

高森遺跡関連火山灰・火砕流層からの石英粗粒子を用いた赤色熱ルミネッセンス (RTL) 年代測定

橋本哲夫・能登屋 信・小村和久・白井更知*

1. はじめに

我々の研究室は、天然石英粒子中に青色TL (熱ルミネッセンス) 特性を示す粒子のほかに、赤色TL特性を有する石英粒子の存在を世界に先駆けて発見し、火山灰関連地層より抽出した石英粒子からは赤色TL粒子がほぼ普遍的に存在することを報告してきた (Hashimoto et al., 1986 a, b, 1989)。近年、この石英粒子からの赤色TL特性の原因追究として、石英単結晶である水晶由来の薄片等を使用し、不純物分布分析や熱処理にともなう各種ルミネッセンスの特性変化を基に研究をすすめている。その結果、ほぼ100ppm以上のAl不純物濃度の石英部位に対する700°C以上での熱作用が、本来の青色TLから熱処理後赤色TLへとそのTL特性を著しく変化させることを見い出した。天然での赤色TL石英粒子は火山灰 (テフラ) 層由来に共通して見いだされており、これら赤色TL石英粒子が高温での熱履歴を有するとともに何れも不純物Al含量が高いとの結果と熱処理実験結果は調和的であった (Hashimoto et al., 1991, 1994, 1995a, 1995b, 1995c)。これら石英粒子の熱作用由来のTL特性変化を利用することにより、窯遺跡の被熱温度推定が可能となることが分かった (橋本ら, 1994)。

天然石英粒子の放射線吸収線量に対する赤色TL応答性は、特に5kGy以下の領域では青色TL応答性よりもスプラーリニア部分が見られない点で優れており、かつ赤色TLの高温側のグローピーク関連の捕捉電子が青色TLのそれよりも安定であることから、赤色TL年代測定が火山灰層の年代評価には不可欠であることを確認してきた (Hashimoto et al., 1987, 1993)。これらの結果に基づき、新潟県柏崎市のナウマンゾウ化石関連地層から抽出した石英粒子を用いて、世界で最初に赤色TL年代測定結果を報告した (橋本ら, 1989, 1990)。この火山灰地層由来の石英粒子による赤色TL年代測定法の信頼性は、近年欧米でも確認され、絶対年代測定法として適用されつつある (Miallier et al., 1991, 1994 a, 1994b, Franklin, 1994)。

近年、宮城県北部の江合川流域の旧石器関連地層の年代評価が、我が国の考古学方面の研究者より注目をあびている。市川 (1986, 1988) は、一迫軽石層、岩出山軽石層、下山里火砕流など、岩出山町日東電工前の露頭の年代評価を、350~570nm域の透過フィルターを用いたTL測定に基づく石英粗粒子法により行なっており、それぞれ、124.0, 191.8, 88.6~238.0kaの年代値を得ている。

我々の赤色TL測定からの同じ地層の蓄積線量(PD)の結果は青色TLからの評価結果よりも小さな値を与えており、その結果として年代値がより若くなることを見い出した (橋本ら, 1990)。これらの地

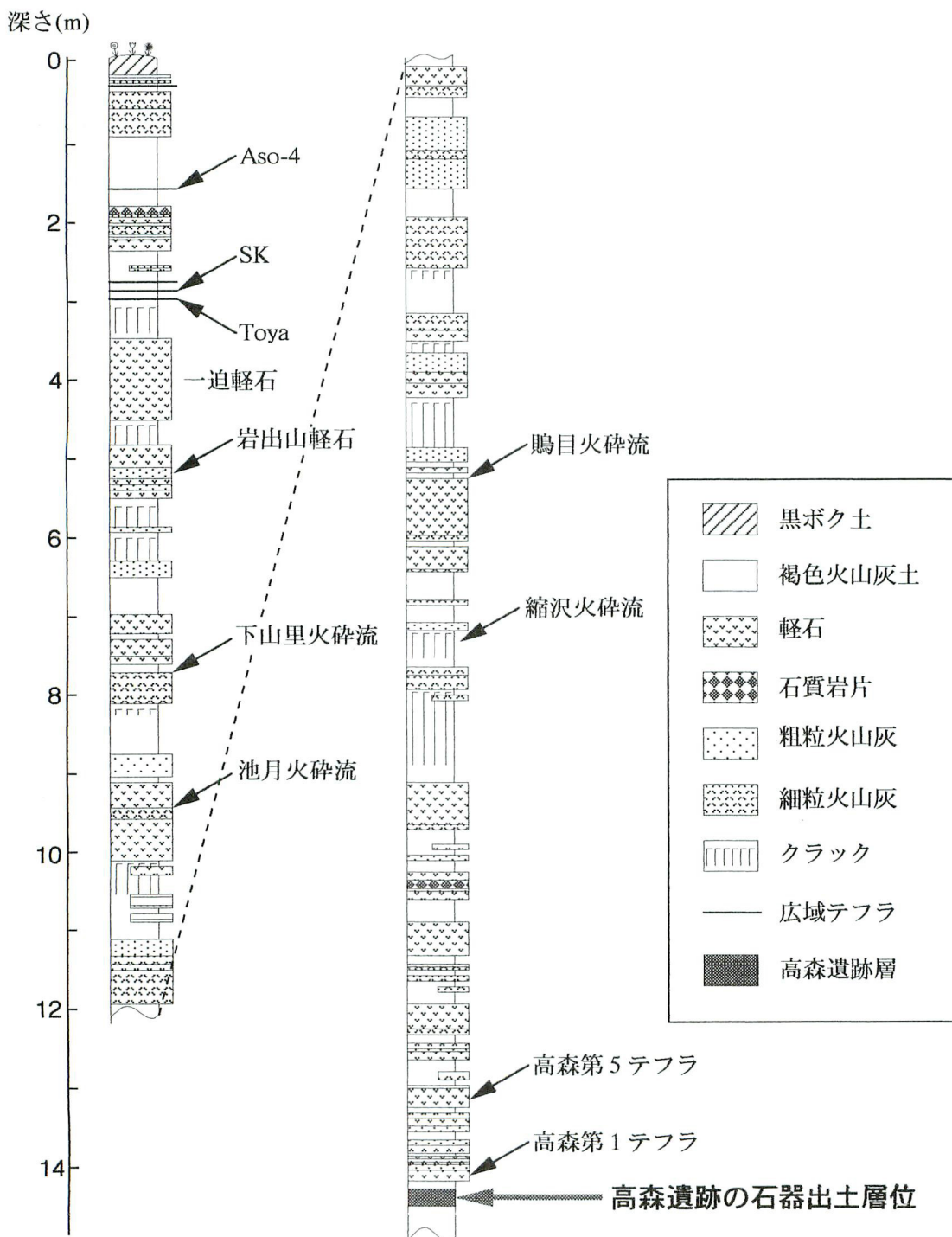


図1 宮城県高森地域の旧石器遺跡関連の更新世火山灰(テフラ)層序(早田, 1993から引用)

Fig 1 Geological columnar section of Middle Pleistocene marker-tephra layers related to the pre-historical sites (Takamori area, Miyagi prefecture) after Soda 1993 (in Japanese).

層のうち、下山里火砕流層は、市川(1986,1988)のTL年代測定で8.86~23.8万年と大変ばらついた結果を与えており、正確な年代値が得られてない。また、この地層と同一のものと確認されている地層が、今回の高森遺跡の上部地層から得られているので、この地層を鍵層と考え、ここでは、高森遺跡に近い高森D地点(大露頭)から得た下山里火砕流層抽出石英粒子について注意深く検討を重ねつつ、赤色TL測定による年代評価を行なった。

更に、現在注目を浴びている高森遺跡関連地層のうち、旧石器が見い出された真上の火山灰層(石器文化談話会, 1991) Tm-1とTm-5層を含む5つの地層について、抽出石英粒子からのTLカラー画像を観測し、この結果に基づき石英粗粒子を用いた赤色熱蛍光(RTL)年代測定を適用した。以前報告した地層(下山里火砕流, Tm-1)からの実験データを再吟味するとともに、新たに3地層についてもRTL年代評価を行った結果、Tm-1の下地層が40~50万年までにも遡る古い年代を示すとの以前の結果(橋本ら, 1993)とほぼ調和した結果を得たので以下報告する。

2. 試料の処理

地層試料1991年5月17, 18日(下山里火砕流層, Tm-5とTm-1)及び1993年11月10日(池月及び鵜目火砕流試料)の二回に亘って、現地に出向き、出来るだけ太陽光に曝さぬよう、表面より20cm以上の深部より採取した。この報告で使用した下山里火砕流層およびTm-1層は高森D地点(大露頭)から、Tm-5は高森O地点より採取した火山灰層試料を使用した。これら宮城県北部の指標火山灰層序を図-1に示す(早田, 1993)。

軽石層や火山灰層中には目的とする石英粒子以外にも多くの不純物が含まれる。それら不純物を能率よく除去するため、以下の手順で試料を処理し石英粒子のみを抽出した(橋本ら, 1989)。

まず最初に、水洗で大きな石、粘土、チリ、植物の根等を可能な限り除去する。乾燥後、大きさを揃えるためふるい分けし、60~100メッシュ画分について磁性鉱物を取り除くためフランク電磁分離(前傾斜25°, 側傾斜15°, 電流値2.0A)にかけ白色鉱物のみを取り出した。次いで25°C超音波かくはん下で6 M NaOH 10分, 6 M HCl 10分, 46% HF 20~60分エッチング処理を行ない乾燥後、再び同径のメッシュでふるい分ける。得られた石英粒子の2~3グラムをアルミ箔に包み、更に二次電子のビルドアップを考慮し、2mm厚さのアルミ管で包み束ねた状態で京都大学原子炉実験所の ^{60}Co 線源にて既知線量照射したものを石英粒子試料とした。線量率10 Gy/h以下のもとの、照射時間を変化させ、全照射線量は200 Gy以下の範囲にとった。

3. 結果と考察

3・1 TL特性

地層試料より抽出した石英粒子のTL発光色特性は、我々が開発したTLカラー写真観察(TLCI)と、微弱光オンラインスペクトル測定器を用いた三次元TL測定により確認した(Hashimoto et al., 1991,

1993, 1995b, 1996, 1997)。いずれもX線を8.7kGy人工照射した石英試料をもとに観測した。写真-1に示す様に、今回対象にした下山里火砕流層を含む高森遺跡関連地層の火山灰・火砕流層から抽出した全ての石英粒子画分のTLCIにおいて、顕著なRTLが観測されており、火山灰層起源の石英粒子は普遍的にRTL石英粒子を含むという従来の結果と一致している。しかしながら、鵜目およびTm-1からのTLCIには部分的に弱い青色TL(BTL)粒子も確認でき、Tm-5においてはBTL粒子を確認出来る。これら二次元的なTL情報と、極微弱光瞬間分光システムからのより定量的な三次元TLスペクトル情報を相互比較するとともに、これらの結果に基づいたTLの定量的な観測のための波長領域選択を行った(Hashimoto et al., 1987, 1994)。

三次元TLスペクトルを等高線表示にして図-2-(a), (b), (c), (d)及び(e)に示す。これらのスペクトル等高線図は8.7kGyの人工照射後の測定により得られたものである。鵜目火砕流試料からは天然TLと人工照射TLスペクトル間に差異がないことを確認しており、他の石英粒子についても、同様に高温側の天然TLスペクトルは人工照射TLスペクトルで代用出来るとして取り扱った。下山里火砕流層からの石英粒子のTLスペクトル(a)は、ほぼ610nmの波長で320℃付近に最大発光を与える巾広いバンドを有している。この結果は、高温型石英粒子に共通して観測される赤色TL粒子からのスペクトル結果と一致している(Hashimoto et al., 1993)¹⁾。このRTLスペクトルは、池月・鵜目火砕流やTm-1層から抽出した石英粒子からのスペクトル{(b), (c)および(e)}でも観察されており、写真-1のTLCI結果とも一致している。しかしながらTm-5火山灰層の石英粒子(d)からは、RTLピークが280~350℃付近では顕著な強度を示すものの、ほぼ同じ温度域において青色域である470nm付近にピークを有するほぼ1/5強度のBTL粒子も存在することが分かる。このことは写真-1の観察結果とも矛盾しない。このBTL粒子は火山灰に巻き込まれた起源の異なる石英粒子の混入か、またはマグマ自体の冷却速度が急速でなかったためBTL特性を示すAl不純物の少ない石英部分がRTL特性を示すAlの多い石英部分とともに生成したものと考えられる²⁾。

火砕流と火山灰間での起源の異なる石英粒子間では、同一吸収線量のもとでのRTLの強度は前者の方が後者の2~3倍に達しており、火砕流のTL感度が高いことが分かった。このことは、高い粘性マグマ物質を起源とする火砕流からの石英粒子の方が火山灰起源石英と比べてルミネッセンスセンターとなる不純物や格子欠陥をより多く含んでいるとともに、ルミネッセンスセンターのキラードとして働く水酸基や水分子の関与も両石英間で異なっている可能性があるためであろう(Hashimoto et al., 1995b)。

これら三次元TLスペクトル等高線表示の結果はTLCIの結果とも一致しており、今回の石英粒子試料のTL年代測定にはRTL測定が最も適していることを確認できた。

3・2 付加線量法による天然蓄積線量評価

図-2の結果に基づき、熱ルミネッセンス測定値の取扱を定量的に行なうため、光子計数を基本とする自作のTL測定器を用い、赤外カットフィルターと赤外ガラスフィルターを組合せてフォトマルの前

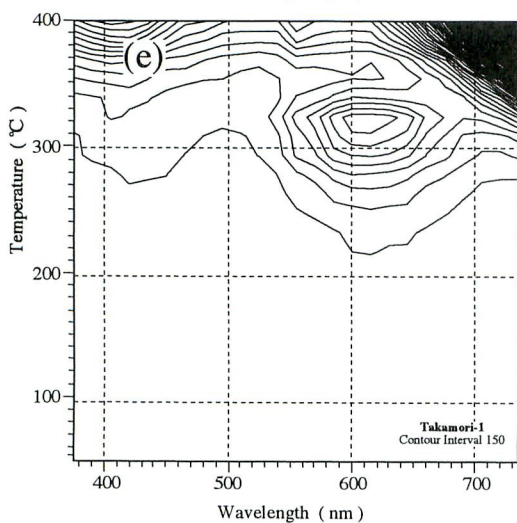
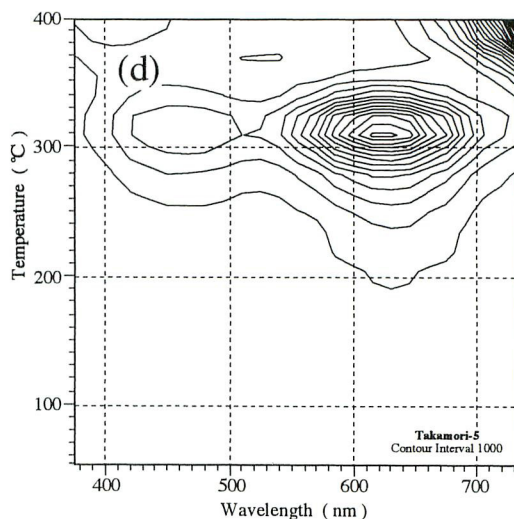
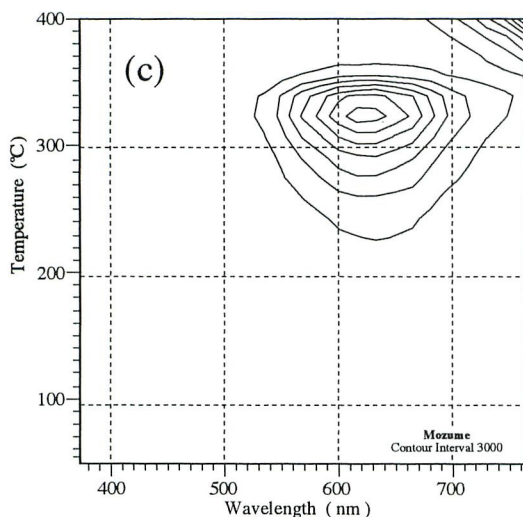
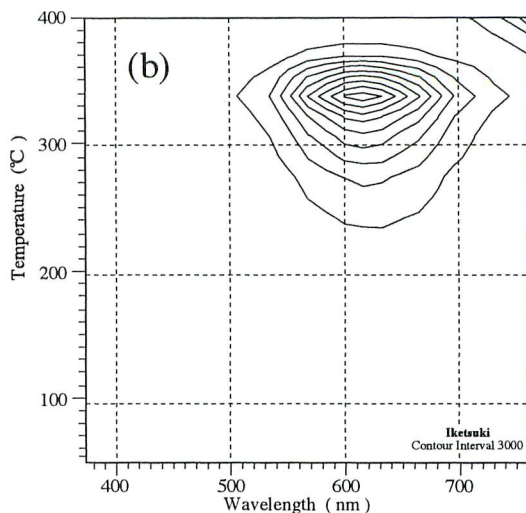
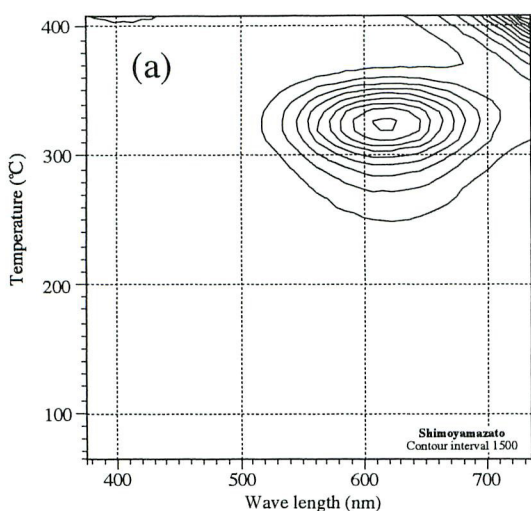


図-2 遺跡関連地層より抽出した石英粒子からの熱ルミネッセンス三次元スペクトルの等高線表示

- (a) 下山里火砕流(等高線巾1500counts), (b) 池月火砕流(等高線巾3000counts), (c) 鷗目火砕流(等高線巾3000 counts), (d) 高森第5火山灰(等高線巾500 counts), (e) 高森第1火山灰(等高線巾700counts) いずれもX線を8.7kGy照射後スペクトル測定

Fig.2 Contour maps of TL-spectra from quartz extracts from the layers related to Takamori-sites.

- (a) Shimoyamazato pyroclastic flow layer (contour intervals, 1500 counts), (b) Ikezuki pyroclastic flow layer (3000 counts), (c) Mozume pyroclastic flow layer (3000 counts), (d) Takamori-5 tephra layer, Tm-5 (500 counts), (e) Takamori-1 tephra layer, Tm-1 (700 counts)

Every quartz sample was irradiated by X-rays of 8.7 kGy before the spectrometry.

に置き、550～700nm領域の赤色領域のみを計測した (Hashimoto et al., 1986c, 1987)。

鷗目火砕流より抽出した石英粒子からのグローカーブを図-3に示す。これらのカーブから、ほぼ340°C付近にピークを有する比較的中広いカーブを与えていることが分かる。天然蓄積TLのグローカーブに速度論的解析を適用したところ、350°Cにピークを有する高温側グローカーブ以外に270°C付近にピークを有する低温側グローカーブの2成分から構成されており、前者の捕捉電子とルミネセンスセンターとの結合は二次反応で起こると推定された。付加線量の増加に伴い、ピーク位置でのTLの増加が明らかに認められるほかに、高い吸収線量域でグローカーブに飽和する傾向が見られる。これらに加えて新たに180～190°Cの弱いピークが現われている。この傾向は、従来からのRTL石英粒子のグローカーブの特徴と一致しており、付加線量に伴って180～190°C側のピークが先行して増加するBTL石英粒子特性とは明らかに異なっている (Hashimoto et al., 1993)。

これらのグローカーブに基づき、TL強度が吸収線量に対して比例的に増加する温度領域(プラトー域)を定めるため、プラトー特性を求めた。その結果、プラトー域を290～340°Cと決定し、この領域のTL値を積算した。100 Gy以下でのプラトー域のTL積算値 (いづれも数測定値の平均) を縦軸に付加線量を横軸にプロットしたものを図4に示す。

この図をもとにして、各積算TL値から付加線量に対する積算TL値の増加を外挿し、外挿線と水平軸 (吸収線量軸) との交点から天然での蓄積線量 (Paleodose, PD) が求まる。ここでは、積算TL値を一次関数で最小自乗フィッティングして求めた。

同様な方法を他の石英粒子試料にも適用し蓄積線量 (PD) を評価した。

3・3 年間線量評価

蓄積線量(PD)から年代を見積るに当たって、石英粒子自身が地層中で年間に吸収する線量の評価が重要となる。年間線量の測定に当たって、信頼性を高めるため二つの方法を適用し、測定値のクロスチェックを試みた。

一つは地層試料の既知量を高純度Ge-検出器を用いて γ 線スペクトル測定し、放射平衡状態にあるという仮定のもとで、含有天然放射性核種を定量し、含水量や宇宙線の補正を行うことにより年間線量を見積る方法である。今回の試料の γ 線スペクトル測定は、約200 gの地層試料を測定したものである。下山里・池月・鷗目火砕流やTm-1とTm-5層ならびに富山県上市町丸山公園の呉羽山火砕流と新潟大学構内を含む地層試料7種の結果を表1にまとめている。ThやU、 K_2O の量をもとに既知の方法で(橋本ら, 1989) β 線、 γ 線の寄与を評価し(α 線の寄与はエッチング処理により無視) 含水量と0.26 mGy/aの宇宙線を考慮して年間線量を見積り第六欄目に与えてある。

もうひとつの測定方法として、 γ 線由来の線量を電子ポケット線量計 (アロカ, EPD101) を、対象としている地層中に約1週間から10日 (実際にはTm試料では8300分間池月・鷗目火砕流では14000分であった) 埋めておくことによりその場 (*in situ*) 評価を行った。この結果を最後の欄に D_γ (EPD) として示した。この値が γ 線スペクトル測定からの見積値 D_γ に対して、高森遺跡関連地層では20%程

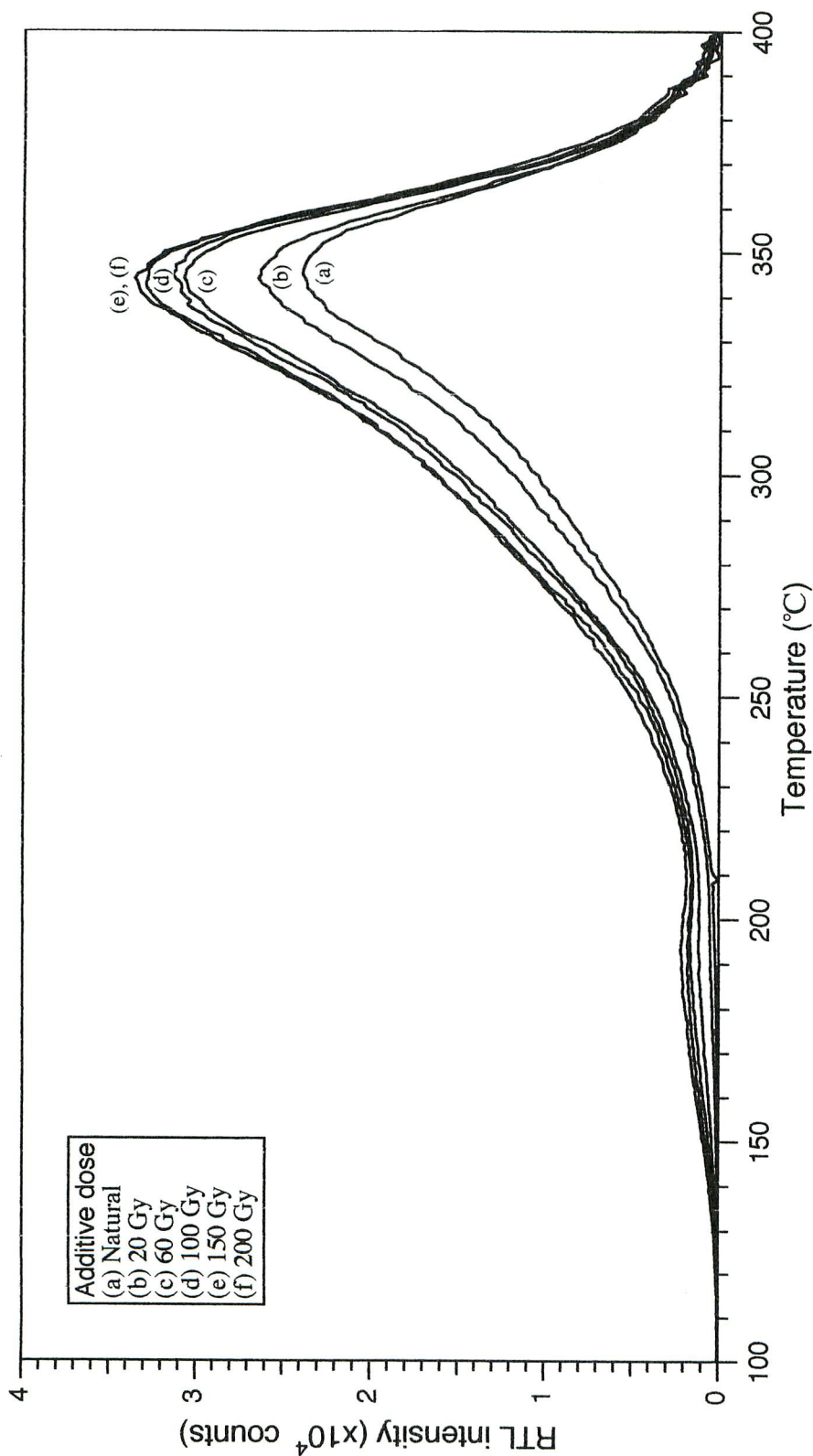


図3 付加線量に伴う熱ルミネッセンス発光曲線（グローカーブ）の変化 試料：鴨目火砕流より抽出した石英試料

(a) 付加線量無し, (b) 20 Gy, (c) 60 Gy, (d) 100 Gy, (e) 150 Gy, (f) 200 Gy

Fig 3 Variations of TL glow-curves with additive doses of γ -rays. Sample quartz grains were extracted from Mozume pyroclastic flow layer.
(a) without additive dose, (b) 20 Gy, (c) 60 Gy, (d) 100 Gy, (e) 150 Gy, (f) 200 Gy

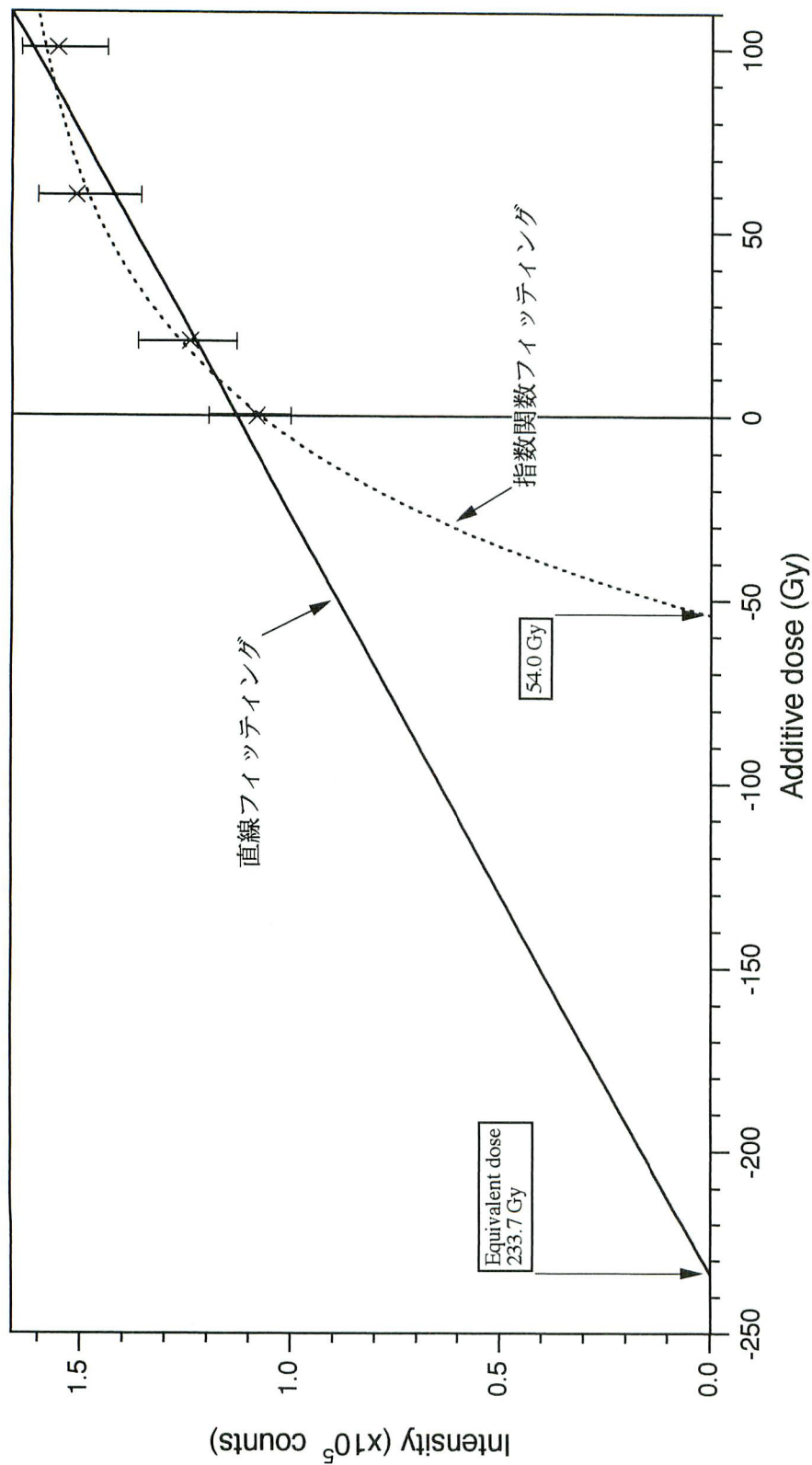


図4 付加線量増加に伴うプラトロー域TL積算値の応答曲線

試料：鷗目火砕流より抽出した石英試料

Fig 4 Paleo-dose estimation from extrapolation of the response relationship between integrated TL-values and additive doses.
Sample quartz grains were extracted from Mozume pyroclastic flow layer.

表-1 地層試料中のTh, U, K₂O含有量からの年間線量評価（放射平衡を仮定）

Table 1 Annual dose evaluation from Th, U, K₂O contents in samples on the assumption of radioactive equilibrium.

試 料	Th (ppm)	U (ppm)	K ₂ O (%)	含水量	年間線量 (mGy/a)	D γ (mGy/a)	D γ (EPD) (mGy/a)
下山里火砕流	7.43	1.54	0.41	0.39	1.20	0.74	0.70
池月火砕流	1.15	0.19	1.27	0.23	1.21	0.34	0.48
鵜目火砕流	1.78	0.13	1.01	0.14	1.13	0.31	0.55
Tm - 5	2.67	0.76	0.10	1.18	0.48	0.38	0.46
Tm - 1	2.17	0.35	0.19	0.55	0.53	0.39	
呉羽山火砕流 (富山県上市町丸山公園)	15.5	2.99	2.52	0.26	3.46	1.60	2.02
新潟砂丘砂 (新潟大学構内)	9.93	2.14	3.76	0.07	4.32	1.68	1.29

*年間線量は、含水量及び宇宙線（0.26mGy/a）の補正済み

*D γ ： γ 線由来の年間線量+宇宙線由来の年間線量(0.26mGy/a)

*D γ (EPD)：電子ポケット線量計による γ 由来の年間線量
(宇宙線由来の年間線量も含まれている)

度の誤差を見込めば一致した結果を与えていると言えるが、実際の年間線量評価には今後更なる検討が必要である。また橋本らの報告(1993)で大露頭(D地点)と発掘場所(O地点)の両方からの同一地層の年間線量がほぼ一致することを確認しており、測定値に信頼がおける事が分かる。火砕流層と火山灰層では、各々の地層間ではそれぞれ1.1~1.2mGy/aおよび0.48~0.53mGy/aとほぼ一定の値を示しており、火砕流の場合火山灰層より高い年間線量を与えている。これは、前述したように火砕流自身が元のマグマ成分から放射性元素を含む不純物を比較的多量に含んでいるためであろう。

3・4 赤色熱蛍光年代評価

これらの結果をもとに、表1の年間線量で蓄積線量を単純に割ることによりTL年代値を得ることが出来る。得られた結果を表2にまとめておく。図4上で蓄積線量PDは、実線で示した直線フィッティングと点線で示した指数関数フィッティングの2種類が求められる。いずれの地層でも、指数関数フィッティングからの年代値は直線フィッティングからのものより当然ながら若い値を与えている。従って、指数関数フィッティングからの値は若い年代の限界値を与えており、地層の層序や他のいずれの年代測定値よりも若い値となっている。一方、直線フィッティングからの年代値は池月火砕流を除いて、層序に対応して16万年から51万年と古くなっており、最近報告された長友ら(1995)の結果やこれまでの種々の年代評価値とも大きくは違ってはいない。長友ら(1993)は鵜目火砕流の下位に位置する縮沢火砕流層を、赤色付近の595nmのバンドパスフィルターを使用したTL測定から32万年と評価しており、この結果とも我々の年代値は調和している。

鍵層としての下山里火砕流は、直線フィッティングからは16万年の年代評価値を与えており、前述した日東電工前露頭での地質学的に同一地層と確認されている地層についてのRTL年代値17万年（橋

表-2 高森旧石器遺跡関連地層からの石英粗粒子を用いたRTL年代結果

Table 2 TL ages of volcanic layers related to Takamori-site using red thermoluminescence from coarse quartz grains.

	天然蓄積線量 (Gy)	年間線量 (mGy/year)	T L 年代 ($\times 10^4$ y)	これまでの 評価年代** ($\times 10^4$ y)
下山里火砕流	187 101*	1.20	16 8.4 *	29 (ESR) 88~236 (TL) 17 (TL)
池月火砕流	97 73 *	1.21	8.0 6.0 *	17 (K-Ar)
鵬目火砕流	234 54 *	1.13	21 4.8 *	Tm16 38 (Paleo. Mag.)
高森第 5 火山灰層	218 87 *	0.48	45 18 *	43~60 (ESR) 46~49 (Paleo. Mag.) 40.6~48.4
高森第 1 火山灰層	268	0.53	51	

*: 指数関数近似により得られた蓄積線量と T L 年代

**: 市川 (1986), 橋本ら (1990), 早田 (1993),
橋本ら (1993), 広岡ら (1993), 長友ら (1995)

本ら, 1990) と, 満足できる一致を確認できた。この下山里火砕流層は北海道・東北地方の広域火山灰として知られる洞爺火山灰層の下位に層序をなしており, 洞爺火山灰層の年代がほぼ10万年(町田・新井, 1992)と見積られていることから, 今回の16万年の値は矛盾が少なくRTL年代測定の有用性を示唆していると考えた。

高森遺跡関連地層 Tm-5 と Tm-1 は, 直線フィッティングから45万年及び51万年と評価でき, 他の測定値(長友, 1993, 豊田, 1993, 広岡ら, 1993)とも調和的である。このTm-5地層の更に4枚下の火山灰層であるTm-1直下より旧石器が発見されたことと合わせて考えると, 本実験結果は50万年迄にも遡る我が国の原人遺跡存在確認を支持した結果となる。これらの結果に基づけば, 直線フィッティングからの結果の方がTL年代値の古い限界値を与えていると考えられるが, 層序や他の測定結果と矛盾のない年代値となっていることは興味深い。

しかしながら, 池月火砕流は洞爺火山灰層や下山里火砕流層よりも下層に位置するにも拘わらず, この実験では若い8万年と評価されており, 信頼性高いTL年代測定法に達するには未だ未知の因子の解明が必要なことを示唆している。

熱ルミネッセンスの繰り返し測定から蓄積線量(PD)に対して誤差を10%前後と見積っているが, 同程度に線量率測定にも付随する誤差が避けられない。したがって年代値への全体的な実験誤差としては15%程度と見積った。

4. おわりに

高森遺跡関連地層よりの抽出石英粒子についてTLカラー写真結果に基づき、RTL年代測定を行った結果、下山里火砕流層については、洞爺火山灰層(10万年前後と見積られている)の年代値に矛盾しない16万年と評価出来た。一方、Tm-5とTm-1層にはほぼ40～50万年程度の年代が見積られた。RTL年代測定が100万年程度まで行えるとの見積りを東北大学構内の愛島層からの石英粒子で確認済みなので(Hashimoto et al., 1993)、これらの年代値の信頼度は高いと考えている。ここでの石英粗粒子を用いたRTL年代測定法は、従来からのBTL年代測定法に比して、スプラーリニアの補正が必要でなく、強いBTLを示すカリ長石(Hashimoto et al., 1995a)の石英粒子への混入による妨害を無視できる点が、信頼性の向上と結び付いている。

より信頼性高い年代値への評価には、TL以外に光励起ルミネッセンス(OSL)年代測定など複数の測定によるクロスチェックが今後重要である。最近Tm-1より更に下層からの旧石器遺跡発見が報道されているので、ここで年代評価した地層を含めた種々の年代測定法での再評価・クロスチェックが急がれよう。

5. 謝 辞

2回に亘る試料採集および発掘での調査結果についての情報提供に際し、大変お世話になった調査員の山田晃弘氏をはじめ東北歴史資料館の方々に深く感謝致します。本論文作成に当たって大変有益な助言を頂いた奈良教育大学の長友恒人教授にこの場を借りて感謝致します。また当研究の費用の一部は文部省科学研究費(No. 06453068)に拠りました。

注

¹⁾座散乱木や馬場檀遺跡関連地層として1987年9月に日東電工前の露頭で採取した下山里火砕流層から抽出した石英からの三次元TLスペクトル結果は、(a)の等高線表示図に完全に一致しており、同一起源であることを裏付けている(橋本ら, 1993)。

²⁾富山県上市町野島の丸山総合公園南端に位置する呉羽山火砕流層から抽出した石英粒子は、RTL粒子以外に約30%におよぶBTL粒子を有していた。地質学的に同一起源とされている富山市城山(呉羽山)の火砕流層からの高温型由来の石英粒子は全て赤紫色を呈していることから、ゆっくりと火砕流が冷却されながら、トリジマイト→高温(β)型→低温(α)型へと石英相を転移して行くにつれて、不純物アルミニウム含量に差異が生じ、アルミニウム含量が数十ppmを境として高含量石英粒子からはRTL、低含量石英粒子からはBTLが観察され则认为している(Hashimoto et al., 1996, 1997)。

文 献

市川米太(1986)馬場檀A遺跡関連のTL年代：東北歴史資料館 石器文化談話会(編)馬場檀A遺

- 跡, I, 131-132.
- 市川米太 (1986) 馬場檀A遺跡関連のThermoluminescent Dating : 東北歴史資料館 石器文化談話会 (編) 馬場檀A遺跡, II, 53-54.
- 早田 勉 (1993) テフロクロノロジーによる築館町高森遺跡の石器出土層位の検討: 高森遺跡II (発掘調査報告書), 25-37.
- 石器文化談話会 (1991) 層序 1, 高森遺跡, 9-12.
- 長友恒人 (1993) 高森遺跡関連テフラの熱ルミネッセンス年代測定: 高森遺跡II (発掘調査報告書), 39-42.
- 長友恒人・志水英之・宇野 稔・山田晃弘・阿部博志・須田良平 (1995) 高森遺跡関連テフラ層のTL年代: 日本文化財学会要旨集, pp. 50-51.
- 橋本哲夫・葉葦久尚・田辺和泉・坂井正・高橋敏 (1989) 石英粒子の赤色域の熱蛍光測定によるナウマン象化石骨関連地層の年代測定: 地球化学, 23, 35-47.
- 橋本哲夫・葉葦久尚・田辺和泉・坂井正・高橋敏 (1990) 石英粒子からの赤色熱蛍光測定による旧石器関連地層の年代測定について: 考古学と自然科学, 23, 13-25.
- 橋本哲夫・能登屋信・白井更知 (1993) 高森遺跡関連地層からの石英粗粒子を用いた赤色熱蛍光 (RTL) 年代測定: 高森遺跡II (発掘調査報告書), 43-51.
- 橋本哲夫・小西正芳・高橋英史・市野正廣 (1994) 石英粒子からの熱ルミネッセンス観測による窯遺跡の被熱温度推定: 考古学と自然科学, 30, 11-22.
- 広岡公人・森定尚・常川ゆかり・宮澤誠 (1993) 高森遺跡で発見された更新世中期の地磁気逆転: 高森遺跡II (発掘調査報告書), 61-65.
- 町田 洋・新井房夫 (1992) “火山灰アトラス”, 東京大学出版会
- Franklin A. D. (1994) Lack of interaction between the rapidly and slowly bleaching TL peaks in an Australian quartz. *Ancient TL*, 12, 5-9.
- Hashimoto T., Yokosaka K., Kimura K. (1986a) Red and Blue Colouration of Thermoluminescence from Natural Quartz Sands. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 11, 229-235.
- Hashimoto T., Koyanagi A., Yokosaka K., Hayashi Y., Sotobayashi T. (1986b) Thermoluminescence Color Images from Quartzes of Beach Sand., *Geochem. J.*, 20, 111-118.
- Hashimoto T., Koyanagi A., Takahashi K., Kimura K., Hayashi Y. (1986c) A Computer Controlled Thermoluminescence Reader with a Ceramic Heating Plate. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 102, 445-464.
- Hashimoto T., Yokosaka K., Habuki H., (1987) Emission Properties of Thermoluminescence from Natural Quartz-Blue and Red TL-Response to Absorbed Dose. *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, 13, 57-66.

- Hashimoto T., Yokosaka K., Habuki H., Hayashi Y. (1989) Provenance Search of Dune Sands Using Thermoluminescence Colour Images (TLCIs) from Quartz Grains. Nucl. Tracks Radiat. Meas., 16, 3-10.
- Hashimoto T., Sakai T., Shirai N., Sakaue S., and Kojima M. (1991) Thermoluminescent Spectrum Changes of Natural Quartzes Dependent on Annealing Treatment and Aluminum-Contents. Anal. Science, 7, 687-690.
- Hashimoto T., Kojima M., Shirai N., and Ichino M. (1993) Activation Energies from Blue- and Red-TL of Quartz Grains and Mean Lives of Trapped Electrons Related to Natural Red-TL. Nucl. Tracks Radiat. Meas., 21, 217-223.
- Hashimoto T., Sakaue S., Ichino M. (1994) Dependence of TL-property changes natural quartzes on aluminium contents accompanied by thermal annealing treatment. Radiat. Meas., 23, 293-299.
- Hashimoto T., Notoya S., Ojima T., and Hoteida M. (1995a) Optically stimulated luminescence (OSL) and some other luminescence images from granite slices exposed with radiations. Radiat. Meas., 24, 227-237.
- Hashimoto T., Sakaue S., Ojima S., and Konishi M. (1995b) Comparison of radiation-induced colouration images, thermoluminescence, and after-glow colour images with aluminium impurity distribution in Japanese twin quartzes. Radioisotopes, 44, 379-388.
- Hashimoto T., Notoya S., Arimura T., and Konishi M. (1996) Changes in luminescence colour images from quartz slices with thermal annealing treatments. Radiat. Meas., 26, 233-242.
- Hashimoto T., Sugai N., Sakaue H., Yasuda K., and Shirai N. (1997) Thermoluminescence (TL) spectra from quartz grains using on-line TL-photospectrometric system. Geochem. J., in press.
- Miallier D., Fain J., Montret M., Pilleyre Th., Sanzelle S., and Soumana S. (1991) Properties of the red TL peak of quartz relevant to thermoluminescence dating. Nucl. Tracks Radiat. Meas., 18, 89-94.
- Miallier D., Fain J., Sanzelle S., Pilleyre Th., Montret M., Soumana S., and Falgures C. (1994 a) Attempts at dating pumice deposits around 580ka by use of red TL and ESR of xenolithic quartz inclusions. Radiat. Meas., 23, 399-404.
- Miallier D., Fain J., Montret M., Pilleyre Th., Sanzelle S., and Soumana S. (1994b) Sun bleaching of the red TL of quartz : preliminary observations. Ancient TL, 12, 1-4.

(1995年10月18日受理)

Red-Thermoluminescence Dating of Some Volcanic-Ash and Pyroclastic-Flow Layers Related to Takamori Pre-Historical Sites Using Quartz Inclusion Method

Tetsuo HASHIMOTO, Shin NOTOYA, Kazuhisa KOMURA* and Nobutoshi SHIRAI,

Department of Chemistry, Faculty of Science, Niigata University,

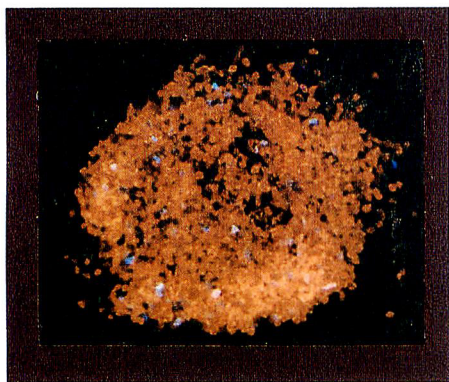
Ikarashi-nincho, Niigata 950-21, Japan

*LLRL, Kanazawa University, Wake, Tatsunokuchi, Ishikawa 923-12, Japan

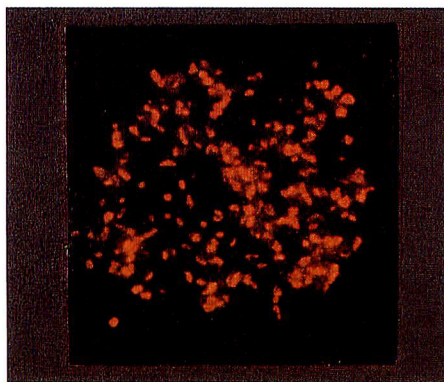
The red-thermoluminescence dating using quartz inclusion method was applied to some volcanic ash (tephra) and pyroclastic flow layers closely related to ancient stone tool culture period as an important pre-historical sites (Takamori area in Miyagi prefecture). The former layer is situated between 20th Babadan layer and Takamori (abbreviated Tm-) layers from 18 to 1 layers related to pre-historical stone tools. The latter two layers (Tm-1 and Tm-5) are particularly interesting layers because some of the oldest stone tools in Japan were found under these layers several years ago. All of the quartz grains extracted from five layers were examined by an on-line TL-spectrometric analysis using an IPDA (intensified photo-diode array) spectrometric assembly as well as TL colour photography and ascertained clearly to possess intrinsic red-TL (RTL) property; additionally the upper pyroclastic flow layer was also identified to be Shimoyamazato layer which has been dated to be 170 ka to another pre-historical site (Babadan). After additive doses on the quartz extractants, the RTLs were measured by means of a photon counting technique to obtain accumulated or paleo-doses, which were evaluated from a linear fitting for the response function of integrated TLs against additive doses. Concerning an annual dose evaluation, 200g of respective tephra samples was analyzed with a γ -ray spectrometry and compared with standard soil samples. In addition to this, *in situ* measurement using a small semiconductor dosimeter with a battery was initially applied for the γ -dose evaluation.

Finally, reliable ages are evaluated to be for Shimoyamazato, Mozume, and Iketsuki pyroclastic flow layers and Takamori-5, -1 tephra layers, respectively. The ages of two latter layers, ranging 400~500 ka, are especially significant result because of suggesting an evidence for the existence of a proto-man in Japan.

(Received October 18, 1995)



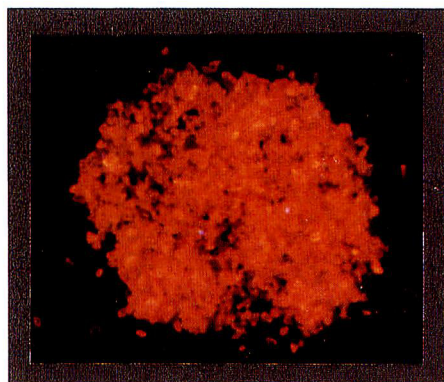
(a)



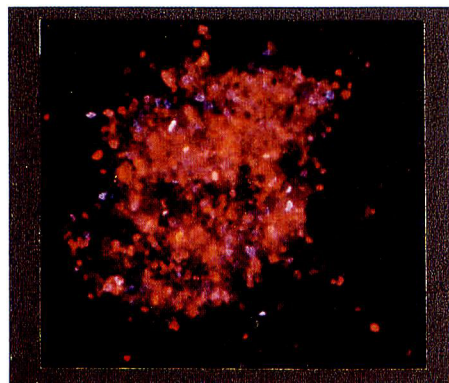
(b)



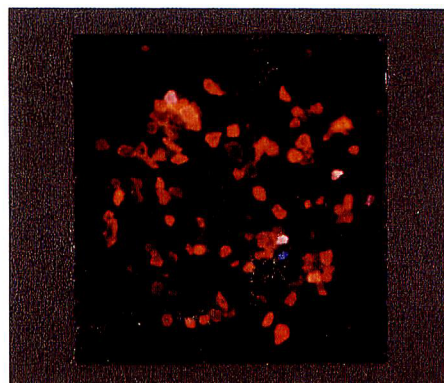
(c)



(d)



(e)



(f)

写真-1 宮城県高森遺跡関連地層より抽出した石英粒子からの熱ルミネッセンスカラー写真(TLCI)

石英粒子画分(60~100 mesh)を8.7 kGyX線で照射後、TLCI撮影は250~400℃間で行った。

(a) 下山里火砕流, (b) 池月火砕流, (c) 鷗目火砕流(加熱前), (d) 鷗目火砕流, (e) 高森第5火山灰, (f) 高森第1火山灰

Photo, 1 Thermoluminescence colour images (TLCIs) from quartz grain extracts from the layers related to Takamori-sites.

Each quartz grain extract (60~100 mesh) was photographed in 250~400℃ ranges after X-ray irradiation of 8.7 kGy.

(a) Shimoyamazato layer, (b) Iketsuki layer, (c) Mozume quartz grains before heating, (d) Mozume layer, (e) Takamori-5 layer, (f) Takamori-1 layer