

令和 4 年 6 月 23 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2021

課題番号：17K14408

研究課題名（和文）ポリミネラル微粒子を用いた第四紀後期海底堆積物の高精度OSL年代測定

研究課題名（英文）High-resolution polymineral fine-grain OSL dating of deep marine sediment: A case study from the Sea of Japan

研究代表者

杉崎 彩子 (Sugisaki, Saiko)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・地質調査総合センター・主任研究員

研究者番号：20595128

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：古気候の復元に際して、年代軸は必要不可欠である。本研究では、日本海堆積物のシルトサイズの微粒子（ポリミネラル微粒子）を対象に、石英粒子より古く年代決定が可能なカリ長石の光ルミネッセンス(OSL)年代測定(pIRIR230法)を実施した。ポリミネラル微粒子の等価線量は、同層準で測定した石英の値とほぼ同等であり、約1000Gyで飽和した。フェーディング効果（放射線損傷の蓄積量が時間と共に減少する）の補正値は1.60%/decadeであり、補正後の年代をテフラ等の絶対年代・他の年代モデルと対比した結果整合的であり、約30万年で測定限界となることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、日本海堆積物のポリミネラル微粒子を対象に、カリ長石のOSL年代測定法の測定限界を高解像度で連続的な年代測定を行い、約30万年前までの年代測定が可能であり他の年代モデルと整合的であることを示した。最終間氷期以前の絶対年代制約が可能になることによって、古気候・古海洋学の分野全体に貢献できる重要な成果である。

研究成果の概要（英文）： The construction of accurate chronological models is very important to understand past ocean and climate changes. We test the potential of a post-IR IRSL signal (pIRIR230) from polymineral fine-grains to date Quaternary hemi-pelagic sediments in the Japan Sea beyond MIS5e. Down the long cores equivalent doses increase with depth, up to ~1000 Gy. Average g-value of pIRIR230 is $1.60 \pm 0.58\%$ /decade, the pIRIR230 ages are in good agreement with tuned age models, with field saturation reached at ~300ka.

研究分野：光ルミネッセンス年代測定

キーワード：光ルミネッセンス年代測定 ポリミネラル微粒子 日本海

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究当時の学術的背景

古気候の復元において、年代という軸は必要不可欠である。近年の目覚ましい放射性炭素年代法の発展により、過去 5 万年間までの年代は正確に求められるようになってきた (Bronk Ramsey et al., 2012)。放射性炭素年代の他にも放射性同位体を利用する年代測定法は K-Ar 法、Rb-Sr 法、U、Th-Pb 法、Sm-Nd 法、フィッシュントラック法、ルミネッセンス法、Pb-210 法などがある。それぞれの測定法は測定可能な年代幅があり、ルミネッセンス法、フィッシュントラック法が数十年~数十万年という広い年代幅をもっており、現在から第四紀後期まで遡る年代測定方法として光ルミネッセンス (Optically Stimulated Luminescence; 以下 OSL) 年代測定方法が近年注目されてきている (例えば Wintle, 2008)。OSL 法は放射線の作用によって石英や長石などの鉱物内に捕獲電子が蓄積していくことを利用した年代測定法で、最終露光時から現在までの堆積年代を示す年代測定法である。太陽光に当たってからの埋没時間が長いほど堆積中の鉱物の被爆量 (蓄積線量, Gy) が大きくなり、古い年代を示す。鉱物の蓄積線量を堆積物全体の放射線量 (線量率, Gy/ka) で割ることによって OSL 年代が求められる。石英を対象とした OSL 年代測定と他の年代測定値との整合性が示され、その信頼性は高まっている (Murray and Olley 2002)。石英の蓄積線量は約 200Gy で飽和し、極端に線量率が低い場合を除き、石英はおおよそ十数万年前で測定限界となる (Aitken, 1998)。これまで OSL 法の年代測定の上限を上げるために様々な研究が試みられてきた。その一例として、長石を対象とした年代測定法が近年急速に進んだ事が挙げられる。長石は内部線量があり、その組成から発光波長等が異なり (Krbetschek et al., 1997)、長石の OSL は石英より明るいため、古い時代まで遡っての年代測定が可能である。近年 post-infrared infrared stimulated luminescence (Post-IR IRSL, pIRIR) 法という、カリ長石のより安定な OSL を抽出する測定法の発展により、カリ長石の OSL 方法も石英と同じく信頼できるという報告が増えてきた (例えば Thomsen et al., 2008)。カリ長石を用いた測定限界が約 1800 Gy 相当であるとの研究発表もあるが (Chen et al., 2015)、計 2 点のみの測定結果に基づいているため、高時間分解能で測定限界を捉える必要がある。海底堆積物にはシルト質堆積物が多く、石英微粒子を用いて連続的な年代制約が可能であり (例えば Sugisaki et al., 2012)、石英の測定限界を超えてシルトサイズの微粒子 (ポリミネラル微粒子) でも測定できる方法を確立する必要がある。

2. 研究の目的

石英の測定限界を超えた OSL 年代測定の測定限界の検証と、年代精度の向上を行う。遠洋性堆積物に汎用性の高いシルトサイズの微粒子 (ポリミネラル微粒子) を対象に、石英粒子より古く年代決定が可能なカリ長石の OSL 年代測定を実施し、最終氷期以前の正確な絶対年代を連続的に与えることを目指し、OSL 測定法の測定限界の見極めを行う。また、OSL 年代値の精度向上を目指し、不確定性の主要な要素である線量率の希釈効果を見積もるための含水率の補正を試みる。これらの結果を、テフラ等の絶対年代や他の年代モデルと対比し、整合性の確認を行い、古気候古海洋学の分野で要となる有用な年代測定法の確立を目指す。

3. 研究の方法

- 1) 対象試料：日本海において、2013 年に実施された総合国際深海掘削計画第 346 次航海の堆積物コア U1424C、U1425C を用いた。U1424C は日本海盆 (水深 2822m) から、U1425C は大和海膨 (水深 1909m) から採取され、これらの両サイトは中国大陸由来の風成塵の寄与が大きく事前に太陽光に曝された鉱物を含み (Nagashima et al., 2007) OSL 年代測定に適したサイトである。この航海ではそれぞれのサイトから 4 ホールずつ堆積物が採取され、欠損のない連続的な堆積物記録を得る事に成功している。OSL 測定限界の検討をする対象として、古地磁気層序、生物層序から B/M 境界にあたる約 78 万年相当の上部 3 コアずつを選定した。コア試料は船上にて分割、その後暗室にて半割、4cm 毎に小分けの試料に分取されポリミネラル微粒子用として 63 試料、石英微粒子用は 200 試料選定し分析を行った。更に、現在の堆積物の残存線量の確認のため、KS-14-13 次航海において U1424、U1425 コアの近傍で採取されたマルチプルコア St.3 (水深 2248m) と St.4 (水深 1773m) で得られた表層堆積物の分析も行った。
- 2) 堆積物中の鉱物微粒子は凍結乾燥後、炭酸塩、有機物の除去を行った後、63 μm の篩にかけ粗粒子と微粒子を分け、沈降法によりルミネッセンス測定のポリミネラル微粒子の抽出を行い、産業技術総合研究所の Risø TL/OSL リーダー (models TL/DA 20) にて蓄積線量の測定を行った。線量率は有機物の除去を行った堆積物をワックスで固め、デンマーク工科大学の γ 線スペクトロメトリにて測定を行った。含水率はバルク試料の凍結乾燥前後の重量から求めた。
- 3) pIRIR 法は、異なる温度条件で IRSL 測定を 2 回を行い、2 回目の信号を用いる測定法であるが、最適な測定温度条件は試料によって異なるため、安定した線量評価を行うことができる温度をそれぞれのコアの深度 0m, 0.5m, 10m, 20m から選定した試料で検

証した。全てのコアの各深度の試料は 230°C で最も安定した線量の評価が行えることが分かり、1 回目を 50°C、2 回目を 230°C で測定する pIRIR₂₃₀ 法を採用し 65 試料の蓄積線量の測定を行った。

- OSL 年代は鉱物の蓄積線量を堆積物全体の線量率で割ることによって求められる。堆積物中に含まれる水が放射線を希釈するので、線量率を求めるのに不確定要素が含まれ、それがそのまま年代誤差に反映している。海底堆積物コアは圧密に加え試料採取時の影響も受けるため、各サイトの別のホールとの湿潤密度との比較を行い採取時の含水率への影響の有無を確かめた。また、他の年代測定結果と比較し最適な含水率の検討を行った。

4. 研究成果

- OSL 法は放射線の作用によって石英や長石などの鉱物内に捕獲電子が蓄積していくことを利用した、最終露光時から現在までの堆積年代を示す年代測定法であるため、最終露光時の残存線量の確認は重要である。対象地点の現在の堆積物である KS-14-13-St.3, St4 の上部 0-2cm からポリミネラル微粒子を抽出し蓄積線量を pIRIR₂₃₀ 法にて測定した結果、2 つのコアの結果とも約 30Gy であり、この残存線量を全ての測定の蓄積線量から差し引き年代に換算した。
- カリ長石の OSL は、堆積中に信号が減衰してしまう現象があり、その減衰程度の指標として g-value (%/decade) を求め補正する必要がある。コアの上部一下部において選定した試料の g-value の値は $1.60 \pm 0.58\%/decade$ であり、1) の残存線量を差し引き、この g-value 値によって補正した蓄積線量を OSL 年代換算に用いた。
- U1424C, U1425C において pIRIR₂₃₀ 法により求められた蓄積線量は、同層準の石英の値と大きく変わらず同じ挙動を示し、深度方向に増加し、約 800Gy で飽和した。
- U1424C, U1425C は船上において 10m ピストンコアラーで連続的に採取され、その後 1 m 毎のセクションに分割し保存され、更にそのセクションを半割したものを分取して測定を行っている。試料採取時から分割までの間の含水率の変化の有無を確認するため、対象試料の重量含水率を求め、U1424, U1425 それぞれのサイトから採取された別のホールにおいて非破壊計測で測定された湿潤密度と比較を行った。両サイトのコアは同じ挙動を示し、試料採取から試料分割まで含水率の変化が無いことが確認された。日本海堆積物で特徴的な明色層は酸化環境で堆積したことが示唆されるのに対して、氷期の暗色層では有機炭素/硫黄比が低く底層が還元環境になっていたことが示唆されている (Tada et al., 1999)。両コアとも上部 7 m の含水率は岩相に対応しており、明色層で低く、暗色層で高い傾向が見られた。一方、深度 7 m 以下においては暗色層においても含水率が低い層準が確認された。
- 乾燥線量率は平均で 4.89Gy/ka であり、深度方向にほぼ一様であった。含水率による線量率の希釈効果を反映させた湿潤線量率は岩相によって変動し、平均で 2.31Gy/ka であった。
- コア上部 7 m は蓄積線量と湿潤線量率の増減が対応しており、OSL 年代は他の年代モデル(U1424 サイトにおいてテフラ年代、古地磁気層序、生層序年代、堆積物の湿潤密度と酸素同位体比をチューニングした年代モデル) (Tada et al., 2018) とも整合的であった (図 1)。一方、U1424C, U1425C 共にコア深度 7 m 以下においては必ずしも蓄積線量と湿潤線量率の増減が対応しておらず、OSL 年代の逆転が生じる層準が確認された。この境界はピストンコアラーの 1 本目と 2 本目の堺に相当しているが、3) における検証で同サイトの他ホールの同深度での挙動は同じであるため、試料採取時の影響ではないと考えられる。圧密による含水率の過小評価または過大評価の可能性を考慮し、岩相の影響を受けず一定の圧密の影響を受けたと仮定し最小含水率、平均含水率、最高含水率の場合の含水率のモデルを作成し、それぞれのモデルを用いた石英の OSL 年代の変化を確認した。その結果、上部約 7 m においては測定した湿潤線量率を用いた結果が他の年代モ

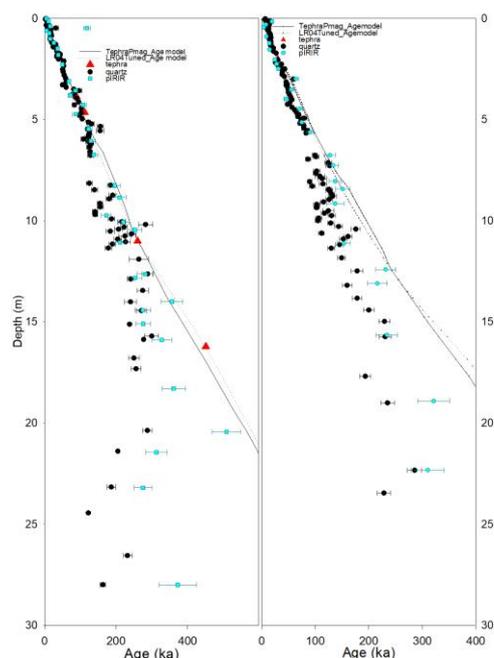
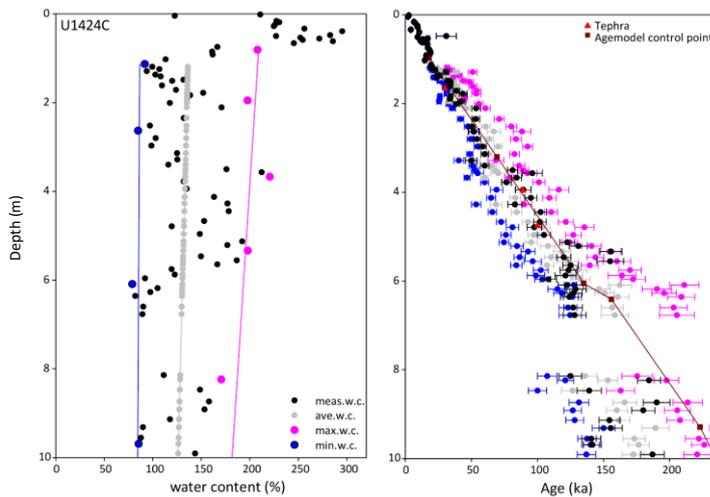


図 1 : U1424, U1425 の石英 (黒)、ポリミネラル微粒子 (青) の OSL 年代値。直線は他の年代モデル。



デルと最も整合的であり、7m より下部においては最大含水率を用いた場合の OSL 年代が他の年代モデルと最も整合的であった (図2). 湿潤含水率を用いた場合の pIRIR₂₃₀ 法による年代測定限界は約 30 万年前であるが、含水率のモデルによって補正できる可能性が示された. これらを議論する論文を現在準備中である.

図2 : U1424C の最小含水率 (青), 平均含水率 (灰色), 最高含水率 (マゼンタ), 含水率実測値 (黒) の場合の石英の年代値.

<引用文献>

- ① Bronk Ramsey et al., 2012, A Complete Terrestrial Radiocarbon Record for 11.2 to 52.8 kyr B.P. *Science* 338, 370-374.
- ② Wintle, 2008, Luminescence dating of Quaternary sediments – Introduction *Boreas* 37, 471-482.
- ③ Murray and Olley 2002, Precision and accuracy in the optically stimulated luminescence dating of sedimentary quartz: A status review, *Geochronometria* 21, 1-16.
- ④ Aitken, 1998, An Introduction to Optical Dating, Oxford University Press, 276
- ⑤ Krbetschek et al., 1997, Spectral information from minerals relevant for luminescence dating, *Radiat. Meas.* 27, 695-748
- ⑥ Thomsen et al., 2008, Laboratory fading rates of various luminescence signals from feldspar-rich sediment extracts *Radiat. Meas.* 43, 1-13.
- ⑦ Chen et al., 2015, Maximum age limitation in luminescence dating of Chinese loess using the multiple-aliquot MET-pIRIR signals from K-feldspar, *Quat. Geochronol.* 30, 207-212
- ⑧ Sugisaki et al., 2012, High resolution optically stimulated luminescence dating of a sediment core from the southwestern Sea of Okhotsk, *Geochronol.* 13, doi:10.1029/2011GC004029.
- ⑨ Nagashima et al., 2007, Orbital- and millennial-scale variations in Asian dust transport path to the Japan Sea Palaeogeog. *Palaeoclim. Palaeoecol.* 247, 144-161.
- ⑩ Lisiecki and Raymo, 2005, A Pliocene-Pleistocene stack of 57 globally distributed benthic $\delta^{18}O$ records, *Paleoceanography*, 20, PA1003, doi:10.1029/2004PA001071.
- ⑪ Cheng et al., 2016, The Asian monsoon over the past 640,000 years and ice age terminations. *Nature* 534(7609), 640-646.
- ⑫ Tada et al., 1999, Land-ocean linkages over orbital and millennial timescales recorded in late Quaternary sediments of the Japan Sea, *Paleoceanography*, 14, 236-247.
- ⑬ Tada et al., 2018, High-resolution and -precision correlation of dark and light layers in the Quaternary hemipelagic sediments of the Japan Sea recovered during IODP Expedition 346, *Progress in Earth and Planetary Science*, <https://doi.org/10.1186/s40645-018-0167-8>.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Ryuji Tada, 他3名, Saiko Sugisaki, 他33名	4. 巻 5
2. 論文標題 High-resolution and -precision correlation of dark and light layers in the Quaternary hemipelagic sediments of the Japan Sea recovered during IODP Expedition 346	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Progress in Earth and Planetary Science	6. 最初と最後の頁 1-10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1186/s40645-018-0167-8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Xuan Chuang, Jin Yuxi, Sugisaki Saiko, Satoguchi Yasufumi, Nagahashi Yoshitaka	4. 巻 7
2. 論文標題 Integrated Pliocene-Pleistocene magnetostratigraphy and tephrostratigraphy of deep-sea sediments at IODP Site U1424 (Yamato Basin, Japan Sea)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Progress in Earth and Planetary Science	6. 最初と最後の頁 1 - 19
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1186/s40645-020-00373-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 S. Sugisaki, A. S. Murray, J.P.Buylaert, R. Tada, Y. Satoguchi, Y. Nagahashi, K. Ikehara, T. Irino, R. W. Murray, C.A. Alvarez-Zarikian
2. 発表標題 High-resolution Quartz OSL dating of deep marine sediment: A case study from the Sea of Japan
3. 学会等名 15th International Conference on Luminescence and Electron Spin Resonance Dating(LED2017)（国際学会）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 S. Sugisaki, J.P.Buylaert, A. S. Murray, R. Tada
2. 発表標題 Testing quartz and feldspar luminescence dating on a deep marine sediment core from the Sea of Japan: upper age limit and dust source fingerprinting
3. 学会等名 AGU fall meeting 2021（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 S. Sugisaki, J.P.Buylaert, A. S. Murray, R. Tada
2. 発表標題 Testing fine-grained quartz and feldspar luminescence dating on a deep marine sediment core from the Sea of Japan: upper age limit and dust source fingerprinting
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2022年大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 杉崎彩子
2. 発表標題 Testing quartz and feldspar luminescence dating on a deep marine sediment core from the Sea of Japan: upper age limit and dust source fingerprinting
3. 学会等名 American Geophysical Union Fall meeting 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 杉崎 彩子、Murray Andrew、Buylaert Jan-Pieter、多田 隆治、里口 保文、長橋 良隆、池原 研、入野 智久、Murray Richard、Alvarez-Zarikian Carlos
2. 発表標題 Quartz OSL dating of deep marine sediment: how accurate and how far back? A case study from the Sea of Japan
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2017年大会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	Buylaert Jan-Pieter (Buylaert Jan-Pieter)		

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	Murray Andrew (Murray Andrew)		
研究協力者	多田 隆治 (Tada Ryuji)		
研究協力者	Xuan Chuang (Xuan Chuang)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
	Denmark	Aarhus University	Technical University of Denmark	
英国	University of Southampton			