を100 Gy照射した試料のTLグローカーブ．

現在，世界中でルミネッセンス測定に用いられる装置の大半は，デンマークの国立Risø研究所（以下，Risø社）が市販しているものである．しかし，これには線量率約5 Gy/分の^{90}Sr-^{90}Y β線源（以下，^{90}Sr β線源）が装着されている．日本国内での使用には法的な制約があり，装着した装置を使用するならば放射線管理区域内に設置しなければならない．現在のところ，東京大学工学部（1台），海洋研究開発機構（JAMSTEC）（2台），電力中央研究所（1台；線源未装着），奈良女子大学（1台）においてRisø社の装置が使用されている．Risø社製以外の装置では，Daybreak社製およびHARSHAW社製の装置が奈良教育大学に一台ずつ設置されている．しかし，どちらも線源は装着されていない．なお，HARSHAW社製はTL測定に使用されている．

日本では線源の法的規制を避けるため，照射線源に放射性核種を用いないルミネッセンス測定装置を作成する研究も行われてきた．新潟大学では橋本ほか（2002）が作成した装置が橋本の定年後も一台使用可能である．また北海道教育大学函館校にも複数台設置されている．これらは，照射線源としてX線管球（Varian社製VF-50J）を装置に装着している．その際，低エネルギーのX線をカットするために，照射窓を3 mm程度のアルミ泊で覆っている．金沢大学にも新潟大学や北海道教育大学函館校と同様の装置が設置されている．奈良教育大学には，Risø社製の^{90}Sr β線源を装着した自作の装置が設置されているほか，ルミネッセンス測定専属で使用している^{60}Co γ線源の照射装置が設置されている．TL測定装置は，上記のほかに岡山理科大学，秋田大学，福岡大学などに設置されている．そのほか，低温状態でルミネッセンスを測定できる装置を岡山理科大学と大阪大学，奈良教育大学などで開発している．

4-2. SAR 法によるルミネッセンス測定－石英のOSL測定を例として－

SAR 法のプロトコルの例を表1に示す（Wintle and Murray, 2006）．また，SAR 法によって得られた生長曲線を図6に示す．SAR 法による測定では，一枚の aliquot（試料皿）を用い，電離放射線（β線あるいはX線）照射とOSL測定を繰り返すことにより，試料皿ごとの発光強度のばらつきを補正することができる．しかし，測定前の加熱処理（プレヒート）や測定の際の加熱により感度変化（照射量に対する発光量の変化）が生じ，感度変化の割合は照射と測定を繰り返し行うことで次第に大きくなる．これを補正するために，毎回測定後に一定の線量（Dt）を試料に照射し，測定する．これをテストドーズ（T_i）と呼称する．もし，感度変化が起こっていなければ，毎回のテストドーズに対する発光強度（T_i）は一定である．しかし，実際にはテストドーズに対する発光強度は変化する．そこで，測定における発光強度（L_i）をテストドーズの発光強度（T_i）で割ることにより発光強度を規格化（L_i/T_i）する．さらにSAR 法では，最初と最後に同じ線量の電離放射線を照射（例えば，図6の D_1 と D_8）し，感度補正を行ったのち同じ発光強度が得られるかを調べる（感度チェック）．感度チェックでは，最初と最後のOSL測定における補正された発光強度比（例えば，図6の D_1/D_8）が0.9～1.1の範囲内に収まれば合格とされる．またOSL現象においては，発光の際に電子捕獲中心から光刺激で励起された電子が再度電子捕獲中心に捕獲される，あるいはより深い電子捕獲中心へ捕獲される現象がおこる．これを回復現象と呼び，回復現象が起こっているか否かをモニタリングするために，SAR 法による線量測定の途中で電離放射線を照射せず（例えば，図6の D_7）にOSL測定を行う．回復現象のチェックは，抽出した石英試料からのOSL強度（例えば，図6のNatural）と比較して，照射ゼロ時のOSL強度（例えば，図6の D_7）が5％を超えなければよいとされる（Wintle and Murray, 2006）．

表1 SAR 法によるOSL測定手順（Wintle and Murray, 2006 より）

Step	Treatment	Observed
1	give dose, D_i	-
2	preheat (160-300 ℃ for 10-60 sec.)	-
3	stimulate for 40-100 sec. at 125 ℃)	L_i
4	give test dose, D_t	-
5	cut heat (160-300 ℃)	-
6	stimulate for 40-100 sec. at 125 ℃	T_i
7	stimulate for 40-100 sec. at 280 ℃	-
8	return to 1	-

<Notes>
Step 1: for the natural sample, i = 0, and D_0 = 0 Gy.
Step 2: aliquot cooled to <60 ℃ after heating.
Step 3: the stimulation time is depend on the stimulation light intesity and wavelength.
Step 3 & 6: L_i and T_i are derived from typically the first 1-10 sec. of initial OSL signal.

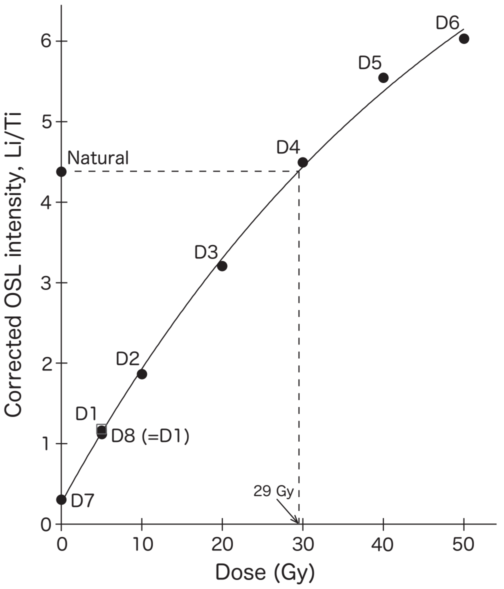

図6 SAR 法によるOSL測定で得られた生長曲線

石英の最適なOSL測定温度は125℃とされる（表1のStep 3）．その他の測定条件は個々の試料によって異なってくるので，事前にテストを行うことが重要であろう．プレヒート条件は，異なるプレヒート温度で試料皿数枚ずつOSL測定（プレヒートプラトーテスト）を行い，安定した線量評価を行うことができる温度，つまり線量がプラトーになる温度範囲をプレヒート温度として採用する．カットヒート温度は，感度変化を生じさせずに浅い電子捕獲中心に捕獲された不安定な電子を除去するために，これまで160℃がよく用いられてきたが，近年では200℃付近の温度でも行われている（Wintle and Murray, 2006）．さらに採用したSAR 法の諸条件が試料に適しているか，つまり線量評価が適切に行われているかを確認するため，ドーズリカバリーテスト（線量回復テスト）を行う．ドーズリカバリーテストは，いったん試料を人為的にタイムゼロイングさせ，その後任意の線量を照射してからSAR 法を用いてOSL測定する．このとき任意の照射線量と最終的に評価される線量の比が0.9～1.1の間に収まればほぼよいとされている（Wintle and Murray, 2006）．最近では，試料への長石の混入度を評価するために，まずSAR 法によるIRSL（infra-red stimulated luminescence）測定をした後，SAR 法によるOSL測定を行い，同様の線量評価ができるのかを調べるdouble SAR 法が報告されている（例えば，Roberts and Wintle, 2001 ; Banerjee *et al.*, 2001）．

4-3. 年間線量の評価

ルミネッセンス年代測定において，年代の誤差は蓄積線量と年間線量の両方からの誤差の伝播である．蓄積線量と年間線量の誤差は同等に年代の精度に影響するため，年間線量についても SAR 法によって評価する蓄積線量と同精度で評価しなければならない．

年間線量の評価方法には，現地でのルミネッセンス線量計や NaI シンチレーションカウンターなどを用いた直接測定法と，試料に含有される放射性元素濃度を Ge 半導体検出器や ICP-MS を用いた化学分析あるいは放射化分析によって求めた後，換算係数を用いて間接的に年間線量を評価する間接測定法の 2 種類が挙げられる（長友，1991）．

本稿では，TL 線量計素子を用いた直接測定法と Ge 半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーによる間接測定法を紹介する．

4-3-1. 直接測定法

TL 線量計素子を用いた直接測定法では，年間 β 線量と年間 γ 線量および年間宇宙線量を別々に測定して評価しなければならない．

年間 β 線量

採取した試料を乾燥させ，タングステンカーバイド製乳鉢で 50 ～ 75 μm 程度に粉砕する．次に，粉砕した試料を直径 50 mm，厚さ 5 mm のアルミニウムリングにプレス機を用いて 17 トン程度の加重をかけてプレス成型する．これを 2 枚作成し，厚さ 3.5 mg/cm^2 のポリエチレンシートを介して，350℃で 15 分間アニール（加熱）処理をした TL 線量計素子（$CaSO_4$：Tm）を薄く一層に広げて挟み込む．これを 1 辺 150 mm の鉛箱の中に数週間程度おいた後，取り出して TLD 素子の TL 強度を測定し，較正した TL 強度と比較して年間 β 線量を求める．

年間 γ 線量および年間宇宙線量

長さ 500 mm，直径 10 mm，厚さ 1 mm の銅パイプ内の先端に 350℃で 15 分間アニール処理をしたパナソニック社製 TLD 素子カプセル（$CaSO_4$：Tm）5 個をセットし，測定を行う地層にそのパイプを直接打ち込む．この方法では，年間 γ 線量とともに年間宇宙線量を同時に測定することができる．埋設してから 3 ヶ月後に取り出して TLD 素子カプセルの TL 強度を測定し，年間 γ 線量および年間宇宙線量を求める．

4-3-2. 間接測定法

土壌試料を乾燥しないようにポリチャック袋に採取し，研究室あるいは実験室に持ち帰る．そして，試料は 2 ～ 3 週間程度乾燥させた後，試料の含水比を測定する．乾燥した試料は定量して密閉できる容器に封入し，低バックグランド鉛と無酸素銅で遮蔽した高純度 Ge 半導体検出器を用いて試料から放出される γ 線を計測する．計測した γ 線スペクトルから求めた U，Th，^{40}K の濃度から換算式（Adamiec and Aitken, 1998；表 2）を用いて α 線，β 線，γ 線の各年間線量に換算する．また，含水比補正（Aitken, 1985）を行う．

α 線は，β 線や γ 線に比べて線量に対するルミネッセンスの割合（一般にルミネッセンス効率）が小さいとされる．α 線のルミネッセンス効率を実験的に求めた結果，TL では 10 ～ 15％，OSL で 4 ～ 7％程度とされている（例えば，Aitken，1985；Rees-Jones *et al.*，1997）．しかし，自然界における α 線のルミネッセンス効率を求めることは，放射性核種のエネルギーが多様であること，α 線の飛程が約 12 μm 程度と極めて短いこと（Okumura *et al.*，2008），遮蔽計算の複雑さなどの複数の要因により単純ではない．

年間 β 線量については，蓄積線量評価に用いる試料の粒度ごとに年間 β 線量の粒径（粒度）補正が必要である．上述した粗粒子では粒度を 100 μm 程度に揃えており，TLD 素子の粒度も 100 μm 程度にしている

表 2　トリウム系列，ウラン系列，カリウムの年間線量換算表（Adamiec and Aitken，1998 より）

	Th-232	U-238
1. Abundance by weight (%)	100	99.29
2. Half-life [gigayears]	14.05	4.468
3. Parent activity [Bq/mg]	4.06	12.4
4. Activity share in natural U (%)	–	95.6
Dose-rate [mGy/year] per ppm		
5. alpha, full chain	0.732	2.685
6. alpha, pre-Rn*	0.305	1.146
7. beta, full chain	0.0273	0.143
8. beta, pre-Rn*	0.0091	0.057
9. gamma, full chain	0.0476	0.112
10. gamma, pre-Rn*	0.0178	0.0025
To obtain dose-rate [mGy/year] per unit specific activity of parent [Bq/kg]		
11. Divide lines 5-10 by	4.06	12.4

	K-40
1. Natural abundance [mg/g]	0.119
2. Half-life [gigayears]	1.277
3. Specific activity [Bq/kg] for concentration of 1% natural K	β: 270
	γ: 32.5
4. Dose-rate [mGy/year] for cocentrations as in 4	β: 0.782
	γ: 0.243
5. As in 5 but for 1% K_2O	β: 0.649
	γ: 0.202

<Notes>

1. The rows labelled ‘pre-Rn’ give the values for 100% escape of radon in the case of the Th-232 and U-238 series, but because of the short half-life of Rn-219 the values given for U-235 and natural U include contributions of gas and its daughters.
2. ‘ppm’ equals mg of parent per kg of sample.
3. The weight abundances given in row 1 for U-238 correspond to the natural atomic abundances of 99.28%.
4. The energy given is that released per disintegration, i.e. after allowance for branching between beta and gamma (89.3% and 10.7%, respectively).
5. The contents given in row 1 correspond to natural atomic abundances of 116.7 ppm and 17.8%.

ため，この場合は補正がほぼ必要ないが，これら以外の粒度を用いるときは補正が必要になる．β線の粒径（粒度）補正には，Mejdahl の式（Mejdahl，1979）がよく利用される．

年間宇宙線量は，間接測定の場合，Presccot and Hutton の式（Presccot and Hutton，1994）②が用いられ，計算で見積もられる．

$$D = 0.21\exp(-0.070x + 0.0005x^2) \quad \cdots ②$$

年間宇宙線量 D を求めるために，埋没深度 x は 100 g/cm^2 の単位で表す．この計算式では，現在の埋没深度について評価され，経年変化の考慮は実際のところ困難である．なお，日本の地表面における年間宇宙線量は，一般に 0.1 ～ 0.3 mGy/y 程度である．

5. 測定例－日本における研究を中心に－

日本におけるルミネッセンス年代測定の適用は近年増えつつある．幡谷・白井（2003）は浅海の堆積物を測定し，精度は粗いものの酸素同位体ステージごとの年代判別を可能とした．Kondo *et al.*（2007）は，北海道サロベツ原野周辺に分布する堆積物を対象に OSL 年代測定を行い，較正 ^{14}C 年代と一致する結果を得ている．また，近藤・塚本（2009）は利尻火山西部において火山麓扇状地堆積物の OSL 年代測定を行い，扇状地の形成年代を議論した．杉崎らのグループは，OSL 測定の為にオホーツク海の海底コア掘削を実施し，MIS5（約 12 万年前の間氷期）までの年代測定に成功した（Sugisaki *et al.*，2009）．七山ほか（2009）は北海道東部で見つかった津波堆積物 15 試料の OSL 測定を試み，6 試料から加速器質量分析（AMS）法による ^{14}C 年代では得難い 1,000 年前後の OSL 年代を得ることに成功した．しかし，残りの 9 試料については層序的に明らかに古い年代値を示し，津波の遡上時にタイムゼロイングが不完全であったか，あるいは年代的に古い粒子を取り込んだ可能性を示唆している．雁澤ほか（2007）は洞爺火山灰（Toya）をフローユニットごとに SAR 法で TL 測定し，高精度な結果を得た．また，Toya テフラから抽出した石英の isothermal TL（ITL）測定も行っている．宮入ほか（2007）は放射性炭素（^{14}C）年代測定が困難な 3 万年以前の火山灰堆積物を高精度年代測定することを目的として，4 テフラの TL 年代測定を行った．下岡ほか（2009）も，10 万年までのテフラ 20 試料について TL 測定を行い，既報年代との比較を試みた．

考古学分野では，長野県貫ノ木遺跡で出土した縄文時代草創期の土器片を SAR 法により TL 測定を行い，^{14}C 較正年代と調和的な結果を得ている．この土器片は非常に小さなものであり，少ない試料量でも SAR 法を用いることで測定が可能であることを証明した（笹田ほか，2008）．

続いて，著者らが実際に行った OSL 年代測定を示す．インドで採取した試料は，インドネシアのトバ火山から噴出した火山灰（ヤングトバ・テフラ）直下の堆積物である．堆積物から抽出した石英微粒子を用いて SAR 法により OSL 測定を行った．測定手順は表

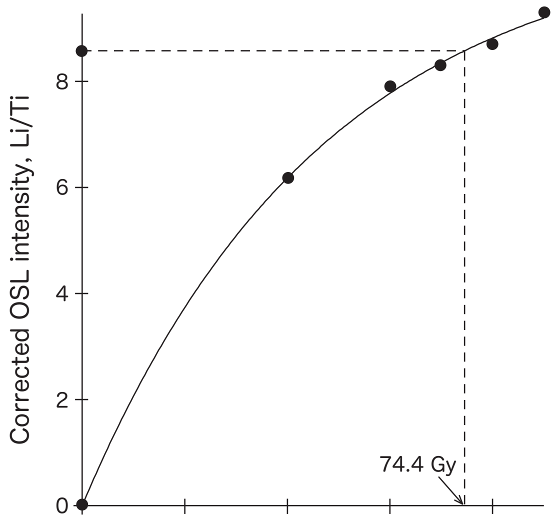

図７　ヤングトバ・テフラ直下の堆積物から得られた OSL の生長曲線

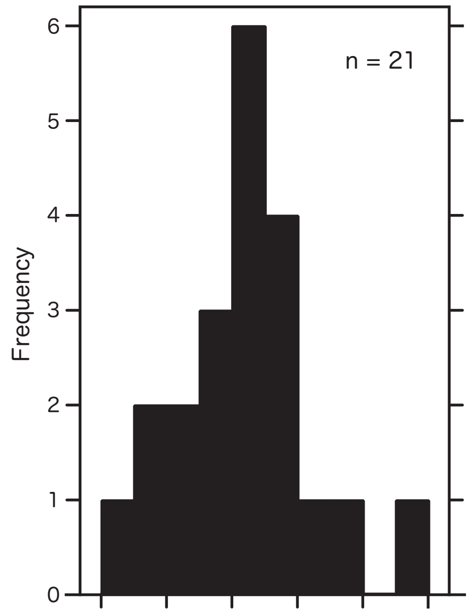

図８　ヤングトバ・テフラ直下の堆積物の蓄積線量の頻度分布（n=21）

1に従い，プレヒート条件を220℃で60秒，カットヒート条件を160℃とした．測定した最初の0～1秒のOSL強度を用いて生長曲線を作成した（図7）．測定は21試料皿で実施し，線量評価の頻度分布を作成した結果，70～80 Gy付近にピークが見られ（図8），比較的タイムゼロイングがなされているといえる．統計処理により，蓄積線量は72.2±8.3 Gyと見積もった．堆積物の年間線量は，間接測定法により0.80±0.03 mGy/yと求め，①式より堆積物のOSL年代は90±11 ky（千年前）となった．ヤングトバ・テフラの年代はAr-Ar法で74±7 ky，77±6 ky（Chesner *et al.* 1991）であり，堆積物のOSL年代は層序的に整合性のある結果となった．

日本の試料では，東京多摩川沿いに立地する立川段丘面の風成堆積物（ローム層）から抽出した石英微粒子について，SAR法で18試料皿をOSL測定して，線量評価の頻度分布を作成した（図9）．測定手順は表1に従い，プレヒート条件を220℃で60秒，カットヒート条件を160℃とした．その結果，評価した線量にかなりのばらつきがあることが認められた．層序から想定された年代からすると，この堆積物の蓄積線量の予想は約23 Gyとなるが，18試料皿中12試料皿の試料から評価した線量は予想された蓄積線量より小さかった．このように評価した線量がばらつく原因は土壌の撹乱（生物擾乱など）が生じていると考えられ，評価する年間線量も撹乱によって生じる影響を考慮しなければならないと考える．

以上，奈良教育大学で実施されてきた方法を中心に著者らが実際に測定する方法や手順をまとめてみた．1960年代にHigashimura *et al.*（1963）が広島の原爆瓦を試料としてTL測定に成功して以来，日本においてもルミネッセンス年代測定は確実に定着し，進歩してきているだろう．しかし，測定環境や測定法が充実してきた昨今にもかかわらず，日本では諸外国ほどルミネッセンス年代測定例が増えていないのが現実である．

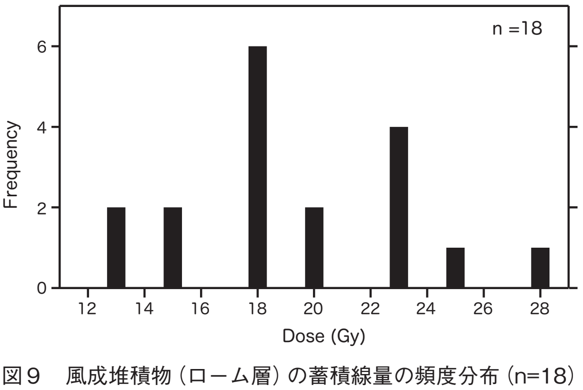

図9　風成堆積物（ローム層）の蓄積線量の頻度分布（n=18）

「年代測定法が成熟し老年期に入ると，地質学者が年代値を必要とする時に，その値を出すことのできる人（研究機関）が存在しないことが起こる．数年たつと外国から技術導入しなければならなくなる．だから，より簡単に，誰でもESR年代測定できるアニュアル化が必要になる．これは，TLやOSL法も同じである．」（池谷，2003）

今後，日本国内の試料についてルミネッセンス年代測定例がますます増えていくことを期待したい．そのためにも，ルミネッセンス年代測定の研究者が集うESR応用計測会とルミネッセンス年代測定研究会などを通じて研究者のネットワークが広がることを期待してやまない．

最後に，諸外国の近況に若干目を向けたい．

6. 世界の近況と期待される試料

2008年の北京で開催されたルミネッセンスと電子スピン共鳴年代測定の国際会議（12th International Conference of Luminescence and Electron Spin Resonance Dating ; LED2008）では，SAR法による長石試料を用いた年代測定の開発が発表の主流であった．SAR法による石英試料の測定はひとまず手法として確立されたが，地質試料の多く，特に北欧に多い氷河堆積物などには石英が含まれていないため，長石を用いた方法へと研究のベクトルが向いているようである．長石を用いた際のfading（熱的に安定であるはずの捕獲電子が消失する現象）の補正には，Huntly and Lamothe（2001）が考案したg値（信号の減衰する割合）による補正方法が使用されている．

今後期待される研究では，津波堆積物の年代測定が挙げられる．ポルトガル沿岸で行われた測定例（Cunha，2008）がLED2008で一件口頭発表されたが，やはり津波堆積物はイベントが一時的で非常に短期間に起こる現象であることから，タイムゼロイングがどの程度なされているかなど，得られた結果に懐疑的になる研究者が多数あるように見受けられた．しかし，巨大な津波ほどその営力が大きいことがタイムゼロイングの不完全さを追求することにより証明されるのではないかというコメントもある（七山ほか，2009）．また，SAR法を一歩進めたsingle grain regenerative-dose法による粒子ごとの露光の割合を評価する研究を行うことは価値があるだろう．前述した白井ほか（2008）の研究も含め，津波堆積物やその源となる海底堆積物などへのOSL年代測定法の応用は今後さらに期待されるところである．

謝辞

蒜山地質年代学研究所の竹下浩征所長，八木公史博士ならびに郷津知太郎博士には，本稿執筆の機会を与えて頂いた．著者の一人（奥村）は，同研究所の研究員として約7ヶ月間お世話になり，岡山理科大学自然科学研究所の板谷徹丸教授ならびに同大学理学部の豊田新教授の勧めもあって同大学オープンリサーチセンターにおいてOSL/TL年代測定装置の開発に携わることができた．竹下所長をはじめ蒜山地質年代学研究所の皆さまのご理解とご協力がなければ，このような形で研究を勧めることはできなかったであろう．また，岡山理科大学理学部の中川益生教授には，装置開発にあたり初歩から指導していただいた．本文記述には，著者の一人（下岡）が奈良教育大学教育学部長友恒人教授から御指導・ご教示いただいたものが多く含まれている．以上の皆様に，衷心より謝意を表します．

文献

Adamiec, G. and Aitken, M. J.（1998）Dose-rata conversion factors: Update. *Ancient TL*, **16**, 37-50.

Aitken, M. J.（1985）Thermoluminescence dating. Akademic Press, London, 357p.

Aitken, M. J.（1998）An Introduction to Optical Dating. Oxford University Press, Oxford, 267p.

Banerjee, D., Murray, A. S., Bøtter-Jensen, L. and Lang, A.（2001）Equivalent dose estimation using a single aliquot of polymineral fine grains. *Radiation measurements*, **33**, 73-93.

Blain, S., Guibert, P., Bouvier, A., Vieillevigne, E., Bechtel, F., Sapin, C. and Baylé, M.（2007）TL-dating applied to building archaeology: The case of the medieval church Notre-Dame-Sous-Terre（Mont-Saint-Michel, France）, *Radiation Measurements*, **42**, 1483-1491.

Chesner, C. A., Rose, W. I., Deino, A., Drake, R. and Westgate, J. A.（1991）Eruptive history of Earth's largest Quaternary caldera（Toba, Indonesia）clarified, *Geology*, **19**, 200-203.

Cunha, P.（2008）OSL dating of clastic deposits generated by extreme marine coastal floods（Algarve, Portugal）, 12th International Conference of Luminescence and Electron Spin Resonance Dating.

Daniels, F., Boyd, C. A. and Saunders, D. F.（1953）Thermoluminescence as a research tool. *Science*, **117**, 343-349.

雁澤好博・臼井理沙・田中　瞳・東　剛（2007）SAR法による洞爺火砕流堆積物の赤色熱ルミネセンス年代測定．地質学雑誌，**113**，470-478.

Godfrey-Smith, D. I., Huntly, D. J. and Chen, W. H.（1988）Optical dating studies of quartz and feldspar sediment extracts. *Quaternary Science Reviews*, **7**, 373-380.

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．分析化学，**51**，625-632.

幡谷竜太・白井正明（2003）浅海成堆積物のOSL年代．第四紀研究，**42**, 347-359.

Higashimura, T., Ichikawa, Y. and Sidei, T.（1963）Dosimetry of Atomic Bomb radiation in Hiroshima by Thermoluminecence of roof tiles. *Science*, **139**, 1284-1285.

Huntley, D., Godfrey-Smith, D. and Thewalt, M. L. W.（1985）Optical datig of sediments. *Nature*, **313**, 105-107.

Huntly, D. and Lamothe, M.（2001）Ubiquity of anomalus fading in K-feldspars and the measurement and correction for it in optical dating. *Canadian Journal of Earth Sciences*, **38**, 1093-1106.

Hütt, G., Jaek, I. and Tchonka, J.（1988）Optical dating: K-feldspars optical response stimulation spectra. *Quaternary Science Reviews*, **7**, 381-385.

池谷元伺（2003）巻頭言 秋芳洞の年代測定からESR応用30年の懐古談．ESR応用計測，**20**，2.

Kennedy, G. C. and Knopff, L.（1960）Dating by thermoluminescence. *Archaeology*, **13**, 147-148.

Kondo, R., Tsukamoto, S., Tachibana, H., Miyairi, Y. and Yokoyama, Y.（2007）Age of glacial and periglacial landforms in northern Hokkaido, Japan, using OSL dating of fine grain quartz. *Quaternary Geochronology*, **2**, 260-265.

近藤玲介・塚本すみ子（2009）北海道北部，利尻火山西部におけるOSL年代測定による古期火山麓扇状地の形成年代．第四紀学研究，**48**，243-254.

Mejdahl, V.（1979）Thermoluminescence dating: bata-dose attenuation in quartz grains. *Archaeometry*, **21**, 61-72.

宮入陽介・横山祐典・塚本すみ子（2007）SAR法を

用いた高精度 RTL 年代測定－テフラ試料への適用法の開発－．日本第四紀学会講演要旨集，**37**，46-47.

Murray, A. S. and Wintle, A. G.（2000）Luminescence dating of quartz using an improved single-aliquot regenerative-dose protocol. *Radiation Measurements*, **32**, 57-73.

長友恒人（1991）TL および ESR 年代測定のための年間線量率の測定．月刊地球，**13-4**，249-253.

長友恒人（1999）考古学のための年代測定学入門．古今書院，東京，161p.

Nagatomo, T. and Nishimura, S.（2003）Estimation of the firing temperature of ancient ceramics and burnt stones. *Advances in ESR applications*, **20**, 40.

七山 太・長友恒人・下岡順直・須崎憲一・古川竜太・重野聖之・石井正之・猪熊樹人・北沢俊幸・中川 充（2009）ルミネッセンス法を用いた津波堆積物の年代測定の試み：北海道東部，根室沿岸低地の試料を例として．地質学雑誌，**115**，249-260.

西村誠治・長友恒人・鐘ヶ江賢二・長友朋子（2007）IRSL 法による弥生土器の被熱温度推定．日本文化財科学会発表要旨集，**24**，36-37.

Okumura, T., Nishido, H., Toyoda, S., Kaneko, T., Kosugi, S., Sawada, Y. and Komuro, K.（2008）Evaluation of radiation-damage holos in quartz by cathodoluminescence as a geochronological tool. *Quaternary Geochronology*, **3**, 342-345.

Prescott, J. R. and Hutton, J. T.（1994）Cosmic ray contributions to dose rates for luminescence and ESR dating: Large depths and long-term time variations. *Radiation Measurements*, **23**, 497-500.

Rees-Jones, J. and Tite, M. S.（1997）Optical dating results for British archaeological sediments. *Archaeometry*, **36**, 177-187.

Roberts, H. M. and Wintle, A. G.（2001）Equivalent dose determination for polymineralic fine-grain using the SAR protocol: application to a Holocene sequence of the Chinese Loess Plateau. *Quaternary Science Reviews*, **20**, 859-863.

笹田幸佑・長友恒人・小林謙一（2008）ルミネッセンス法を用いた縄文草創期土器の年代測定．日本文化財科学会大会研究発表要旨集，**25**，58-59.

白井正明・塚本すみ子・近藤玲介（2008）OSL 強度より推定する現世河川堆積物中の長石粒子の露光状況と運搬－堆積過程．第四紀研究，**47**，377-389.

下岡順直・長友恒人・鶴 明信（2009）テフラの TL 年代と既報年代の比較．ESR 応用計測，**25**，56.

Sugisaki, S., Buylaert, J.-P., Murray, A., Tsukamoto, S., Nogi, Y., Miura, H., Sakai, S., Iijima, K. and Sakamoto, T.（2009）High resolution OSL dating back to MIS 5e in the central Sea of Okhotsk. *Quaternary Geochronology*, **5**, 293-298.

Sun, X., Guo, M., Degawa, T., Aoki, S. and Nagatomo, T.（2009）Validity of TL Dating Method Applied to Tang Dynasty Three-Color-Glazed Pottery. '09 古陶瓷科学技術 7 国際討論会論文集，86-94.

高島 勲（1996）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**，209-220.

高田将志・長友恒人（1999）第四紀試料のルミネッセンス年代測定－その現状と展望－．月刊地球，号外 26，108-118.

塚本すみ子・岩田修二（2005）ルミネッセンス年代測定法の最近の進歩－適用年代の拡大と石英の OSL 成分について－．地質学雑誌，**111**，643-653.

Tsukamoto, S., Rink, W. J. and Watanuki, T.（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.

Ugumori, T. and Ikeya, M.（1980）Luminescence of $CaCO_3$ under N_2 laser excitation and application to archaeological dating. *Japanese journal of applied physics*, **19**, 459-465.

Watanuki, T.（2002）Chronological study of loess-palaeosol by improved method of luminescence dating and application to reconstruct past environmental changes. Unpublished PhD Thesis, Tokyo Metropolitan University, 38p.

Wintle, A. G.（2008）Fifty years of luminescence dating. *Archaeometry*, **50**, 276-312.

Wintle, A. G. and Murray, A. S.（2006）A review of quartz optically stimulated luminescence

characteristics and their relevance in single-aliquot regeneration dating protocols. *Radiation Measurements*, **41**, 369-391.

財団法人放射線利用振興協会（2004）放射線と産業，**101**，4-47.

補遺：本稿は2009年脱稿であり，その後の情報は入っていない．最新情報については，『Radiation measurements』，『Quaternary Geochronology』，『ESR応用計測』などを参照されたい．