

熱ルミネッセンス法による焼土・焼石の年代測定

市川米太*・萩原直樹*

1. 緒言

熱ルミネッセンス年代測定法は1961年に Kennedy¹⁾ によって初めてギリシャの土器についてその相対年代が求められ、その後、Tite²⁾, Ralph³⁾, Fleming⁴⁾, Zimmerman⁵⁾, Aitken⁶⁾ などによって土器の年代測定を中心に研究が進められてきた。筆者らも1962年以来、熱ルミネッセンスによる土器の年代測定の開発に関する研究を行ない今日に至っているが^{7,8,9)}、これまで土器の年代測定については試料調整法、測定法および補正法などが確立され現在実用段階に入っていると考えられる。

今回の研究は土器の年代測定に適用されてきた石英粗粒子法による熱ルミネッセンス法を焼土・焼石の考古学試料に適用しその問題点を検討しようとするものである。これは、出土土器の数が少なく形も小さく、試料として土器が使用できない縄文早期などの遺跡、旧石器遺跡やたたら炉跡遺跡のような土器を含まない遺跡の年代測定に応用することを目的としたものである。その他に火山灰や火砕流などの地質学的試料の年代測定への応用についても検討した。

今回の測定に使用した試料は長崎県佐世保市、泉福寺遺跡の隆線文系土器出土層中の炉跡の砂岩(国学院大学・麻生氏提供)、広島県豊平町、大矢たたら炉跡の焼土(広島大学・潮見氏提供)および鹿児島県南部の火砕流とゼノリス花崗岩(神戸大学・宇井氏提供)である。泉福寺遺跡の焼石は隆線文系土器と同じ年代を示すものと考えられるが、この隆線文土器は泉福寺遺跡に近い福井洞穴遺跡から1954年に発掘され、その年代は放射性炭素法により 12700 ± 500 年 B.P. (GAK-950) として測定され、また熱ルミネッセンス法の一つである差引き法で 13970 ± 1850 年 B.P.¹⁰⁾ であると報告された。差引き法は周囲の土の放射能を測定する必要のない方法であるがその誤差は一般に他の方法より大きくなるものである。いずれにしても、これらの結果は日本の土器文化の起源を1万年以上にさかのぼらせ、世界で最も古いことになり考古学界において大きな問題となっている。大矢たたら炉跡遺跡は土器を含まないためその年代を考古学的に推定することができないものであったが、炉の構造の簡単なことから周囲にある他の江戸末期のものより古いものではないかと考えられたものである。鹿児島県南部の火砕流については入戸火砕流について放射性炭素法によるいくつかの年代測定の結果が得られているが、阿田と鳥浜の火砕流についてはその年代が3万年を越えるため放射性

* 奈良教育大学教育学部，奈良市高畑町

炭素法では測定できなかった試料である。

2. 測定法

測定方法は大体において土器試料の場合と同様であるので、その詳細については“考古学と自然科学”第10号を参照されたい。

(1) 泉福寺遺跡の焼石

泉福寺遺跡の試料は隆線文系土器の包含層中にあった炉跡から採集した、A、B、C、Dの4個の砂岩である。いずれも表面が赤褐色を呈し、肉眼的に他の石と区別することができ焼石と判定した。これらの焼石を粉碎し、105-150 μm の粒子径の石英粒子を抽出し、10%のHFで1時間酸処理をしたものを蓄積線量測定用の試料とした。これらの試料から得られた熱発光曲線の例を第1図と第2図に示してある。第1図は試料Cから得られた熱発光曲線であって、曲線Aは試料にCo-60の γ 線を3000 R照射したものであり、曲線Bは試料そのものから得られたものである。蓄積線量の測定はこの2つの曲線の350°C-400°Cの温度範囲において行なった。試料AとBについて得られた熱発光曲線も大体試料Cの場合と類似していた。第2図は試料Dから得られた熱発光曲線であるが、3000 RのCo-60照射した後の曲線Aと試料そのものからの曲線Bが高温部において殆んど一致していることが観察される。この事は、この試料の蓄積線量が非常に大きな値を持つことを示すものであって、この試料の砂岩が造られてから今日まで途中で焼かれることなく現在に至っているものと考えられる。したがって、この結果は遺跡の石や土が考古年代において焼かれた履歴を持つかどうかを判定するのに熱ルミネッセンス法が利用できるものであることを示唆している。

年間線量の測定はこれまでと同様にCaSO₄:Tm熱ルミネッセンス線量計を使用する方法をとった。測定方法としては、試料の砂岩をダイヤモンドカッターで2つに切断し、その間に3.5 mg/cm²のポリエチレンの袋に入れた熱ルミネッセンス線量計をはさんだ後、2つの砂岩片を石膏で結合し、これを遺跡の周囲の土でかこみ0.6mの地中に4ヶ月埋めて、 β 線量と γ 線量および宇宙線を同時に測定する方法を用いた。この年間線量の測定において熱ルミネッセンス線量計はポリエチレン袋によって被われているので、これによる β 線の減衰を考慮しなければならない。一方石英粒子はHF処理において、その表面が約5 μm エッチングされている。この両者の効果を考慮し真の β 線の減衰量を求めるため、われわれはJ.G.Iを標準試料として実験的に補正因子を求め1.13の補正值を得た。

(2) 大矢たたら炉跡の焼土

測定した試料は炉の床から採取した36 cm×30 cm×18.5 cmの大きさの焼土の塊である。この焼土からこれまでの試料調整法によって石英粒子を抽出して測定した結果を第3図に示した。Aの曲線は試料に250 R照射したのから得られた熱発光曲線であり、Bは試料に100 R照射したのからの曲線であり、Cは試料そのものからの曲線である。この図は曲線A、BおよびCが2本の曲線

に分離して測定再現性が著しく悪いことと、曲線の高温部において試料そのものからの曲線と人工照射した曲線がほとんど一致していることを示している。これは泉福寺遺跡の試料Dと類似した結果であり、焼土中に焼けていない石英粒子が周囲の土から混入しているものと考えられる。したがってこのような焼土を試料とする場合には、試料から焼けていない石英を完全に除去することが要求される。このために、われわれは普通の方法で分離、抽出した石英粒子を更に電磁分離機にかけ、1.5 Aの電流を流した強い磁場のもとで2つの部分に分離した。鉄と共に焼成された石英粒子は弱い磁性を帯じているものと考えられるからである。このようにして得られた試料からの熱発光曲線が第4図に示してある。A曲線は試料に300 R照射したのから、B曲線は150 R照射したのから、Cは試料そのものからの熱発光曲線である。

蓄積線量の測定は吸収線量に対する熱発光強度が比例関係にあり、線量対発光強度のグラフが直線性を持つものとして算出される。しかし、試料によっては約500 Rまでの低線量部分においてスーパーリニアを示すものがあることが実験的に知られている。これを補正するために、試料を500°Cで加熱した後に300 R、600 Rおよび900 Rの人工照射してそれぞれの熱発光曲線を記録した。

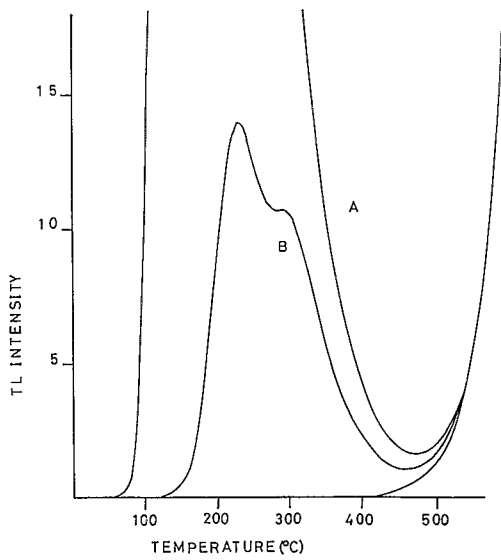
その結果が第5図に示してある。この図において、Aは熱発光強度として330°Cにおける値をとったものであり、Bは370°C、Cは407°C、Dは444°Cの値をとったものである。この結果から大矢たたら炉跡の焼土中の石英についてはスーパーリニア間隔は $\Delta = 93 \text{ Rad}$ となり、この補正が蓄積線量に対してなされなければならない。泉福寺遺跡の焼石からの石英については、スーパーリニアは観察されなかった。これは試料の焼成温度の差によるものと考えられる。

年間線量の測定は36cm × 30cm × 18.5 cmの大きな焼土塊が得られたので、これを使用して β 線量と γ 線量を同時に測定する方法をとった。すなわち、この焼土塊の中央部に直径5 cm、深さ9 cmの穴をあけ、この中にCaSO₄: Tmの熱ルミネッセンス線量計の粒子80mgをポリエチレンの袋に一樣に拡げたものを埋めこんだ。この焼土塊を野外の砂中、0.6 mの深さに埋め1ヶ月放置した後、熱ルミネッセンス線量計をとり出してその吸収線量を測定した。 β 線の減衰に対する補正值としては、泉福寺遺跡の場合と同様に1.13を採用した。

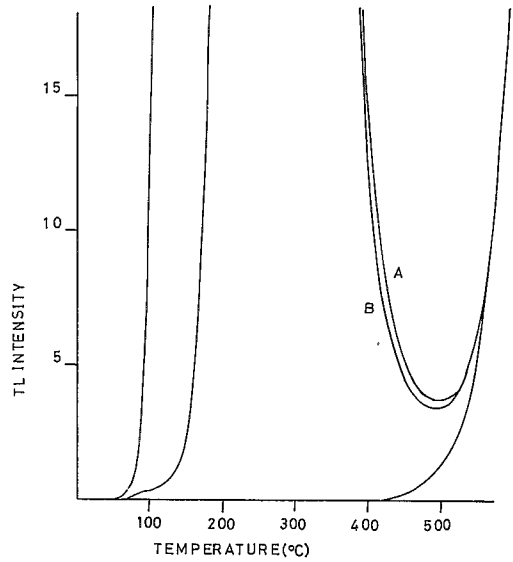
鹿児島南部の火砕流の測定法は大矢たたら炉跡の焼土の測定法とほとんど同じ方法によった。しかし火砕流中の石英粒子の含有量が少なく、石英粒子と分離することの難しい火山ガラスが多量に含まれているため、これまでの試料調整法では石英粒子のみを抽出することが困難であった。このため蓄積線量測定における熱発光曲線の再現性が悪く、その誤差は、 $\pm 20 \sim \pm 30\%$ におよんだ。したがって、このような試料の調整法については更に改良する必要があると考えられる。

(3) 結果と考察

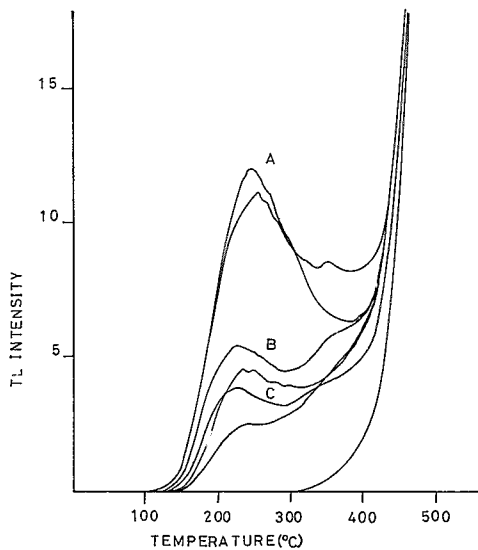
今回の研究において得られた大矢たたら炉跡遺跡、泉福寺遺跡および鹿児島南部の火砕流の熱ルミネッセンス年代測定の結果を下の表に示す。



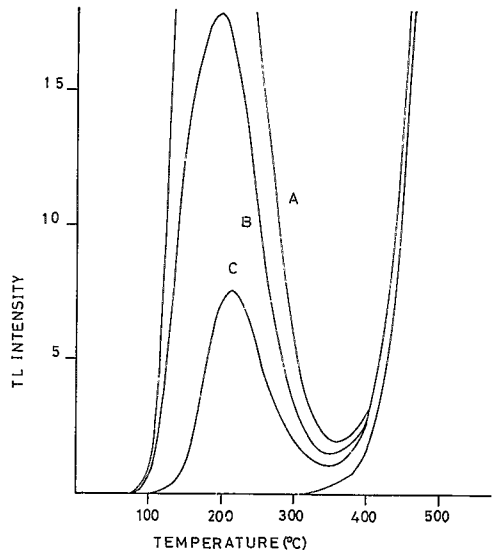
第1図 泉福寺遺跡の試料Cの熱発光曲線
TL glow curves for sample C. A: glow for natural plus 3000R induced dose, B: natural glow.



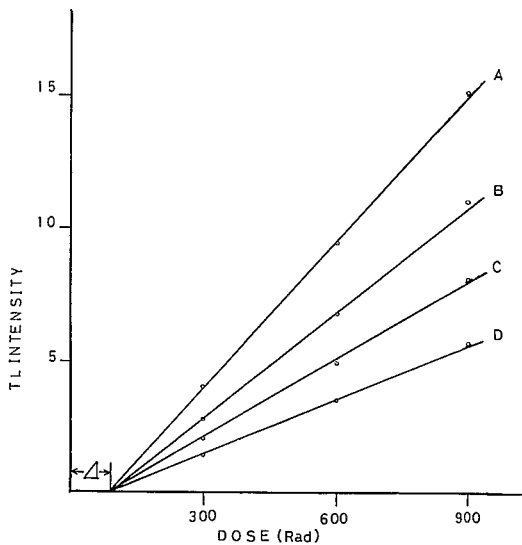
第2図 泉福寺遺跡の試料Dの熱発光曲線
TL glow curves for sample D. A: glow for natural plus 3000R induced dose, B: natural glow.



第3図 大矢たたら炉跡の試料の熱発光曲線
TL glow curves for Tataro sample before separation. A: glow for natural plus 250R induced dose, B: glow for natural plus 100R induced dose, C: natural glow.



第4図 大矢たたら炉跡の再分離処理試料の熱発光曲線
TL glow curves for Tataro sample after separation. A: glow for natural plus 300R induced dose. B: glow for natural plus 150R induced dose, C: natural glow.



第5図大矢たたら炉跡の試料のTLのスーパーリニア
Supralinear dependence of TL on radiation dose for Tatara sample irradiated with gamma radiation from Co-60. The degree of supralinearity is the intercept Δ . A: TL intensity of 330°C peak, B: TL intensity of 370°C peak, C: TL intensity of 400°C peak, D: TL intensity of 440°C peak.

第1表 熱ルミネッセンス年代測定の結果
results of TL dating

Sample	Accumulated Dose (Rad)	Annual Dose (Rad/yr)	TL Age B, P,
大矢たたら炉跡	328	0.314	1040 ± 160
泉福寺遺跡 A	3334	0.274	12170 ± 1170
B	3283	0.274	11980 ± 280
C	3114	0.274	11370 ± 760
池田火砕流	1001	0.220	4550
池田花崗岩	2570	0.384	6690
入戸火砕流	6470	0.303	21350
阿田一鳥浜	21210	0.194	109330
鳥浜花崗岩 A	13630	0.278	49030
B	52830	0.440	120070

大矢たたら炉跡遺跡はこの炉跡の周辺に江戸時代末期から明治時代にわたるいくつかの炉跡が発見されており、この炉跡を発掘した広島大学考古学研究室においても最初はこの時代に属するものと考えていた。しかし、発掘が進むにつれて炉の構造が他のものに比較して簡単なところから多少古いものでないかと考えその年代測定が本研究室に依頼された。

測定の結果は表に示されているように考古学上からの推定よりかなり古い結果が得られた。なお、京都産業大学において測定された放射性炭素法による年代は 880 ± 30 B.P. であった。

泉福寺遺跡は隆線文土器の出土層の下層から豆粒文土器が発見されたことによって、日本の土器文化の起源の解明に大きな役割をはたす遺跡として注目されている。福井洞穴から出土した隆線文土器は緒言において述べたように放射性炭素法の年代測定の結果が、 12700 ± 500 年 B.P. とい

う年代が与えられ現在世界最古の土器ということになり、考古学上大きな問題となっている。一部の考古学者や年代測定研究者は放射性炭素年代測定法そのものに疑問を投げかけている。今回の研究はこのような問題を背影として、放射性炭素法とは原理を異にする熱ルミネッセンス法によって隆線文土器層の年代を焼石を使って測定したものである。試料として使用した4個の焼石中の1個は焼けていなかったために測定ができなかったが、残りの3個についての結果が表に示されている。表における TL 年代の誤差は熱発光曲線の測定に伴う誤差と較正用の γ 線照射に伴う誤差から計算されたものである。3個の焼石の TL 年代の平均値は、 11840 ± 740 年 B. P. であり、標準偏差は 350 年であった。この結果は福井洞穴の隆線文土器の放射性炭素法の結果より約千年程若い結果となっている。なおこの遺跡の隆線文土器の放射性炭素法の結果は得られていないが、立教大学の鈴木氏によるフィッシュントラック年代測定の結果は 10800 年 B. P. となっている。

鹿児島南部の火砕流の測定結果もまた表に示されている。表の試料名の中の阿田一鳥浜は古い鳥浜の火砕流が新しいその上の地層にある阿田火砕流によって焼成されたと考えられる部分を採集した試料である。また花崗岩試料は火砕流にとり込まれたゼノリスである。

火砕流に関する試料については試料調整に問題が残されており、さらに測定法の改良が要求されるものであって、ここには参考までに結果を示したに過ぎない。

参 考 文 献

- 1) G. Kennedy (1960): Dating by thermoluminescence. *Archaeology*, **13**: 147 – 148.
- 2) M. S. Tite and J. Wain (1962): Thermoluminescence dating. *Archaeometry*, **5**: 53 – 79.
- 3) E. K. Ralph and M. C. Han (1966): Dating of pottery by Thermoluminescence. *Nature*, **210**: 245 – 247.
- 4) S. J. Fleming (1970): Thermoluminescence dating: Refinement of the quartz inclusion method. *Archaeometry*, **12**: 135 – 146.
- 5) D. W. Zimmerman (1971): Thermoluminescent dating using fine grains from pottery. *Archaeometry*, **13**: 29 – 52.
- 6) M. J. Aitken, D. W. Zimmerman and S. J. Fleming (1968): Thermoluminescent dating of ancient pottery. *Nature*, **219**: 442 – 444.
- 7) Y. Ichikawa (1965): Dating of ancient ceramics by thermoluminescence. *Bull. Inst. Chem. Res. Kyoto Univ.*, **43**: 1 – 6.

- 8) 市川米太・長友恒人（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) Y. Ichikawa and T. Nagatomo (1978): Thermoluminescent dating of Jomon pottery from Taishaku Valley. Archaeometry, 20.

Thermoluminescence Dating of Burnt Stone and Burnt Soil

Yoneta ICHIKAWA and Naoki HAGIWARA

Department of Physics, Nara University of Education

The samples used in this dating were burnt soil from Ohya Tataru hearth in Hiroshima prefecture, burnt sandstone pebbles from the Senpukuji Cave site in Nagasaki prefecture, and volcanic rocks from a volcano in Kyushu.

Their TL ages were obtained by quartz inclusion technique. Annual dose measurements were made with a CaSO_4 : Tm TL dosimeter in a polyethylene bag sandwiched between two sample blocks. The attenuation of the beta dose rate due to the polyethylene was evaluated with a JG-1 of known radioisotope content and appropriate correction was made in the sample measurement.

The Senpukuji samples gave an average age of $11,840 \pm 740$ years, and the Ohya Tataru sample gave 1040 ± 160 years.

The results for the lava samples are shown in Table 1.

