火山岩類の熱ルミネッセンス年代測定の精度検証 —— 雲仙火山火砕流堆積物の β 線量精密補正年代 ——*

Verification of errors and reliability of thermoluminescence age for volcanic rocks
—— Precise beta-ray correction age of pyroclastic flow deposits of Unzen volcano, SW Japan ——

島 雄 隆 (Takashi SHIMAO)**
高 島 勲 (Isao TAKASHIMA)***
渡 辺 公 一 郎 (Koichiro WATANABE)****
井 沢 英 二 (Eiji IZAWA)****

Thermoluminescence (TL) age determination was carried out for 18 samples from four pyroclastic flow deposits (Mutsugi, Kureishibaru, Furue and Yugawachi) of Unzen volcano, SW Japan. The TL growth curve method was used for quartz phenocrysts to determine the ages. Major inaccuracy of TL dating is caused in annual dose evaluation, especially in determination of beta rays contributions. Therefore, the beta ray correction was done by measurement of quartz phenocryst diameter on thin sections.

The TL ages for Mutsugi, Kureishibaru, Furue and Yugawachi pyroclastic flow deposits indicated 4.9 ± 0.4 ka, 23 ± 1 ka, 23 ± 1 ka and 77 ± 6 ka, respectively, which are average of 3 to 6 samples collected from same outcrop each. These ages consistent with ^{14}C ages and stratigraphy identified by tephra.

Keywords: Thermoluminescence age, Unzen volcano, Pyroclastic flow deposits, Beta ray correction

I. はじめに

熱ルミネッセンス (TL) 年代測定は、石英を含む火山岩、テフラや変質岩の年代を求める方法として注目され、近年多くの結果が出されている (平賀・市川, 1988; Takashima and Watanabe, 1994; Takashima and Wood, 1996 等)。しかし、TL 年代値算出に関する要素が多くあり (高島, 1995)、それらの要素のいくつかについては必ずしも正確な評価がなされて

いるとはいえない。また、研究者間で異なる計算法が用いられ、同一地層の年代が一致しないこともあった。このような理由で、地質学分野における TL 年代への信頼度は必ずしも高いとはいえない状況にある。

上記の問題については、地質試料の特性を考慮した水分量見積もりや宇宙線量評価法を提示し、考古学試料とは異なる取り扱いが必要なことを指摘した (高島, 1995)。筆者らのこれまでの研究から、TL 測定により正確な年代を求めるためには、他の年代測定法と同様

(平成 10 年 9 月 8 日受付, 平成 11 年 3 月 15 日受理)

- * 1998 年日本岩石鉱物鉱床学会平成 9 年度学術講演会 (仙台) にて発表
- ** 鉄建建設株式会社, 〒101-8366 東京都千代田区三崎町 2-5-3
- *** 秋田大学工学資源学部附属素材資源システム研究施設, 〒010-8502 秋田市手形学園町 1-1
- **** 九州大学大学院工学研究科地球資源システム工学専攻, 〒812-8581 福岡市東区箱崎 6-10-1
- ** Tekken Co. Ltd., 2-5-3 Misaki-cho, Chiyoda-ku, Tokyo 101-8366, Japan
- *** Research Institute of Materials and Resources, Faculty of Engineering and Resource, Akita University, 1-1 Tegatagakuen-cho, Akita 010-8502, Japan
- **** Department of Earth Resources Engineering, Kyushu University, 6-10-1 Hakozaki, Higashi-ku, Fukuoka 812-8581, Japan

Fig. 1. Geological map around Unzen volcano (simplified from Watanabe and Hoshizumi, 1995) with sample locations.

に試料の選択が重要であるとの結論が得られている。火山岩類についていうならば、採取した試料の分析、解析のみからは得られない地質時代を通じての変動、すなわち水分や放射性元素の移動、宇宙線量の寄与が誤差に与える影響の少ない試料を選ぶことである。火山岩類の場合そのような試料は、(1) 水分がほとんどない固結した岩石であり、(2) 宇宙線量の変動の影響が相対的に少なくなる放射性元素の多く含まれる岩石である。そのような岩石を選択し得た場合でも、様々な大きさを持った石英結晶が存在していれば、石英が受ける β 線量の評価が困難となり、年代値に大きな誤差を生じる。このため本研究では、上記2条件を満たす試料に対し、 β 線量の補正を厳密に行った場合、既存の信頼できる年代値や層序データとの比較により TL 年代がどの程度の誤差で求めるものかを検証した。

測定対象とした雲仙火山では、1990 年 11 月に普賢岳が噴火活動を開始し、1996 年 6 月に活動が終息するまで火砕流や土石流が多発し、多くの人命が奪われ多大な被害もたらされた。この噴火活動では、火砕流の発生が当初ほとんど予測されていなかった。これは雲仙火山における過去の火砕流堆積物が十分識別されておらず、またそれらの発生年代もほとんど分かっていなかったことが一因と考えられる。噴火の推移を推定し、過去の噴火活動を復元する膨大な研究の一環として行われた調査の結果、雲仙地域の火山噴出物の層序についても実態がほぼ解明され、雲仙火山地質図としてまとめられている(渡辺・星住, 1995)。年代に関しては、K-Ar 法(Watanabe *et al.*, 1993)やフィッシュトラック(FT)法(岡口・大塚, 1980; 宮地・太田, 1985; Sugiyama *et al.*, 1986)による研究例が

あるものの、詳細な火山活動史を議論するには十分ではない。

筆者らの研究グループでは、雲仙地域の火山岩類の TL 年代を 200 個以上測定し、その一部はすでに報告した (高島・渡辺, 1991; Takashima and Watanabe, 1994)。そこでは、眉山岩体の年代がそれまで考えられていた FT 法による 10~7 万年 (宮地・太田, 1985; Sugiyama *et al.*, 1986) や、K-Ar 法による 2 万年 (Watanabe *et al.*, 1993) より著しく若い 3 千年前後であることを示し、それは精密な FT 年代測定 (檀原ら, 1993) で追認された。また、雲仙火山の活動年代について、基底部をなす岩体の年代が 23~18 万年であり、南東部から北西部に向かって若くなること、中心部の火山群についても同様に南一西一東という活動中心の移動が認められ、各々の活動と休止の期間が特定されたことにより、活動の時空分布に一定の見解を示した。しかし、それらの TL 年代データは前述の理由により他の手法による年代値に比べ、利用されることが少ない。そこで、あらたな年代の公表に先だって TL 法の信頼性について分かり易い形で紹介し、現時点でも広く認められているとはいえない TL 法による年代データを、地質研究者がどのような基準で使うべきかの判断材料を提供することが重要と考えた。そのような観点から、雲仙火山地域東部に分布し、対象とする年代範囲では最も信頼できる ^{14}C 年代が報告されている、あるいは広域テフラにより年代値対比が可能な 4 層の火砕流堆積物 (六ツ木火砕流堆積物、礫石原火砕流堆積物、古江火砕流堆積物及び湯河内火砕流堆積物) に絞って TL 年代測定の誤差や信頼性を検討した結果を報告する。

II. 地質概要と測定試料

雲仙火山は別府一島原地溝の西端に位置し、島原半島の中央部の普賢岳を中心とする溶岩ドーム群と周辺の火山砕屑岩層よりなり、東西 20 km、南北 25 km の広大な範囲を占めている。雲仙火山の地質区分や火山岩石学については多数の研究がある (本間, 1936; Sendo *et al.*, 1967; 太田, 1984; 古川・満塩, 1987; 田中・中田, 1988 等) が、ドーム状の山体が多く岩体相互の上下関係がはっきりしていない。年代測定もいくつかなされている (岡口・大塚, 1980; Sugiyama *et al.*, 1986; Watanabe *et al.*, 1993 等) が、広域テフラの上下関係と矛盾するものも含まれ、再検討が必要である。

雲仙における火砕流の過去の活動については、小

林・加藤 (1986)、小林・中田 (1991)、小林・尾関 (1991)、尾関・小林 (1991)、渡辺・星住 (1995) などの研究があるが、今回研究対象とした火砕流では、 ^{14}C 法により六ツ木火砕流堆積物と礫石原火砕流堆積物の年代が求められている以外は直接の年代測定値は報告されていない。なお、火砕流の名称とその同定については研究者により認識の不一致がみられるため、本報告では最近まとめられた雲仙火山地質図 (渡辺・星住, 1995) による認定を採用している。従って、年代値を報告している原著文献の記載と地層名認識が異なる場合があることを断っておく。

年代測定試料は、雲仙火山地質図 (渡辺・星住, 1995) を基に採取した (Fig. 1)。試料採取に関しては、各火砕流堆積物毎に同一露頭で本質岩片 (普遍的に存在し、周辺部に風化等のみられないもの) を 3~6 個採取し、各試料について年代を求めた。マトリックス部でなく岩片試料を選定したのは、年間線量計算時の不確定要素となる水分量が少なく、放射性元素の移動 (溶脱) の可能性が低いと判断されたからである。この点については、後で議論を行う。なお、このような試料採取と TL 年代測定は、高温で流れた火砕流と低温で流れた泥流を区別するのに有効である (前者では高温によるリセットですべての岩片の年代が同じになるのに対して、後者は大きく変動する可能性がある)。以下に、試料採取 4 地点の記載を行う。

1. 六ツ木火砕流堆積物

(試料採取地点; $32^{\circ}47'10''\text{N}$, $130^{\circ}20'28''\text{E}$)

本層は七面山北方に分布し、角閃石デイサイトの緻密な本質岩塊と比較的少量の同質の細粒物からなる。小林・尾関 (1991) では六ツ木岩屑なだれ堆積物とされており、鬼界アカホヤ火山灰 (K-Ah, 6.3 ka) の上位に位置している。 ^{14}C 年代は、約 4000 年の値を示している (小林・加藤, 1986)。試料採取地点は、六ツ木町である。この露頭では、島原岩屑なだれ堆積物の上に六ツ木火砕流堆積物が堆積しており、そこから黒雲母普通角閃石デイサイト質の本質岩片試料を 4 個採取した (SB2005A-D)。

2. 礫石原火砕流堆積物

(試料採取地点; $32^{\circ}47'20''\text{N}$, $130^{\circ}19'20''\text{E}$)

本層は、妙見岳北部から北東にかけて広く分布している。層厚は 0.5~3 m で、こぶし大以下の本質岩塊を大量に含み細粒物質に乏しい (渡辺・星住, 1995)。礫質の堆積物中に炭化した小枝がごくまれに発見でき、これらの炭化木片を用いた ^{14}C 法の年代測定から約 14000 年及び約 19000 年のデータが得られている (小

林・中田, 1991)。TL 年代試料採取地点は、約 19000 年という ^{14}C 年代が得られた島原市立野である。この露頭から黒雲母角閃石デイサイト質の火山礫試料を 6 個採取した (SB802A, SB2002A-E)。

3. 古江火砕流堆積物

(試料採取地点; $32^{\circ}44'13''\text{N}$, $130^{\circ}19'02''\text{E}$)

本層は普賢岳南東に分布し、堆積物はこぶし大～人頭大の緻密な角閃石デイサイト本質岩塊と同質の火山灰からなる (渡辺・星住, 1995)。試料採取地点は、ボタン山南西麓である。高さ約 14 m の火砕流堆積物よりなる大露頭で、その中に約 20～30 cm 程度の岩片として存在する黒雲母角閃石デイサイト質試料を 5 個採取した (SB803A-B, SB2004B-D)。

4. 湯河内火砕流堆積物

(試料採取地点; $32^{\circ}41'56''\text{N}$, $130^{\circ}18'13''\text{E}$)

本層は野岳南方に分布し、有家町に広がる扇状地の上部を覆っている。青灰色～白色の角閃石安山岩～デイサイトの緻密な火砕流堆積物で、一部ではやや発泡した本質岩塊と同質の細粒物からなる (渡辺・星住, 1995)。試料採取地点は、有家町広野である。露頭では、下部にオレンジ色を呈し粘土化した Aso-4 火砕流堆積物と推定される地層があり (尾関, 1991; 私信), その上を本層が覆っている。火砕流堆積物中には 10～12 cm 程度の炭化木片が確認できる。ここから、発泡していない緻密な輝石角閃石安山岩の岩片を 3 個採取した (SB804A, SB2003A-B)。

III. TL 年代測定

年代測定に用いた試料の調整は、以下のように行った。まず、試料 500 g 程度をステンレス乳鉢で粉碎し、0.84 mm (20 メッシュ) のふるいを全量通過させた。この試料 290 g を正確に秤量して直径 80 mm、高さ 40 mm のプラスチック容器に詰め、放射性元素濃度測定に使用した。残り 210 g について全量粉碎とふるい分けを行い、粒径 0.25-0.074 mm (60-200 メッシュ) の部分を回収した。粉碎処理の過程で、摩擦による人工的な発光が生ずる可能性が指摘されているが (Aitken, 1985), 年代ほぼゼロの平成噴火火山岩の処理で発光が認められなかったこと、これまでの多くの測定値が異常値を示さなかったことから、影響はないと評価される。粉碎試料はアイソダイナミックセパレーターにより無色鉱物を分離後、塩酸及び弗化水素酸により純化、精製して石英試料を得た (詳細な実験条件は高島・本多 (1989) を参照されたい)。さらに、① 未処理石英、② 天然試料に追加して人工的に γ 線を照射した石

英、③ 320°C , 1 時間の加熱により過去に蓄積した TL をゼロにしたのち γ 線を照射した石英、の 3 種について発光測定 (照射後は 130°C 24 時間アニーリング) を行い、その結果からパレオドース (PD) を求めた。

各試料の石英に対する γ 線照射は、アクリル樹脂製容器を用い、その中に石英を封入して行った。 γ 線吸収の安定化を図るためのビルドアップ遮蔽層としては、アクリル樹脂により 4 mm 以上を確保した。試料 SB802A, SB2002A-E, SB803A-B, SB804A, SB2003A-B の 11 個の石英については、工業技術院物質工学工業技術研究所の ^{60}Co (1.11×10^{14} Bq) を用いて 45 分間 γ 線を照射した。残りの SB2005A-D, SB2004B-D の 7 個については、秋田大学医学部附属病院中央放射線部の ^{60}Co (5.10×10^{12} Bq) を用いて 60 分間照射を行った。

Fig. 2. TL glow curves for making TL growth curve.

Abbreviations; a.u., arbitrary unit; N+, gamma ray irradiated to natural quartz; H+, gamma ray irradiated to pre-heated quartz.

発光測定は、室温から 450°C まで 150°C / 分で昇温させ、窒素ガスの雰囲気中でバイアルカリ光電面を持った光電子増倍管を用いて測定した。測定波長が 500–700 nm となるよう、フィルターを選定した。パレオドースを求めるに当たっては、生長曲線法（高島・本多, 1989）を用いた。実際の発光測定と生長曲線の例として、試料 SB2002A の結果を Fig. 2 及び Fig. 3 に

Fig. 3. TL growth curve for calculating paleodose. Abbreviations; N, cross point of TL growth line and natural peak height expressed as TL ratio; H+ and N+, same as Fig. 2.

示した。

年間線量 (AD) を求める方法には、放射線検出素子を試料採取地点に埋め込む方法 (Ichikawa and Nagatomo, 1978 等) もあるが、固結した岩石には適用困難であり、 β 線寄与の評価もできないことから、全岩試料の放射性元素 (U, Th, K_2O) 及び付着水分量の分析を行って計算した。放射性元素測定は、前述の 290 g の試料について γ 線スペクトロメトリ法を用いて全岩試料中の (U, Th, K_2O) の含有量を測定し、付着水分量については 105°C で恒量に達するまで乾燥させた時の減量から求めた。これらの値から、Bell (1979) 及び Aitken (1985) のデータに基づき年間線量を算出した。なお、エッチングにより石英粒子の表面より少なくとも 10 μm の部分は除去されているので、石英粒子のパレオドースへの α 線の寄与は無視することができる。

年間線量計算における β 線寄与率評価のため、各本質岩片の薄片を作製して、CCD カメラを装着した偏光顕微鏡を用いて観察し、テレビモニター上で石英斑晶の粒径を測定した。実効 β 線量の粒径依存性の問題は本研究の主要課題であり、後に詳しく議論を行う。

宇宙線については、採取地点の過去の削剥量見積もりが困難なため、ゼロとして年間線量を計算した。この取り扱いは明らかに年間線量を少なく見積もることになり、結果として年代は真の値より古くなる。その

Table 1. TL age data of pyroclastic flow deposits of Unzen volcano

Sample No.	U(ppm)	Th(ppm)	K_2O (%)	H_2O (%)	AD (mGy/a)	PD (Gy)	TL age (ka, $\pm 1 \sigma$)	
1. Mutsugi Pyroclastic Flow Deposit								
SB2005A	2.7	10.3	2.78	0.0	2.16	11.3	5.2 $\pm$ 1.1	
SB2005B	2.6	9.9	2.62	0.0	2.48	10.4	4.2 $\pm$ 0.5	
SB2005C	2.5	9.9	2.77	0.0	2.03	10.9	5.4 $\pm$ 0.7	Weighted mean
SB2005D	2.7	9.7	2.69	1.0	2.20	12.5	5.7 $\pm$ 1.1	4.9 $\pm$ 0.4ka
2. Kureishibaru Pyroclastic Flow Deposit								
SB802A	2.2	7.6	1.74	0.9	1.92	44.8	23 $\pm$ 3	
SB2002A	2.6	9.3	2.50	0.2	2.28	48.2	21 $\pm$ 3	
SB2002B	2.3	9.4	2.37	0.8	2.40	47.1	20 $\pm$ 2	
SB2002C	2.4	9.9	2.40	0.6	2.30	51.6	22 $\pm$ 3	
SB2002D	2.6	9.3	2.43	0.3	2.42	62.5	26 $\pm$ 3	Weighted mean
SB2002E	2.4	8.8	2.36	0.0	2.30	54.1	24 $\pm$ 3	23 $\pm$ 1ka
3. Furue Pyroclastic Flow Deposit								
SB803A	2.5	9.0	2.18	1.0	2.18	61.2	29 $\pm$ 4	
SB803B	2.2	10.1	1.93	2.0	1.79	36.2	20 $\pm$ 3	
SB2004B	2.4	9.5	2.49	2.0	2.09	44.6	21 $\pm$ 3	
SB2004C	2.3	9.2	2.62	0.0	2.28	55.7	24 $\pm$ 3	Weighted mean
SB2004D	2.1	9.2	2.48	0.0	2.37	50.0	21 $\pm$ 3	23 $\pm$ 1ka
4. Yugawachi Pyroclastic Flow Deposit								
SB804A	2.3	8.9	1.69	4.0	2.26	184	81 $\pm$ 11	
SB2003A	1.9	7.1	2.26	0.0	2.46	177	72 $\pm$ 13	Weighted mean
SB2003B	2.2	7.3	2.27	0.0	2.50	190	76 $\pm$ 8	77 $\pm$ 6ka

変化の程度についても後に議論を行なう。

最終的に、以下の式に従って年代 (TL age) を求めた。

$$TL\ age\ (ka) = \frac{PD}{AD} \left\{ 1 \pm \sqrt{\sigma^2 + \delta^2} \right\}$$

ここで、 σ は生長曲線の標準偏差である。 δ は年間線量の誤差であり、放射性元素分析の誤差として想定した一律 10% に対応する 0.1 を使用した。

得られた年代値を Table 1 に示す。ここで、各個別岩片から得られた年代値の加重平均 (T_{0WM}) とその誤差 (σ_{0WM}) を下記の式で求め、各火砕流堆積物の年代データとした。

$$T_{0WM} = \frac{1}{\sum N_i} \cdot \sum [N_i \cdot T_i] \quad \sigma_{0WM} = T_{0WM} \times \sqrt{\frac{1}{\sum N_i}}$$

ここで、 T_i は各々の TL 年代であり、重み N_i は、 σ_i を各々の年代誤差として、 $N_i = (T_i/\sigma_i)^2$ で評価している。

IV. 実効 β 線量の評価を考慮した年間線量の補正

本研究で使用した測定試料は、全て発泡していないか発泡の程度の小さい緻密な本質岩片である。そのような試料は、固結して水分量が少ないことから、年間線量を計算するにあたって不確定要素となる、放射性元素の溶脱や放射線が水によって遮蔽される効果の評価を無視できるという利点を有する。放射性元素の溶脱について、Fig. 4 で一つの例を説明する。この図は、今回測定した Table 1 の試料に加え、多くの雲仙火山試料の K_2O の分析結果をまとめたものである。水分量の少ない本質岩片では K_2O の含有量は、ほぼ 1% 以上であるのに対し、細粒マトリックス部分のそれは、水分量の増加に伴い減少する傾向がある。すなわち、水の透過により K_2O が溶脱を受けるという化学的風化現象を示しているといえる。なお、火砕流を供給した岩石に低い K_2O 含有量を示すものがない(渡辺・星住, 1995) ことから、周辺の細粒マトリックス部分が本質的に K_2O が少なかったという推定は成り立たない。このような溶脱の影響を除く意味からも、TL 年代測定には固結した試料を使うことが要請される。なお、同様の図を他の放射性元素である U と Th について描いたところ、細粒マトリックス部分でも水分量の増加にともなう減少はなく、溶脱は起きていないと判定される。従って、 K_2O 及び水分量について適当な補正ができるならば、細粒マトリックス部分についての TL 年代測定の正確度確保が可能であるが、現状では適当な手法の提案はない。

固結本質岩片による TL 年代では、岩石中にある石英が被曝する β 線量の評価は極めて重要である。岩石中に含まれる石英はその周りから飛来する放射線に被曝するが、それらの放射線の中で β 線は石英中でも減衰することが知られており、その実効的透過能は放射線物理の知識から 3~5 mm であるとされている。そのため、実効 β 線量の評価には、岩石中に含まれる石英の粒度分布を知ることが必要である。石英の粒径がわかれば、それに対応した β 線の減衰そして実効被曝量の評価が Mejdahl (1979) による研究から可能である (Fig. 5)。

Fig. 4. Variation of H_2O - K_2O for the rock blocks and matrix samples from Unzen volcano.

Fig. 5. Absorption of beta dose in quartz grains (modified from Mejdahl, 1979).

本質岩片の石英の粒度分布を知る方法として、切断面の肉眼観察、イメージングプレートの利用や熱物性変化を赤外放射温度計で検出することなどが考えられるが、現時点までの予備的実験ではいずれも成功していない。そこで、最も標準的な薄片観察を採用した。測定は薄片を10枚程度作成し、鏡下で観察を行った。石英斑晶の粒径測定には、長径とそれに直交する短径の両方を測定し、その平均値をとった。測定した石英斑晶の粒子数は、30~70個程度である。

鏡下で得られた石英斑晶の粒度は、切断面が中心を通らない可能性があることから、必ずしも真の粒径を表しているとは限らない。向井(1957)は、鏡下で得られた球状鉱物の粒径分布から真の粒径分布を推定するための理論式を導出した：

$$f(r) = -\frac{2}{\pi} r \int_0^{\infty} \frac{r}{u^2} \left[P'(u) - \frac{P(u)}{u} \right] ds$$

$$u = \sqrt{r^2 + s^2}$$

ここで、パラメーター r は鉱物の粒径、 $f(r)$ は真の粒径に近いと推定される鉱物の粒径分布、そして $P(u)$ は鏡下で得られた鉱物の粒径分布である。この積分方程式の解は存在しないので、シンプソンの近似式並びに補間法で近似計算を行う。パソコンによるC言語プログラムを用いて計算し、その計算結果を β 線量の補正を行なうためのデータとした。今回年代測定に用いた石英試料はほとんど融食形を示したが、球状と仮定して取り扱った。

Fig. 6 は、その計算結果の一部を示したものである。なお、1つの階級における石英の粒径は、平均値を用いた。例えば、六ツ木火砕流堆積物の試料 SB2005D では、階級 1.2-1.5 mm にある石英の個数は補正されたデータで7個あるが、この7個すべてが1.2 mmと1.5 mmの平均値、1.35 mmの粒径の石英として計算した。そして、各々の粒径に相当する体積による加重平均粒径を Mejdahl(1979) により得られた粒度別の β 線寄与率データに当てはめ、年間線量を算出した。その計

Fig. 6. The frequency of quartz grain diameter of dacitic pyroclastic flow deposits for the Unzen volcanic rocks. PFD: Pyroclastic Flow Deposit, n: number of total quartz grains measured.

算式は、Bell(1979) 及び Aitken(1985) によるもので、以下の通りである：

$$AD \text{ (mGy)} = \frac{0.1148U + 0.0514T + 0.2069K}{1 + 1.14W} + \frac{0.1462U \cdot B(U) + 0.0268T \cdot B(Th) + 0.6893K \cdot B(K)}{1 + 1.25W}$$

ここで、 U , T はそれぞれウランとトリウムの含有量 (ppm), K は K_2O 含有量 (%), $B(U)$, $B(Th)$ 及び $B(K)$ はこれまで述べてきた β 線寄与率であり、 W は含水率 (%/100) である。

V. 結果および考察

1. β 線量評価の精密化による年代の正確度検討

Takashima and Watanabe(1994) では、 β 線寄与率計算の基礎となった石英粒径は、簡単な肉眼観察から、0.3~1.5 mm とした。前章で述べたような石英粒径の測定は、より正確な TL 年代を与える。石英粒径の見積もり誤差がどの程度の年代変動をもたらすかは、簡単に評価できる。例えば、Table 1 の礫石原火砕流堆積物 (SB802A) の場合、測定試料に含まれている石英

の粒径を肉眼観察から 0.5 mm とすると β 線寄与率は 0.76 となり、10 枚の薄片観察から求めたより厳密な粒径によるそれは 0.54 となる。この補正係数の違いにより、TL 年代値は 19 ka から 23 ka と 20% 程度古くなる。

六ツ木火砕流堆積物、礫石原火砕流堆積物および湯河内火砕流堆積物では、石英粒径の頻度分布は比較的連続的であるのに対し、古江火砕流堆積物では少数の大粒径粒子が不連続な分布で出現する (Fig. 6)。このような大粒径石英の取り扱いについては、やや問題が残る。Fig. 7 は、古江火砕流堆積物試料 SB803B の石英粒度分布の測定結果と得られる年代値の関係を示したものである。この試料は、薄片を 10 枚作成して鏡下で観察しており、3.6~3.9 mm の間に出現する石英を検出できた場合は 20 ± 3 ka となるが、検出できなかった場合 18 ± 2 ka と年代値が若くなる。さらに、2.7~3.0 mm の間にある石英も検出できなかった場合には 17 ± 2 ka となり、中心値は最初の年代値の誤差範囲限界まで若くなる。

実際の TL 年代測定では、岩石中に含まれている径

Fig. 7. Change of TL age with quartz diameter observation for Furue Pyroclastic Flow Deposit (PFD).

Fig. 8. Corrected TL age with number of measured thin sections. TL age is stabilized by measuring more than 6 thin sections.

の大きい石英のパレオドースを計測していることが十分に考えられ、薄片観察でたまたま観察できなかった径の大きな石英のパレオドースを計っている場合があり得る。たった1個の飛び抜けて径の大きい石英を鏡下で観察できたか否かで年代値が大きく変動するのは、年代値の信頼度を左右する大きな問題で、これを解決するに当たってはいまのところ、薄片の測定枚数を増やしていく以外方法はない。

β 線量の減衰補正に使用される石英の粒子数および薄片の枚数は、どの程度必要であろうか。石英斑晶数は、各試料毎に異なるが今回の測定試料では薄片1枚につき少ないもので0~1個程度、多いもので10個程度である。これらの薄片について、1枚のみでは計測数そのものが不足するばかりでなく、局部的な不均一性を排除できないことから複数枚測定し、それらを集計した。石英の多い本質岩片 (SB2002E) では、薄片が6枚以上、石英斑晶数で40個以上になるとTL年代値は収束するような結果が得られた (Fig. 8)。

また、ここで用いる斑晶鉱物の粒径の近似計算には、石英が球状であることを仮定した。しかし、実際の石英斑晶には様々な包有物が伴われていたり、角張ったものや不定形状のものがあつたりするなど、球状と仮定しにくい場合がある。これについてどのような取り扱いをすべきかは、今後に残された課題である。

2. 既知年代及び層序からの推定年代との比較

β 線量の減衰補正を行ったTL年代は、Table 1に示すように異なる岩片でも同一露頭のものは、比較的良好な集中度を示した。以下に、各火砕流についての年代値の評価を行う。

六ツ木火砕流堆積物のTL年代値は 4.9 ± 0.4 kaで、K-Ah (6.3 ka) の上部にあるという小林・尾関 (1991)

による層序と、小林・加藤 (1986) による約4000年 (著者から提供された原データは 4200 ± 100 年) という ^{14}C 年代と矛盾しない。本火砕流堆積物の試料は石英粒径が全体的に大きく、広い範囲に分布する (Fig. 6) ため、その評価に不確定要素が含まれ易く、そのために誤差もやや大きいと考えられる。

礫石原火砕流堆積物のTL年代値は、 23 ± 1 kaである。この値は、同火砕流堆積物がK-Ah (6.3 ka) と始良-Tn火山灰 (24 ka) の間に挟まれるとした渡辺・星住 (1995) の層序、及び本研究の試料採取露頭と同一露頭で採取した炭化木についての小林・中田 (1991) による ^{14}C 年代値、約19000年 (著者から提供された原データは 18900 ± 200 年) と矛盾しない。

古江火砕流堆積物のTL年代値は、 23 ± 1 kaである。本層については明確な年代データが得られていない。また、渡辺・星住 (1995) の層序では礫石原火砕流堆積物の下位の普賢岳火山噴出物に位置づけられており、K-Ah (6.3 ka) より古いことはほぼ確実で、その面からもTL年代に矛盾はない。

湯河内火砕流堆積物のTL年代値は 77 ± 6 kaで、供給源と予想される野岳のK-Ar年代 74 ± 4 ka (渡辺・星住, 1995) やAso-4の上にあるという露頭観察結果と非常に良く調和した年代といえる。

前述のように、本報告のTL年代は年間線量への宇宙線の寄与をゼロとしている。宇宙線量は日本の場合、地表で 0.2 mGy/a 程度であり、試料採取地点の削剥量を考えて見積もることになる (高島, 1995)。この量は地形、岩質、時代等により左右され、やはり評価が困難な項目である。もし、今回の試料が地表での宇宙線量である 0.2 mGy/a を堆積時から現在まで受けていたとすれば、放射性元素含有量から求められた年間線量の平均的値の 2 mGy/a が10%大きくなり、結果として年代値は10%程度若くなる。しかし、宇宙線量は15 mの深度で1/10程度に減衰するため (Aitken, 1985)、今回の試料に 0.2 mGy/a という値を当てはめるのは妥当でないが、評価することも困難である。結論として、宇宙線の寄与を最大限見積もった10%程度若い値と、Table 1の結果の間に雲仙火山岩類の真の値があることになる。

全体的な評価として、TL年代は既報の年代や層序データとかなり良く調和しているが、六ツ木火砕流堆積物や礫石原火砕流堆積物 (後者は同一露頭) においては ^{14}C 年代より若干古い値となっている。 ^{14}C 年代が信頼できるものとしてその原因を探れば、不規則な石英形態を球に近似させていることに起因している可能

性がある。今回の方法では、石英粒径を最も大きく評価する形となっており、そのことが年間線量の過小見積もり、年代値の古い側への偏移として現れている可能性がある。また、宇宙線の見積もりが適正に行われれば今回の年代は10%までの範囲で若くなり、より真の値に近づくと思われる。

今後これらの点の再吟味は必要となるが、今回の手法でも、固結した岩石を選び、注意深い実験を行えば、TL年代測定結果が十分信頼できるデータとして利用できるとの結論を得た。数千～数万年の年代範囲で火山岩の年代を直接高精度で求める方法がほとんどない状況から、今回の研究結果は重要であり、TL年代測定結果を信頼し得る値として広く利用されることが期待される。

VI. ま と め

1. 雲仙火山の火砕流堆積物4層準について、水分補正がほとんど不要で放射性元素溶脱の可能性も低い本質岩片を同一露頭から3～6個採取し、石英粒径の補正を厳密に行った平均TL年代は、六ツ木火砕流堆積物が 4.9 ± 0.4 ka、礫石原火砕流堆積物が 23 ± 1 ka、古江火砕流堆積物が 23 ± 1 ka、湯河内火砕流堆積物が 77 ± 6 kaとなった。

2. 前記4層準の火砕流堆積物のTL年代値は、既報の ^{14}C やK-Ar年代、層序の解釈と矛盾せず、六ツ木火砕流堆積物及び礫石原火砕流堆積物では、 ^{14}C の年代値 4.2 ± 0.1 ka及び 18.9 ± 0.2 kaに対して、TL年代値 4.9 ± 0.4 ka及び 23 ± 1 kaとその差は小さい。また、湯河内火砕流堆積物が野岳溶岩起源とすれば、野岳溶岩のK-Ar年代値 74 ± 4 kaは湯河内火砕流堆積物の堆積年代と考えられ、今回得られたTL年代値 77 ± 6 kaはそれと非常に良く一致している。

3. 薄片による石英粒径測定結果に基づく β 線量の減衰補正により、これまでより正確なTL年代値を得ることができた。この実験において、不連続な石英粒度分布を持つ試料では、1ないし数粒の飛び離れて大きな粒径の石英を観察したかどうかで年代値にかなりの変化を生ずる。そのような事態の回避のためには、多数の薄片観察を行い少なくとも40個程度の石英斑晶粒径を測定する必要がある。また、不規則な形状を持った石英を球状に近似させて β 線寄与率を求める手法に問題が残っており、TL年代が ^{14}C 年代よりやや古くなった原因の可能性がある。また、宇宙線量の取り扱いも同様に、年代を若い方向に動かす。これらの点は、今後の問題である。

謝 辞 本論文の作成にあたって、九州大学島原地震火山観測所前所長の太田一也博士と(株)ダイヤコンサルタントの尾関信幸氏には、雲仙火山地域の火砕流堆積物について現地でご教示いただいた。秋田大学の遠山圭子さんには、TL測定実験でお世話になった。また、匿名の2名の査読者には多数の的確なご指摘をいただいた。以上の方々に謝意を表する。

引用文献

- Aitken, M.J. (1985), Thermoluminescence dating. pp. 359, Academic Press, London.
- Bell, W.T. (1979), Thermoluminescence dating: radiation dose-rate data. *Archaeometry*, **21**, 243-245.
- 檀原 徹, 岩野英樹, 星住英夫, 渡辺一徳(1993), 若い火山岩のフィッシュ・トラック年代測定の試み—雲仙普賢岳・眉山の例—. 日本火山学会講演予稿集, no. 2, 51.
- 古川博恭, 満塩大洗(1987), 九州における火山地域の地下水と火山灰. 地団研専報, no. 33, 349-368.
- Ichikawa, Y. and Nagatomo, T. (1978), Thermoluminescence dating of burnt sandstone from Senpukuji cave. *PACT*, **2**, 174-179.
- 平賀章三, 市川米太(1988), 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. 地質学論集, no. 29, 207-216.
- 本間不二男(1936)日本火山誌(二), 雲仙岳. 火山, **3**, 73-124.
- 小林哲夫, 加藤和夫(1986), 雲仙岳火山の形成史. 火山, **31**, 299-300.
- 小林哲夫, 中田節也(1991), 雲仙火山, 火砕流・岩屑なだれ堆積物の ^{14}C 年代と発達史. 日本火山学会講演予稿集, no. 2, 140.
- 小林哲夫, 尾関信幸(1991), 雲仙岳火山の地質に関する最近の研究成果. 日本火山学会講演予稿集, no. 1, 3.
- Mejdahl, V. (1979), Thermoluminescence dating: beta-dose attenuation in quartz grains. *Archaeometry*, **21**, 61-72.
- 宮地六美, 太田一也(1985), 雲仙火山岩類のフィッシュ・トラック年代. 九州大学理学部島原地震火山観測所研究報告, no. 13, 45-50.
- 向井 滋(1957), 鉱物の単体分離に関する考察—顕微鏡による粒度測定値の数学的補正—. 浮選, **6**, 5-13.
- 太田一也(1987), 雲仙火山の地質構造と火山現象. 地団研専報, no. 33, 71-85.
- 太田一也(1984), 雲仙火山—地形・地質と火山現象—. pp. 98, 長崎県.
- 岡口雅子, 大塚裕之(1980), ロノ津群における凝灰岩層および竜石層中の安山岩のジルコンのフィッシュ・トラック年代. 第四紀研究, **19**, 75-85.

- 尾関信幸, 小林哲夫(1991), 雲仙岳火山で認められる火砕流堆積物. 日本火山学会講演予稿集, no. 2, 33.
- 尾関信幸(1991), 雲仙火山の地質と火山麓扇状地の成因に関する考察. 鹿児島大学大学院理学研究科地学専攻修士論文. pp. 71.
- Sendo, T., Matsumoto, H. and Imamura, R. (1967), Geology and petrography of Unzen Volcano. *Kumamoto J. Sci., Ser. B, Geol.*, **7**, 31-89.
- Sugiyama, H., Hayashi, M., and Fujino, T. (1986), Fission track age of the Unzen volcanic rocks in western Kyushu, Japan. *Bull. Volcanol. Soc. Japan, Ser. 2*, **31**, 85-94.
- 高島 勲 (1995), 熱ルミネッセンス年代測定一特に石英による火山岩類の測定精度について一. 第四紀研究, **34**, 209-220.
- 高島 勲, 本多朔郎 (1989), 福島県会津田島地域の火砕流堆積物の K-Ar 年代と TL 年代の比較. 地質雑, **95**, 807-816.
- 高島 勲, 渡辺公一郎 (1991), 1 万年より若い火山岩の年代測定例としての雲仙火山眉山岩体の TL 年代. 日本火山学会講演予稿集, no. 2, 32.
- Takashima, I. and Watanabe, K. (1994), Thermoluminescence age determination of lava flows/domes and collapsed materials at Unzen volcano, SW Japan. *Bull. Volcanol. Soc. Japan*, **39**, 1-12.
- Takashima, I. and Wood, C.P. (1996), Thermoluminescence dating of ignimbrites and hydrothermally altered rocks of the Taupo Volcanic Zone. *Proc. 18 th New Zealand Geothermal Workshop*, 133-137.
- 田中雅人, 中田節也 (1988), 雲仙火山東域の地質. 九州大学理学部島原地震火山観測所研究報告, no. 14, 1-11.
- Watanabe, K., Hoshizumi, H. and Itaya, T. (1993), K-Ar ages of Unzen volcano in Kyushu, Japan. *Mem. Fac. Educ. Kumamoto Univ. Nat. Sci.*, no. 42, 35-41.
- 渡辺一徳, 星住英夫 (1995), 雲仙火山地質図. 地質調査所.