

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 26 日現在

機関番号：14602

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26560157

研究課題名(和文)pIRIR法を用いた変質したサンゴ化石の年代推定

研究課題名(英文)Age estimation of altered coral fossil by pIRIR measurement

研究代表者

高田 将志 (TAKADA, Masashi)

奈良女子大学・人文科学系・教授

研究者番号：60273827

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、光ルミネッセンス測定、特に長石のpIRIR測定から、サンゴ礁段丘の形成年代を推定できるかどうかについて検討した。南西諸島から採取したサンゴ化石を塩酸で溶かすと、少量ではあるが酸に不溶の無機粒子が残存し、それらの中には、光ルミネッセンス年代測定に適した試料が含まれることが分かった。そして、既存研究のウラン系列年代が約147ka、約117kaとされた試料について、pIRIR年代は 104 ± 14 Kaと求められた。したがって、U-Th法、ESR法などでは年代測定が難しい変質したサンゴ化石試料でも、OSL法やpost-IR IRIR法で年代の推定が可能である見通しが得られた。

研究成果の概要(英文)：In this study I dissolved altered corals by hydrochloric acid and investigate characteristics of luminescence signals from the residual materials to discuss possibilities for an elevated-temperature infrared stimulated luminescence (pIRIR; post-IR IRSL) dating.

The insoluble residual materials in coral fossils taken from Miyako and Yonaguni Island, southwestern Ryukyus, southwestern Japan, the grain size of which is less than ca. 100 micron meter, show BLSL and IRSL signals. I could get an age constrain from the fossil coral using residual materials after the acid treatment, indicating that fossil coral sometimes contains a certain amount of minerals like quartz and feldspar. I think post-IR IRSL dating of the residual materials from fossil coral after acid treatment gives us a great possibility to date altered fossil coral.

研究分野：自然地理学

キーワード：pIRIR法 年代推定 変質 サンゴ化石 南西諸島

1. 研究開始当初の背景

隆起サンゴ礁の U-Th 年代は、海水準変動や地殻変動の解明に多大な貢献をもたらしてきた。しかしながら、U-Th 法が適用できない変質したサンゴ化石も少なくない。そのような試料しか得られない地域の隆起サンゴ礁の年代は、¹⁴C年代測定が適用可能な完新世～後期更新世の隆起サンゴ礁段丘の年代から隆起速度を仮定して推測したり、テフクロロジーなど他の第四紀学的情報から推測することになる。しかしながら、テクトニックにアクティブな沖縄トラフの陸側に連なる日本の南西諸島のような場合、島々に分布するサンゴ礁段丘は、陸域の活断層によって分断・ブロック化され、相対高度など地形学的な推定がむずかしい場合や、他の直接的な第四紀学的情報に乏しい場合も少なくない。たとえば、本研究で取り上げる宮古島などはその典型例である（地震調査研究推進本部、2010）。そのため、活断層の長期評価に深く関係する、サンゴ礁段丘の形成年代については、宮古島全体が最終間氷期に形成されたサンゴ礁段丘面であるという考え方（太田・掘、1980；活断層研究会、1980、1991）、更新世前期という説（沖縄第四紀調査団、1976）、複数の面に細分できるという考え方（矢崎・大山、1980）、大部分は溶食によって原面が失われているという説（小池・町田、2001；地域地盤環境研究所・産業技術総合研究所、2009）など、諸説が入り乱れている。

前述したとおり、宮古島のサンゴ化石は二次的に変質して、カルサイト化しているものがほとんどのため、U-Th 年代測定法は適用できない。そのため、研究代表者の高田は、宮古島で活断層の長期評価調査を担当した地域地盤環境研究所の越後智雄博士から、当該地域のサンゴ化石に関して Electron Spin Resonance (ESR; 電子スピン共鳴) 年代測定法による直接的な年代測定が可能かどうかの問い合わせを受けた。しかし ESR 年代測定法は、サンゴ化石のアラゴナイト結晶中に時間とともに形成されてゆく不対電子濃度を測定する方法であるため、カルサイト化したサンゴ化石の年代測定法として適用できない点は、U-Th 法と同様である。

一方、この問い合わせを受けた時に申請者の頭に浮かんだのは、南西諸島に中国大陸からのレスが飛来しているという事実であった（たとえば、矢崎・大山、1978；地域地盤環境研究所・産業技術総合研究所、2009）。レスがサンゴ化石中に取り込まれていれば、この粒子の光ルミネッセンス年代を測定することで、サンゴ礁の形成年代を直接的に推定できるのではないかと考えた。

2. 研究の目的

本研究では、サンゴ化石に含まれる石英・長石粒子を抽出し、光ルミネッセンス年代、特に長石の pIRIR 年代 (Buyalaert et al., 2012; Thiel et al., 2011) を求めることで、サンゴ礁段丘の形成年代を推定できるかどうかについて明らかにする。そして、変質してカルサイト化したサンゴ化石についても同様の方法で、サンゴ礁形成年代が推定できないかについて検討したい。

3. 研究の方法

まず、日本の南西諸島に分布する隆起サンゴ礁から化石サンゴのサンプリングを行い、これらを酸で溶かし、その残留物にどのような無機物質が含まれるかを調べる。そして、この、酸に不溶な残留物のルミネッセンス信号特性を調べ、当該物質を用いた光ルミネッセンス年代測定が可能かどうかについて検討する。これらを踏まえ、最終的なルミネッセンス年代の推定と、既存資料との整合性・クロスチェックを行う。

採取したサンゴ化石は、暗室の赤色光下で、まず、岩石カッターと 6N 塩酸 10 分間以上のエッチングにより、表面 5 mm 以上を取り除いた。その後、試料を蒸留水で洗浄後、再度、過酸化水素を加えた 6N 塩酸で炭酸カルシウムを完全に溶解させた。この試料処理によって生じた少量の残渣 (Fig. 1) を集め、篩による篩分けや、沈降法と蒸留水による洗浄の繰り返しなどによって、粒径 2~10 ミクロンあるいは 63-250 ミクロンの無機微粒子を抽出した。そして、この粒子を用いて OSL 年代測定・pIR-IRSL 年代測定 (Buyalaert et al., 2012) などを試みた。

4. 研究成果

南西諸島の宮古島や与那国島から採取したサンゴ化石を酸（塩酸）で溶かすと、少量ではあるが、酸に不溶の無機粒子が残存することが分かった。それらの中には、石英やカリ長石・斜長石など、光ルミネッセンス年代測定に適した試料が含まれることが分かった (Fig. 1)

これらの試料のうち、与那国島の隆起サンゴ礁を構成する化石サンゴから抽出した 2~10 ミクロンの微粒子 (poly-mineral fine grain) を対象とした pIRIR 年代値を示す。

表 1~3 の結果からわかるように、大村ほか (1994) がウラン系列年代測定で約 147ka、約 117ka とされた試料について、pIRIR 年代は、 104 ± 14 Ka であった。したがって、U-Th 法、ESR 法などでは年代測定が難しい変質したサンゴ化石試料でも、OSL 法や postIRIR 法で年代の推定が可能である見通しが得られた。

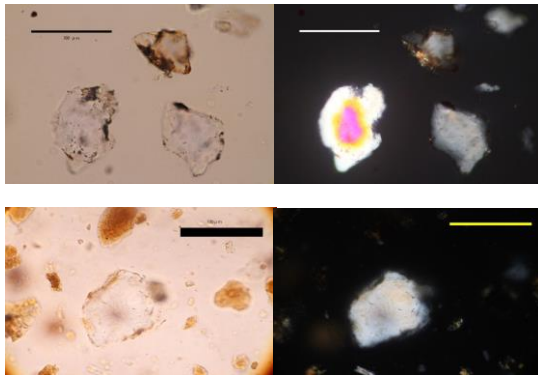


図1 上段：宮古島から採取した隆起サンゴ礁に含まれる酸不溶碎屑物の偏光（右：直行ニコル）顕微鏡写真（左：平行ニコル）。

下段：与那国島から採取した隆起サンゴ礁に含まれる酸不溶碎屑物の偏光（右：直行ニコル）顕微鏡写真（左：平行ニコル）。

一方、宮古島の変質したサンゴ化石を対象に同様の方法でpIRIR法による年代推定も試みてみた。その結果を表4～6に示す。宮古島の試料は、既存の研究では詳細な年代観が得られていないが、おおよそ中期更新～前期更新世と予想されていた。微粒子のpIRIR年代は、fadingがほとんど無視できると予想されるpost-IR IRSL290の結果で、約700kaと算出された。この結果については、年間線量評価、くに内部線量率評価について、不十分な点があったため、今後、より厳密に検討を加え修正すべき余地があるが、概算値とし

てはある程度の見通しを与えてくれるものと考えている。

以上のように本研究の結果から、U-Th法、ESR法などでは年代測定が難しい変質したサンゴ化石試料でも、OSL法やpostIRIR法で年代の推定が可能である見通しが得られた。サンゴ化石の場合、石灰岩自体の放射性物質含有量が少ないことが多いため、年間線量が小さい。これは古い年代を測るのには都合が良いことを意味するが、年間線量測定精度や内部線量率評価に検討すべき余地が残されている。また、確度・精度を上げるためには、試料量を確保するとともに、年代既知のサンゴ化石を対象としたクロスチェックをさらに進める必要がある。

(文献)

本研究で用いたpIRIR (post IR IRSL) 年代測定法に関する主要文献

Auclair, M. et al. (2003): Measurement of anomalous fading for feldspar IRSL using SAR. *Radiat. Meas.*, 37, 487-492.

Buylaert, J.-P. et al. (2009): Testing the potential of an elevated temperature IRSL signal from K-feldspar. *Radiat. Meas.*, 42, 360-369.

Buylaert, J.-P. et al. (2012): A robust feldspar luminescence dating method for Middle and Late Pleistocene sediments. *Boreas*, 41, 435-451.

Lamothe, M. et al. (2003): Towards a prediction of longterm anomalous fading of feldspar from sediments: a protocol without anomalous fading of feldspar IRSL. *Radiat. Meas.*, 37, 493-498.

Table 1. The sample in this study

Sample name	Sample code	Sample status	Location			Depth (m)	Cosmic Ray (Gy/Ka)	Reference Age ^{a)}
			Latitude	Longitude	a.s.l. (m)			
Yonaguni Island fossil coral No.1	Yonaguni O1-1	Polymineral fine grain	N24.457192	E122.9435	23	0.6	0.018 ± 0.009	117 ± 4, 147 ± 7 ka (U-series dates) M I S 5e

Table 2 U, Th, K content^{a)} of the sediment including the samples and annual dose estimate.

	U (ppm)	Th (ppm)	K ₂ O (%)	Grain diameter (μm)	Water content (%)	Alpha dose ^{b, c)} (Gy/Ka)	Beta dose ^{c)} (Gy/Ka)	Gamma dose ^{c)} (Gy/Ka)	Cosmic ray ^{d)} (Gy/Ka)	Annual dose (Gy/Ka)
External dose	1.20 ± 0.07	247 ± 0.21	0.02 ± 0.14	2-10	22	0.40 ± 0.03	0.25 ± 0.11	0.25 ± 0.04	0.18 ± 0.01	1.07 ± 0.12
Internal dose	550 ± 1.35	1195 ± 4.61	2.80 ± 0.30			0.16 ± 0.07	0.03 ± 0.01	0.00 ± 0.00	-	-

^{a)} Measured by the way of high-resolution gamma spectrometry.

^{b)} 0.086 ± 0.0038 is assumed as the alpha efficiency for polymineral fine grain samples.

^{c)} Including the correction of the water content.

^{d)} Estimated by the equation of Prescott and Hutton (1988, 1994).

Table 3 Luminescence ages of Yonaguni Island fossil coral No.1

Sample name	Sample status	Annual dose (Gy/ka)	Fading rate g value (%)	Recuperation (%)	Recycle ratio	Equivalent dose ^{a)} (Gy)	Residual dose (Gy)	post-IR IRSL ₂₉₀ age (ka)
post-IR IRSL ₃₀₀		1.26 ± 0.13	-0.88	1.1~8.4	0.93~1.22	130.5 ± 10.1	?	104 ± 14

a) Measured by the modified SAR protocol.

Sample name	Sample code	Sample status	Location			Depth (m)	Cosmic Ray (Gy/Ka)	Reference Age ^{a)}
			Latitude	Longitude	a.s.l. (m)			
Tomori fossil coral No.1	Tomori-1	Polyminerals fine grain	N24.7271	E125.3664	20	20	0.022 ± 0.001	Early - Middle Pleistocene

U (ppm)	Th (ppm)	K ₂ O (%)	Grain diameter (μm)	Water content (%)	Alpha dose ^{b, c} (Gy/Ka)	Beta dose ^c (Gy/Ka)	Gamma dose ^c (Gy/Ka)	Cosmic ray ^d (Gy/Ka)	Annual dose (Gy/Ka)
1.17 ± 0.51	0.49 ± 0.49	0.09 ± 0.13	2-10	4.5	0.27 ± 0.11	0.23 ± 0.11	0.17 ± 0.07	0.02 ± 0.00	0.68 ± 0.17
^a Measured by the way of high-resolution gamma spectrometry.									
^b 0.10 is assumed as the alpha efficiency for polyminerals fine grain samples on the basis of Adamiec and Aitken (1998).									
^c Including the correction of the water content.									
^d Estimated by the equation of Prescott and Hutton (1988, 1994).									

Sample name	Sample status	Annual dose (Gy/ka)	Fading rate (g value (%))	Recuperation (%)	Recycle ratio	Equivalent dose ^{a)} (Gy)	Residual dose ^b (Gy)	IRSL ₅₀ or post-IR IRSL ₂₉₀ age (ka)
IRSL ₅₀	Polyminerals fine grain	0.68 ± 0.17	6.35 ± 1.32	-0.8~2.5	0.93~1.04	258.5 ± 72.6	6.2 ± 6.6	369 ± 139
post-IR IRSL ₂₉₀			3.90 ± 1.20	0.4~1.3	0.93~1.01	529.8 ± 41.9	75.2 ± 12.8	665 ± 173
a) Measured by the modified SAR protocol.								
b) Measured after bleaching by 12 hours sunlight and 45 hours simulated solar lamp.								

Thiel, C. et al. (2011): Luminescence dating of the Stratzing loess profile (Austria) - Testing the potential of an elevated temperature post-IR IRSL protocol. *Quaternary Int.*, 234, 23-31.

OSL(光ルミネッセンス)年代測定法全般に関する主要文献

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

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. *Radiat. Meas.*, 41(4), 369-391.

南西諸島(宮古島、与那国島)のサンゴ礁段丘・サンゴ化石に関する主要文献

太田陽子・堀 信行(1960): 琉球列島の第四紀後期の地殻変動に関する一考察, 第四紀研究, 18, 4, 221-240.

大村明雄ほか(1994): 与那国島のサンゴ礁段丘および段丘構成層からのウラン系列年代—それらの海面・地殻変動史への意義—. 第四紀研究, 33, 213-231.

沖縄第四紀調査団(1976): 沖縄および宮古島群島の第四系一とくに“琉球石灰岩”の層序について—, 地球科学, 30, 3, 145-162.

活断層研究会編(1980): 「日本の活断層—分布図と資料—」. 東京大学出版会, 363 p.

活断層研究会編(1991): 「新編日本の活断層—分布図と資料—」. 東京大学出版会, 437 p.

小池一之・町田 洋編(2001): 『日本の海成段丘アトラス』. 東京大学出版会, CD-ROM 3枚・付図2葉・105 p.

中森 亨(1982): 琉球列島 宮古群島の地質. 東北大学理学部地質学古生物学教室研究報告, 84, 23-39.

矢崎清貫・大山 桂(1979): 宮古島北部地域の地質, 地域地質研究報告 5万分の1図幅, 地質調査所, 46p.

矢崎清貫・大山 桂(1980): 宮古島地域の地質, 地域地質研究報告 5万分の1図幅, 地質調査所, 83p.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計1件)

① **高田将志**, (2016): 時空間を俯瞰する自然地理学. *科学*, **86**, 995-997, 査読無

[学会発表] (計8件)

① **Masashi TAKADA** and Aiko SHIMADA, Characteristics of luminescence

signals from insoluble residue in raised coral reefs. JpGU-AGU Joint Meeting 2017 (国際学会), 2017年05月24日, 幕張メッセ.

- ② **高田将志**, 変質したサンゴ化石の年代推定に向けて. 2017年 日本地理学会春季学術大会, 2017年03月28日~29日, 筑波大学.
- ③ **高田将志**, 与那国島隆起サンゴ礁に含まれる碎屑物粒子のルミネッセンス特性. 第33回ESR応用計測研究会・2016年度ルミネッセンス年代測定研究会・第41回フィッション・トラック研究会, 2017年03月01日, 祝戸荘 (奈良県明日香村).
- ④ **高田将志**, 人類紀の ESR/TL/OSL 年代測定—その現状と課題. 日本学術振興会マイクロビームアナリシス第141委員会 第166回研究会 (招待講演), 2016年12月05日, 奈良女子大学.
- ⑤ **高田将志**・島田愛子, pIRIR 法を用いた与那国島隆起サンゴ礁の年代推定. 第32回 ESR 応用計測研究会・2015 年度ルミネッセンス年代測定研究会・第40回フィッション・トラック研究, 2016年03月04日~06日, 金沢.
- ⑥ **TAKADA Masashi** and SHIMADA Aiko, Age estimation of coral fossil by post-IR IRSL measurement of insoluble residue. 4th Asia Pacific Luminescence and Electron Spin Resonance Dating Conference (国際学会) 2015年11月22日~28日, The University of Adelaide, Australia.
- ⑦ **高田将志**・島田愛子・濱田菜月・越後智雄・小侯雅志・郡谷順英・市川清士, 光ルミネッセンス法による変質したサンゴの年代推定. 日本第四紀学会 2014 年大会 (招待講演), 2014年09月06日~08日, 東京大学柏キャンパス.
- ⑧ **Masashi TAKADA**, Aiko SHIMADA and Natsuki HAMADA, OSL and post-IR IRSL dating of minerals in altered coral fossils. LED2014 (14th International Conference on Luminescence and Electron Spin Resonance Dating), 2014年07月05日~13日, Montreal, Canada.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高田 将志 (TAKADA MASASHI)

奈良女子大学・人文科学系・教授

研究者番号: 60273827