

帝釈峡遺跡出土土器の熱ルミネッセンス年代測定

市川 米太*

1. 緒言

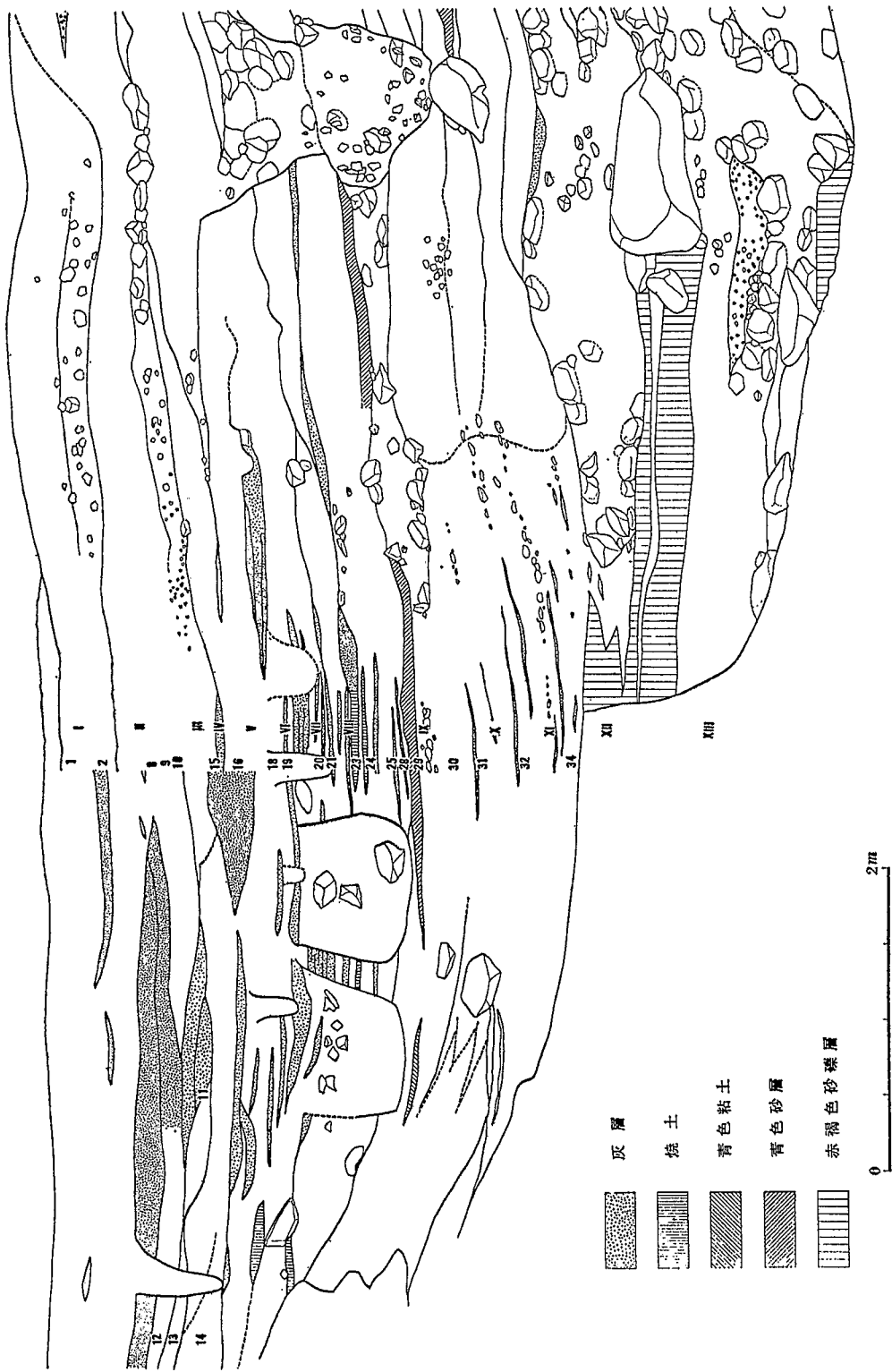
帝釈峡は広島県東北部、中国山地の広大な石灰岩地帯にある。帝釈川が石灰岩台地をえぐって流れ、その両岸に数多くの洞窟や岩陰がある。帝釈峡置跡群は30ヶ所以上のこれらの洞窟・岩陰からなり、石器、旧石器時代の人骨、骨器、縄文時代全期の土器のほか、弥生、古墳、平安、鎌倉時代に及ぶ多量の土器が出土している。今回の測定においては、特に帝釈峡の入口近くに位置する寄倉岩陰遺跡出土土器について熱ルミネッセンス年代測定を行なった。寄倉遺跡は岩陰が巾50m以上、高さ20~30mにおよぶ帝釈峡遺跡群中最大の岩陰遺跡で、13の層序が識別されている。これらの文化層の中に中国地方で知られている大部分の型式の土器が層位的な関係を示して検出されている。この遺跡を熱ルミネッセンス年代測定の立場からみたとき、縄文時代全期にわたる土器が出土されている点、遺跡の一部が現在まで保存されて残っている点、および他の年代測定の結果が得られない点で非常に興味ある遺跡である。この遺跡の断面図が第1図に示してある。

測定に使用した土器は1963~1964年にわたって明治大戸沢教授¹⁾によって発掘されたものである。第1, 2層からは須恵器、土師器、弥生式土器各1個、第3層からは縄文式晚期土器2個、第4層からは縄文式後期土器2個、第5層からは縄文式後期土器2個、第6層からは縄文式中期土器3個、第7層からは縄文式中期土器3個、第8層からは縄文式中期土器2個および前期土器2個、第9層からは縄文式前期土器2個、第10層からは縄文式前期土器1個、第11層からは前期土器1個、第12層からは縄文式早期土器1個、第13層からは早期土器1個を選出して試料とした。第1表に試料とした土器の出土文化層、代表的な土器型式とその時代および各時代の放射性炭素法による年代が示されている。土器の選出、提供については広島大潮見教授のご好意によるものでここに謝意を表す。

2. 測定原理

自然界に存在する大部分の鉱物は、加熱されたとき白熱する以前の温度において強弱の差はあるが燐光を発揮する。この現象が熱ルミネッセンスと呼ばれるものである。この現象をおこす原因としては、放射線によるもの、摩擦や粉砕によるもの、化学作用によるものなどが知られている。こ

*奈良教育大学教育学部、奈良市高畑町



第 1 图 帝积峡寄倉遺跡断面图

第1表 Archaeological context of the sherds

Sherd ref.	Pottery type	Period	C-14 date of period (Yrs. B.P.)
1.2 La	Sueki	Tumulus-Heian	820 - 1750
1.2 Lb	Hajiki	Tumulus	1450 - 1750
1.2 Lc	Yayoi	Yayoi	1750 - 2300
3La, 3Lb	Kurotsuchi B2	Latest Jomon	2300 - 3100
4La, 4Lb	Kurotsuchi B1	Late Jomon	3100 - 3900
5La, 5Lb	Tsuzaki K2, Tsugumo A	Late Jomon	3100 - 3900
6La, 6Lb, 6Lc, 6Ld	Nakatsu	Late Jomon	3100 - 3900
7La, 7Lb, 7Lc	Hukuda C	Middle Jomon	3900 - 4800
8La, 8Lb	Hukuda C, Satoki 2	Middle Jomon	3900 - 4800
8Lc, 8Ld	Tai	Early Jomon	4800 - 6000
9La, 9Lb	Hikosaki, Isonomori	Early Jomon	4800 - 6000
10La, 11La	Hazima	Early Jomon	4800 - 6000
12La, 13La	?	Earliest Jomon	6800 -

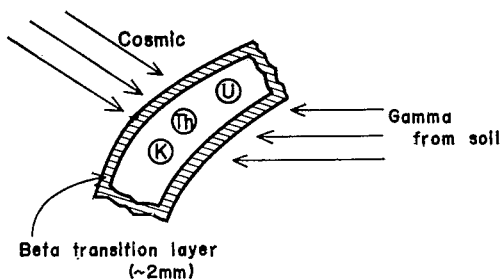
れらの中で、放射線の刺激が原因となって発光するものが放射熱ルミネセンスであって、これが年代測定に応用されている。

天然の結晶鉱物を加熱したときの発光は地質年代にわたって、結晶が受けてきた放射線によるものである。これに対して、石英、長石、方解石などの土器中の結晶は、土器が焼成されたとき、約700°C以上の温度に加熱されるため、この時点で熱発光量は零になっている。したがって、土器中の鉱物の熱発光は土器が焼成されてからの放射線によるものであって、古い土器は長い期間放射線を受けるため新しい土器より発光量が多いことになる。

いま、熱発光量を I 、土器中の結晶が受けた放射線量を D とすると、 $I = kD$ である。 k は比例常数であって、試料の TL に対する感受性と呼ばれる。 k の値を求めるには、 C_0-60 などの人工放射線源によって試料に既知線量、 D_0 を照射し、このときの試料の熱発光量、 I_0 を測定して、 $J_0 = kD_0$ から実験的に k を求める。すなわち、 $I = \frac{I_0}{D_0} \times D$ によって、土器中の結晶が焼成以来受けてきた蓄積線量 D を求めることができる。また、土器の受ける1年間当りの吸収線量（年間線量）を R とすると、土器の焼成以来の時間（年代）を t として、 $D = R \cdot t$ となる。したがって、土器中の結晶を加熱したとき得られる熱発光量から結晶が受けてきた蓄積線量 D を測定し、一方、化学分析、シンチレーションカウンタ、熱ルミネセンス線量計などによって年間線量、 R を測定

し、土器の年代 t を求めることができる。

熱ルミネッセンス法が測定の対象とする土器は主成分である粘土に石英、長石、方解石、雲母、ジルコンなどの鉱物が混入した複雑で不均一な組成をなしている。このため、蓄積線量測定用試料として土器中のどの鉱物を使用するか、またどれくらいの大きさの鉱物粒子を使用するかによって測定方法が異なってくる。研究の初期の段階^{2,3)}においては、土器をそのまま粉砕し全鉱物を試料としていたが、次第に鉱物を分離し粒度も揃えて試料とするように改良されてきた⁴⁾。ただ、土器の真贋の判定などにおいては、土器成分全体を試料として使用することもある。現在熱ルミネッセンス年代測定法としては、5ミクロン程度の石英、長石粒子を土器から抽出して試料とする微粒子法と^{5,6)}、100ミクロン程度の石英粒子を試料とする粗粒子法^{7,8)}の二種類の方法が普通に使われている。土器中の結晶が受ける放射線の源は周囲の土および土器の胎土中のウラン、トリウム、カリウム-40と宇宙線である。第2図に土器中の結晶が受ける放射線源の配置図と年間線量の1例が示してある。この年間線量はウラン3ppm



	α	β	γ
U	860	39	36
Th	855	26	63
K	0	86	26
Total	1715	151	125

第2図 土器中の放射線源配置図と年間線量例。

トリウム12ppm, カリウム-40, 1%の濃度の胎土の土器が同じ濃度を持つ土に埋っている場合である。この表は年間線量の大部分が α 線によるものであることを示しているが、熱発光量と放射線量との関係を見る場合には、 α 線に関しては次の2点について考慮しなければならない。第1に、結晶の熱ルミネッセンスに対する感受性は放射線の線質によって異なり、 α 線は、 β 線、 γ 線に比較して、 $1/5 \sim 1/10$ 程度であることが実験的に確認されている。すなわち、前述した $I = kD$ は $I = k_{\alpha}D_{\alpha} + k_{\beta\gamma}D_{\beta\gamma}$ と記されなければならない。第2に、 α 線の透過力は、 β 線、 γ 線に比較して非常に弱く、石英について平均23ミクロン程度にとどまり、大きな粒子についてはその表面にしか影響を及ぼさないということである。これらの事実によって、年間線量の評価を2つ

の方法に分ける。5ミクロン程度の粒子を対象とする微粒子法においては年間線量の評価において α 線の寄与も考慮に入れる。しかし、100ミクロン程度の粒子を試料とする粗粒子法においては、試料調整段階にフッ化水素酸で表面をエッチングすることによって α 線の寄与を除去し、年間線量の評価においては β 線、 γ 線のみについて行なうのである。微粒子法においては試料中に長石が入っているため、長石の結晶の不安定さ、長石の熱ルミネッセンスの異常減衰などの問題がある。こ

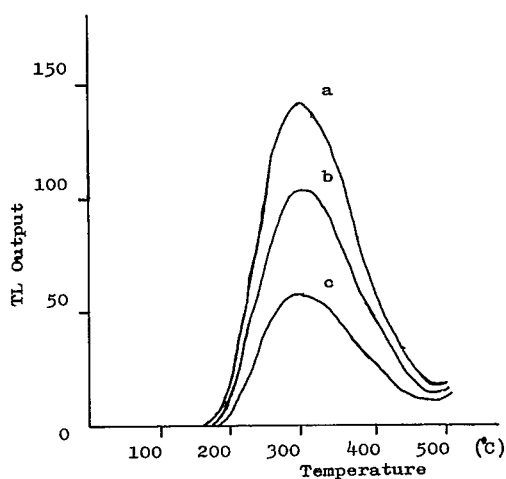
のため今回の測定においては、粗粒子法によって試料の年代測定を行なった。

3. 測定方法

(1) 試料調整法、石英粗粒子法による土器の年代測定のための試料調整は、下記のように行なった。

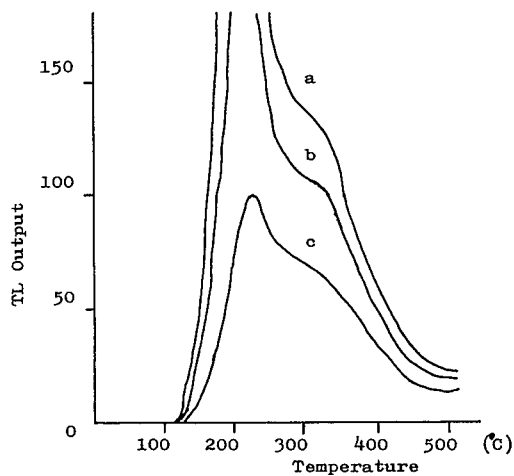
- a) 土器の表面を2 mmの厚さにわたってはく離する。
- b) 土器片を銅板に包み、万力によって土器中の石英粒子を砕かないように注意しながら粉碎する。
- c) 粉碎した試料を篩い分けによって直径75 μ 以下の粘土、鉱物粒子の部分と、75~105 μ の鉱物粒子とに分離する。前者は土器中の β 線量を測定するために保存される。
- d) 75~105 μ の鉱物粒子は電磁分離機によって白色鉱物（石英、長石、石灰岩など）と着色鉱物（雲母、角閃石、赤鉄鉱など）とに分離する。
- e) 白色鉱物部分をNaOH, HCl, HFによって処理する。この処理によって石英以外の鉱物は除去され、石英の表面はエッチングされる。この石英粒子が土器の蓄積線量の測定用試料として使われる。

(2) 蓄積線量の測定。TLを測定するために使用された熱発光測定装置は、ハーショウ2000型である。15mgの試料を白金、イリジウム製のプランチェットの上に均一に拡げ、窒素中で1秒間に20°Cの加熱速度で昇温し、その熱発光曲線をX-Yレコーダーで記録した。この方法で得られた寄倉岩陰遺跡出土土器の代表的なものの熱発光曲線を第3図、第4図に示す。図において、Cの曲



第3図 帝釈峽寄倉遺跡出土土器の発光曲線。

a: N+1500 R b: N+1000 R
c: N



第4図 寄倉遺跡出土土器の発光曲線。

a: N+1500 b: N+1000 R
c: N

線は試料調整によって得られた土器中の石英そのものが示した熱発光曲線である。b と a はこの石英試料に既知放射線源として $Co-60$ を使用して、それぞれ1000 R と1500 R を照射した後の試料から得られた熱発光曲線である。この3つの曲線から土器がこれまでに受けてきた蓄積線量を算出するに当たっては、熱発光の原因である捕獲電子の寿命を考慮して、それぞれ350°Cから400°Cにおいて曲線を基線が占める面積を比較することによって求めた。熱発光曲線の再現性は試料を縮分器を使って分割することにより±4%以下にすることができた。

(3) 年間線量の測定、年間線量の測定においては、松下電気中央研が開発した熱ルミネッセンス線量計、 $CaSO_4:Tm$ を使用した。

この線量計の感度は0.1 mR であり、フェディングは25°C の室温において6ヶ月で約5%であった。測定に使用されたこの線量計の結晶の粒度は石英試料と同じ直径70~105 μ であり、校正の線源も前と同じ $Co-60$ の γ 線を使用した。

周囲の土および宇宙線による放射線量の測定には長さ30mm、外径5mmのポリエチレンカプセルに線量計、 $CaSO_4:Tm$ を詰めたものを使用した。このカプセルを長さ0.5m、内径7mm、厚さ2mmの銅のチューブに入れ、このチューブを遺跡の各文化層の中に打ちこんで半年間放置した後に取り出して、カプセル内のTL線量計の示す熱発光曲線から、その線量を測定した。2mmの厚さの銅は周囲の土からの β 線を遮蔽するので γ 線からの寄与のみが計測されるのである。

土器からの β 線量の測定は下記のように行なった。まず、試料調査の段階において得られた75 μ 以下の粘土および鉱物粒子を圧縮器によって直径45mm、厚さ3mmの2つの円板に成形した。次に、この円板をそれぞれ3.5 mg/cm²の厚さのポリエチレンの袋に入れ、その間に $CaSO_4:Tm$ を広げた。

ポリエチレンは α 線を遮蔽するためのものである。この線量計をはさんだ円板を鉛の箱に入れ2週間放置した後に取り出して β 線量を測定した。

4. 結果と考察

寄倉岩陰遺跡出土土器26個の熱ルミネッセンス年代測定の結果が、第2表に示されている。表において、 dW は飽和含水量を乾いた土器重量に対するパーセントとして表わしたものであってこれによって土器中の水分による β 線量の減衰効果を計算し補正した。遺跡の文化層中に存在する石灰岩が周囲の土の γ 線量評価に及ぼす影響については、両者の放射能がいずれも弱く殆んど同じであったので補正は行なわなかった。

スーパーリニアリティテスト(低線量部分において、線量と熱発光強度の間に直線性があるかどうか)を行なった結果が表に示されている。○印は直線性を持つ試料であり、×印はスーパーリニアを示したものである。スーパーリニアの補正はいくつかの問題があるため今回は行っていない。

第2表 熱ルミネッセンス年代測定の結果.

TL results.

Sherd	Dose-rate (rad/yr)			Glow-curve analysis A.D.(=E.D.) (rad)	Supra- linearity	Date (B.P.) (yr)
	$\Delta W(\%)$	D_{β}	$D_{\gamma}+D_e$			
Yosekura						
1.2La	3.0	0.197	0.035	252	o	1085
1.2Lb	9.0	0.232	0.035	425	x	1655
1.2Lc	9.0	0.225	0.035	505	x	1740
3La	14.0	0.270	0.040	676	o	2180
3Lb	13.0	0.153	0.040	447	x	2315
4La	12.0	0.255	0.044	747	o	2420
4Lb	7.0	0.268	0.044	1121	o	3590
5La	8.0	0.220	0.039	1003	o	3870
5Lb	10.0	0.221	0.039	1023	x	3935
6La	9.0	0.261	0.039	884	x	2945
6Lb	9.0	0.309	0.039	1179	x	3385
6Lc	8.0	0.230	0.039	1058	o	3935
6Ld	10.0	0.332	0.039	1507	x	4060
7La	11.0	0.205	0.038	881	o	3625
7Lb	8.0	0.219	0.038	1037	o	4035
7Lc	14.0	0.126	0.038	686	o	4180
8La	8.0	0.280	0.044	1491	o	4600
8Lb	7.0	0.289	0.044	1552	o	4660
8Lc	9.0	0.185	0.044	1114	o	4865
8Ld	7.0	0.288	0.044	2037	o	6135
9La	4.0	0.293	0.045	1547	x	4445
9Lb	3.0	0.201	0.045	1345	x	5465
10La	6.0	0.222	0.049	1572	o	5800
11La	7.0	0.181	0.047	1345	o	5900
12La	8.0	0.240	0.049	2169	o	7505
13La	8.0	0.206	0.049	1935	x	7590

今回測定された土器の年代は、第1表に引用した放射性炭素法の各時代の結果と大体において一致しているが、各文化層の間ではその年代の逆転しているものがいくつかある。

この原因については、土器が埋っている間の攪乱や、流れ込みによるものであるのか、土器の材質経歴からくる熱ルミネッセンス用試料としての不適格性によるものであるのかは今回の測定では

断定することができなかった。また、熱ルミネッセンス年代と放射性炭素法年代との一般的対照も試料の不十分さ(特に縄文早期において)と土器形式の不明な試料が多かったことから今回述べることは時期尚早である。

熱ルミネッセンス年代測定の誤差について、最近いくつかの報告がなされている^{9,10)}。誤差要因としては、1)校正のための人工放射線照射、2)熱発光曲線の測定、3)年間線量の測定、4)埋っていた間の土器中の水分量およびラドンエスケープによるものなどが考えられる。今回の実験においては、石英粗粒子法により、年間線量を熱ルミネッセンス線量計を使って測定しているので、上記の誤差要因中1)と3)および4)の一部分についてはこれを避けることができた。しかし、スーパーリニアリティの問題が残っているので誤差の算出はしなかった。

参 考 文 献

- (1) 戸沢充則(1964) 帝釈寄倉岩陰遺跡の第2次調査と二、三の問題。帝釈峽遺跡群の調査研究, 2: 9-34
- (2) G. Kennedy (1960) Dating by thermoluminescence. *Archaeology*, 13: 147-148.
- (3) 市川米太(1963) 熱ルミネッセンス法による土器の年代測定。奈良学芸大学紀要, 11: 55-61
- (4) 市川米太(1968) 熱ルミネッセンス法による土器の年代測定。考古学と自然科学, 1: 10-19
- (5) M. J. Aitken (1968) Thermoluminescent dating of ancient pottery. *Nature*, 219: 442-445.
- (6) D. W. Zimmerman (1969) Recent applications and developments in fine grain dating. *Archaeometry*, 11: 105-108.
- (7) S. J. Fleming (1970) Thermoluminescent dating: Refinement of the quartz inclusion method. *Archaeometry*, 12: 134-145.
- (8) 市川米太(1974) 熱ルミネッセンス法による土器の年代測定 II。奈良教育大学紀要, 23: 3-13
- (9) M. J. Aitken (1972) The Assessment of error limits in thermoluminescent dating. *Archaeometry*, 14: 257-267.
- (10) M. J. Aitken (1974) Thermoluminescent dating. *Physics and Archaeology*, Second Edition: 85-130

Thermoluminescent Dating of Pottery from the Yosekura

Rockshelter, Hiroshima Prefecture

Yoneta ICHIKAWA

Department of Physics, Nara University of Education

Pottery sherds from the Yosekura Rockshelter in Taishaku Valley, in Hiroshima Prefecture, have been dated by thermoluminescence. TL measurements were made by the quartz inclusion technique in which dose-rates were estimated with a TL dosimeter, $\text{CaSO}_4 : \text{Tm}$, developed by Matsushita Electric.

Measurement of the environmental dosage was made by burying a copper tube with the TL dosimeter in a culture layer in the site. The evaluation of the beta dose from a sherd was done with the TL dosimeter spread uniformly between two orbicular plates which were formed from the clay matrix of the sherd.

Pottery sherds from 13 culture layers, ranging in age from Earliest Jomon Pottery to Late Tumulus Sue ware, were dated and compared to radiocarbon dates. The present TL dates were in agreement with the radiocarbon dates, except for a few samples.

