

# 石英粒子からの赤色域熱蛍光による 旧石器関連地層の年代測定について

橋本哲夫・小嶋素志・坂井 正

## 1. はじめに

日本の旧石器は岩宿遺跡（1万2千～10万年前）の発見に始まり、近年全国各地で次々と発掘されている。最近宮城県玉造郡岩出山町の座散乱木、黒川郡大和町の中峯C、古川市清水の馬場壇Aなど、宮城県北の江合川流域の遺跡が旧石器時代でも我が国の最古の遺跡に属するものとして注目されている。1984～85年馬場壇A遺跡発掘において、最下層の石器含有地層としての岩出山軽石層がフィッシュントラック法、熱蛍光(Thermoluminescence 以下 TL)年代測定法でそれぞれ16万年と19万年まで古くなるという結果が得られた(興水, 1986; 市川, 1986)。

しかしながらフィッシュントラック法は20万年より若い年代評価には信頼性が低く、また従来の TL 年代測定法には TL 測定波長の選択に問題があり、得られた年代値は必ずしも信頼性が高くないと我々は考えている。すなわち従来の TL 年代測定法は、赤色域に感度の低いバイアルカリ光電子増倍管(PMT)を備えた市販 TL 測定器を使用している上、青色域に相当する350～590nmの光学フィルターを用い、赤色域 TL を測定対象から除いている(市川, 1988)。しかしながら、旧石器関連地層はそのほとんどが火山噴出物、または火砕流起源の軽石層であり、これらの中に含まれる石英(生成時高温型)の天然 TL 発光は、我々が測定した数十点の試料については全て赤色領域(600～700nm)である事を見出しており、その特性について報告してきた(Hashimoto et al., 1986a, b, 1987)。堆積物起源と思われるナウマン象化石骨関連地層に含まれる石英粒子からも、天然蓄積 TL のカラー写真像(TLCI: TL Colour Image)は赤色 TL のみを与えており、人工照射した石英粒子にのみ青色 TL が認められるため、青色域 TL 測定よりむしろ、赤色域 TL を測定する年代測定が適切であることを確認してきた(橋本ほか, 1989; Hashimoto et al., 1989)。そこで今回、上記旧石器関連地層の試料は全て火山噴出物起源の地層であることから、赤色 TL 特性の石英を含有すると考えられたので、抽出した石英粒子について赤色域 TL 測定法を適用し、青色域 TL からの結果と相互比較したところ、赤色域 TL 測定法が再現性良い高計数値を与え、その結果として信頼性の高い年代値を与えることがわかったので以下報告する。

## 2. 実 験

### 2. 1. 測定装置

---

新潟大学理学部化学科：950-21 新潟市五十嵐二の町8050

測定装置一式は図1に示すようにセラミックスヒーター(コテペン100, 32W×4枚)を備えた等速昇温装置と光子計数装置を基本とした部位から成っている。加熱温度(1℃/秒の等速昇温)及びデータ取り込み等は全てマイクロコンピューター(Sharp MZ80B)制御で行っている(Hashimoto et al., 1986c: 橋本・坂井, 1990a)。この光子計数装置は従来の直流電流測定法に比較してS/N比が高く、出力値がデジタル値として得られるためデータ処理が容易であり、従来のグローピーク高やアナログ値の積算から算出するピーク面積による方法よりも信頼性が高い。

ヒーター上に試料として抽出調整した石英粒子約5mgを秤量して載せ、加熱により放出される光子をPMTで検出した。PMTは赤色域計測にはマルチアルカリ光電面より成るR-649を、青色域計測にはバイアルカリ光電面を有するR-585(いずれも浜松ホトニクス製)を使用し、熱雑音を低下させるため冷却装置(浜松ホトニクス, C659-A)中に取り付け、-20℃に冷却した状態で使用した。ヒーターとPMTの間には熱線除去のため赤外線カットフィルター(Kenko, IRC-65L)と、測定域に応じて赤色、青色のフィルター(Toshiba)を挟み、それぞれ600~700nmと350~550nmの波長域を測定した(Hashimoto et al., 1987)。更に、ヒーター上は黒雲母で覆い、試料の加熱部分以外からの熱線の影響を出来るだけ除去した。PMTからの電気的低レベル雑音をカットした光子由来のパルスを光子計数装置(浜松ホトニクス, C1230)で計測し、1秒毎に温度情報とともにマイクロコンピューターメモリーに取り込んだ(Hashimoto et al., 1986c)。測定後データファイルをもとに、温度に対するTL発光強度の関係をグロークラブとして作図した。また同じデータファイルは全体または部分的にデータを取り出し、プラトー領域評価などの計算に使用することができる。

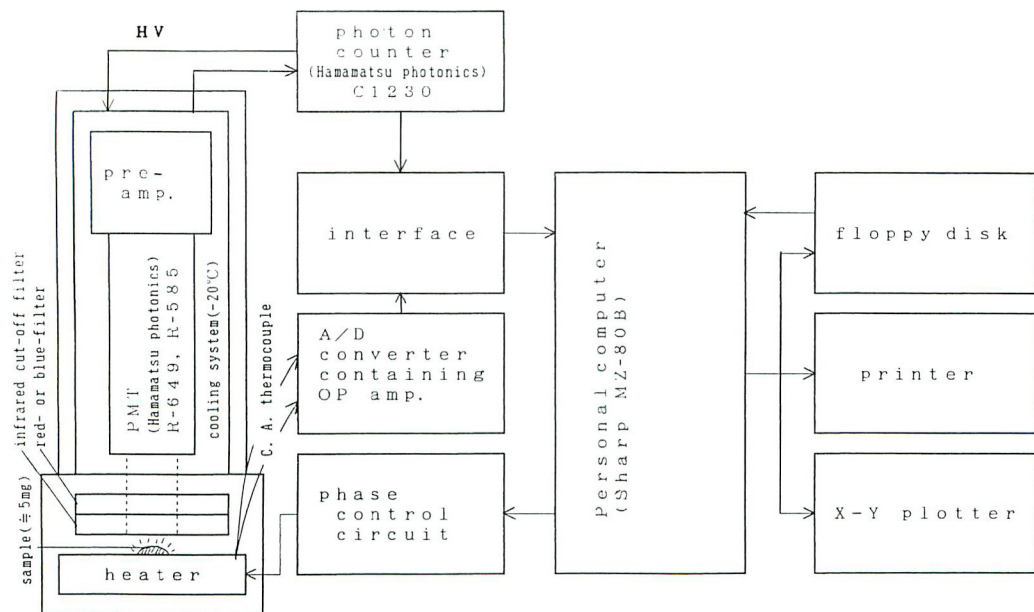


図1 熱蛍光測定システムの概念図

Fig.1 Block diagram of TL measurement system.

発光領域の温度依存性を簡便に測定するため、超高感度（極微弱光用）瞬間マルチ分光測定システム（IMUC, Intensified Multichannel Photospectrometer System）によるスペクトルの三次元測定も行った（橋本ほか, 1990 b）。装置システムの詳細は近く公表の予定である。

## 2. 2. 試料

試料は図2に示すような地点にて1989年9月に採取し、実験に使用した。愛島軽石層は仙台市東北大学構内で採取された試料であり、青葉山遺跡に関連した地層である。一方、一迫軽石、岩出山軽石、下山里火砕流は岩出山町日東電工前の露出地層にて採取した。これらの層序の関係を図3に示す（東北歴史資料館, 石器文化談話会, 1988）。軽石層や火山灰地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良く取り除くため、以下の手順で試料を処理し石英粒子のみを抽出した（橋本ほか, 1989）。

まず最初に水洗で大きな石, 粘土, チリ, 植物の根などを可能なかぎり除去する。乾燥後, 大きさを揃えるためメッシュで五種類にふるい分け（～32, 32～60, 60～100, 100～200, 200～mesh）し, その後磁性鉱物を取り除くためフランクツ電磁分離（前傾斜25°, 側傾斜15°, 電流値2.0 A）にかけ白色鉱物のみを取り出す。次いで分離した白色鉱物（石英の他ジルコン, 長石, ガラス等）の数グラムを二次電子のビルドアップを考慮し, アルミで包み束ねたものを, 京都大学原子炉実験所にて<sup>60</sup>Co γ線源で既知線量照射した。照射線量は約100～1000 Gyの範囲に5点をとった。照射の際に用いた線量率は表1に示す。

照射後25℃超音波かくはん下で6M NaOH 10分, 6M HCl 10分, 46% HF 20～60分エッチング処理を行い乾燥後, 再び同径のメッシュでふるい分けしたものを石英粒子試料とした。土壌中に含まれる



図2 宮城県内の各旧石器関連遺跡  
Fig. 2 Prehistoric sites in Miyagi prefecture.

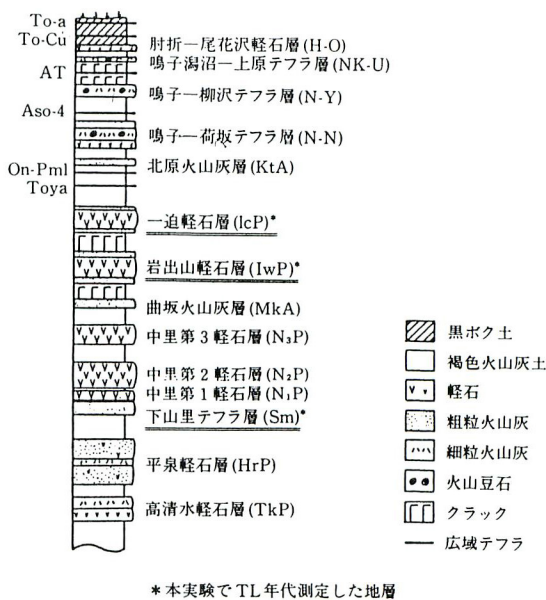


図3 関連地層の模式柱状図  
Fig. 3 Vertical section of strata related to prehistoric sites.

石英以外の白色鉱物の中で特にガラスは TL 発光を殆んど示さず、石英の TL 発光を測定する際障害となるため、HF エッチングで取り除いた。図 4 で見られるように、エッチング時間にもとない TL 強度が増加するのは、ガラスが溶解して除去されるのと、石英表面の部分的に非晶質化した不透明層が取り除かれ、石英内部からの TL の透過率が良くなるためと考えている。実際適用するエッチング時

表 1 各地層試料に対する<sup>60</sup>Co 線源による $\gamma$ 線照射条件

Table 1  $\gamma$ -ray irradiation condition for quartz samples related to each stratum using <sup>60</sup>Co source.

試料		$\gamma$ 線線量率 (R/min)	照射時間 (min)	照射線量 (R)	吸収線量 (Gy)
A 愛島軽石層 岩出山軽石層	①	$5.54 \times 10^2$	20	$1.11 \times 10^4$	$9.63 \times 10^1$
	②	$5.54 \times 10^2$	50	$2.77 \times 10^4$	$2.41 \times 10^2$
	③	$2.81 \times 10^3$	20	$5.63 \times 10^4$	$4.89 \times 10^2$
	④	$5.37 \times 10^2$	150	$8.05 \times 10^4$	$6.99 \times 10^2$
	⑤	$6.78 \times 10^2$	170	$1.15 \times 10^5$	$1.00 \times 10^3$
B 一迫軽石層 下山里火砕流	①	$5.79 \times 10^2$	20	$1.16 \times 10^4$	$1.01 \times 10^2$
	②	$1.57 \times 10^3$	20	$3.15 \times 10^4$	$2.73 \times 10^2$
	③	$3.06 \times 10^3$	20	$6.12 \times 10^4$	$5.32 \times 10^2$
	④	$5.37 \times 10^2$	150	$8.05 \times 10^4$	$6.99 \times 10^2$
	⑤	$6.78 \times 10^2$	170	$1.15 \times 10^5$	$1.00 \times 10^3$

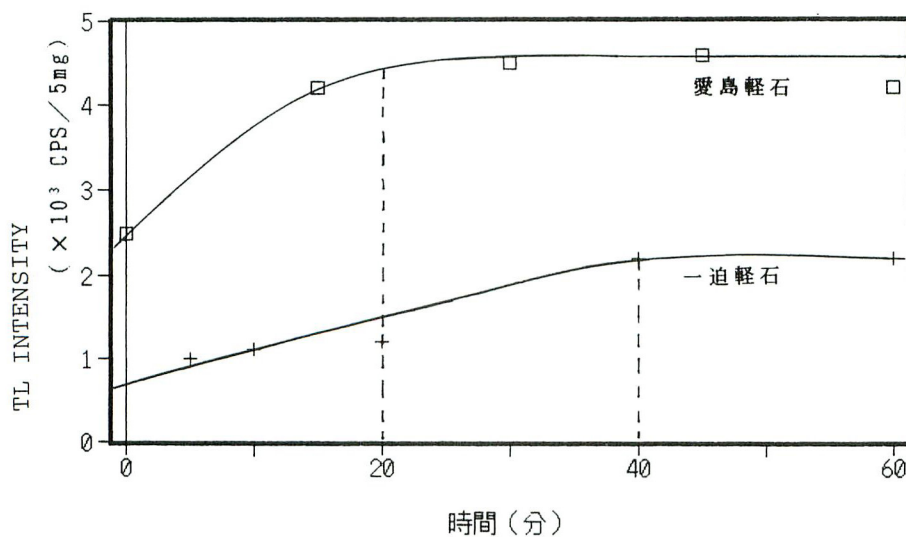


図 4 フッ化水素酸エッチング処理でのエッチング時間に伴う TL 強度の変化

Fig. 4 Changes of TL intensities as a function of etching time with HF solution.

間決定には図4のように天然試料32~60 meshの TL 強度が一定になるまでの時間を試料ごとに調べ、付加線量測定に使用した。

### 3. 結果と考察

#### 3. 1. 粒度差による天然グローカーブの比較

石英粒子を多く含有する愛島、岩出山軽石の二種について行った。32 mesh よりも大きな粒子群では TL グローカーブ測定装置の構造上、大きすぎてヒーター上に完全に乗らないため、石英乳鉢で32~60 mesh に細粒化し測定試料とした。また TL グローカーブ測定は光電子増倍管に R-649, フィルターには赤外線カットフィルターのみを用い全 TL 量を測定した。

表2にまとめた値から、32 mesh よりも小さい石英粒子は愛島、岩出山軽石共にその粒度

に依存せずほぼ一定強度のピークを示したが、愛島軽石の32 mesh よりも大きい粒子はピーク強度がほぼ半分近く、天然で蓄積した線量が少ない事がわかる。この事は付加線量法で測定した天然蓄積線量からも確かめられた。これは石英乳鉢で細粒化した際の磨砕の影響とか、外部由来のβ線が石英粒子内に捕捉電子-正孔対を生ずる際、大径の粒子ほど内部までエネルギーが届かずトラップ電子密度が中心部で少なくなるためと考えた。

以上の結果から最も多く含有されていた32~60 mesh の粒度群の石英粒子試料を以後使用することにした。

#### 3. 2. 異なる測定波長領域での TL グローカーブ変化

図5-a, bに示すように、γ線を9.50 kGy人工照射した愛島及び岩出山軽石層の石英粒子のIMUC測定による三次元スペクトルの結果から、TL発光領域はいずれも赤色領域である事を確認出来る (Hashimoto et al., 1986b)。いずれも620 nm 付近にピークを有し、550~700 nm 領域に入る赤色域 TL 発光のみを示しており、250℃ 近傍から発光を始め320℃ にピークを有する単一ピークより成る山の形で TL スペクトル特性が観察される。すなわち青色域としての400~550 nm 領域には殆んど TL 発光が見られないことは明白である。天然および人工照射後の TL CI から、いずれの試料において

表2 TL強度の粒度依存性変化

試料：愛島軽石層 (Natural total-TL)

Table 2 Dependence of TL intensities on grain size of quartz.

Sample quartz was extracted from Medeshima pumice flow and natural TL intensities were presented.

粒度 (mesh)	Total counts ( $\times 10^3$ )
~32	111 ± 4.4
32~60	217 ± 4.5
60~100	269 ± 14.6
100~200	213 ± 36.2

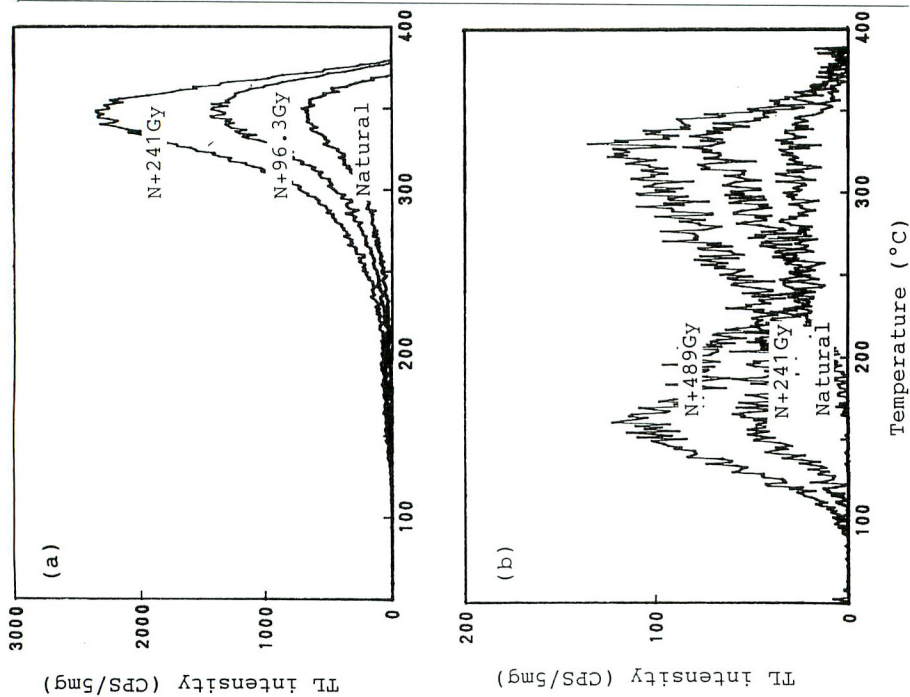


図6 岩出山軽石層より抽出した石英粒子の $\gamma$ 線照射によるグロウカーブの変化

(a) 赤色域測定, (b) 青色域測定

Fig. 6 Variations of glow-curves from quartz grains extracted from Iwadeyama pumice flow accompanying with irradiation of artificial  $\gamma$ -ray.

(a) Red-TL measurement, (b) Blue-TL measurement.

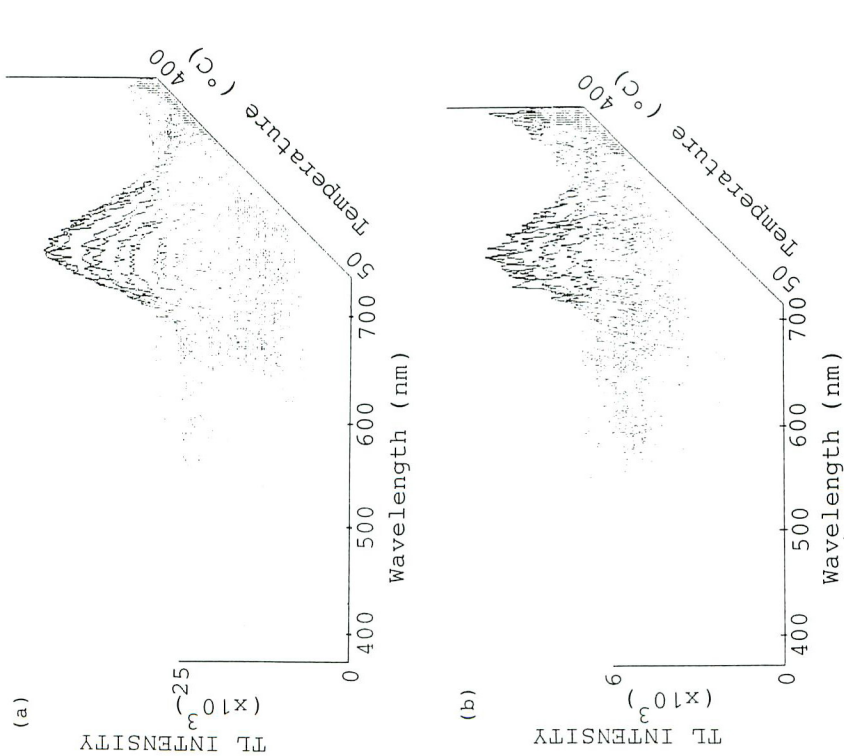


図5 微弱光瞬間分光(IMUC)システムによる天然石英粒子からの三次元スペクトル  
(a) 愛島軽石層, (b) 岩出山軽石層より抽出した石英 $^{60}\text{Co}$   $\gamma$ 線 9.50 kGy 照射後測定

Fig. 5 3-dimensional spectra of TL from natural quartz grains using an intensified multichannel photospectrometer (IMUC) system.  
Quartzes were extracted from (a) Medeshima pumice flow, (b) Iwadeyama pumice flow. Samples were measured after irradiation of  $\gamma$ -ray from  $^{60}\text{Co}$  to total dose of 9.50 kGy.

も強い赤色域 TL を確認出来たが、人工照射の岩出山軽石層からは部分的に青色発光を示す粒子が見られた。火山噴出物起源の石英粒子は例外なく赤色域 TL であるという我々の従来の結果 (Hashimoto et al., 1986a, 1987) から判断すると、この結果は火山噴出の際に深成岩起源の石英粒子 (低温型) の混入、及びそれらへの人工照射による青色発光があったと考えられる。

全ての試料から抽出した石英粒子につき、天然蓄積線量を既知線量の照射による TL の増加分をもとにして求める付加線量法にて求めた。

岩出山軽石試料に既知線量照射した時の赤色域及び青色域での TL グローカーブの増大の様子を重ねた形でそれぞれ図 6-a, b に示す。全試料において、赤色のピークの位置としては、340°C 付近に大きなピークが 170°C 付近のわずかなピークとともに観察され、ピーク高の比は前者が後者の数十～数百倍であった。また各試料の青色のピーク位置としては、赤色同様に 340°C と、照射により著しく増加する 170°C の二ヶ所に目立って現れたが、これら以外にわずかながら 220°C 付近にも観察され、特に下山里火砕流においてこのピークが顕著に現れた。

検出効率の差はあるものの 340°C 付近のピーク強度を比較すると、赤色域 TL のピークは常に青色域 TL ピークの 20 倍近い強度を示した。この結果も軽石層中の石英は赤色域 TL である事を裏づけている。人工照射による TL 増加分も赤色域測定のもの顕著であり、計測値をもとに評価する統計的変動からも赤色域測定結果が有利であることは明白である。赤色域 TL グローピークは主として高温側ピークのみが顕著に成長するのに比して、青色域 TL には 170°C 付近の低温側ピークの成長が高温側ピークとともに見られ、低温側ピークの方が線量応答性が高い傾向にある。このことは赤色域 TL 石英粒子には主に深い捕捉電子が関与しており、一方青色域 TL 石英粒子には浅い捕捉電子位置も比較的多く関与していることを示している。

340°C 付近のピークは 100 万年以上も安定な捕捉電子由来のものであることが理論的に得られているので、これらの結果を総合的に考慮して赤色域 TL 測定の方が、従来法の青色域 TL 測定よりも当面している旧石器関連地層年代評価にとって有効であると判断した (Hashimoto et al., 1987)。

付加線量法による天然蓄積線量の見積りのため、天然試料と共に、 $\gamma$  線を既知線量照射した試料からの TL を測定した。それらグローカーブの増加率が線量に対して一定となる範囲を求めるため 10°C

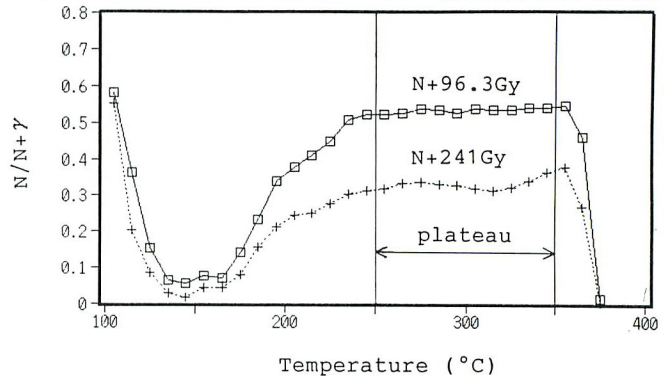


図 7 岩出山軽石層から抽出した石英粒子の赤色域 TL 測定でのプラトーテスト

N と N+ $\gamma$  はそれぞれ天然と天然プラス人工照射による TL 強度を示し、10°C 間隔で積算している。

Fig. 7 Plateau test for quartz grains extracted from Iwadeyama pumice flow using red-TL measurement.

N and N+ $\gamma$  in ordinate are natural TL intensities and artificially enhanced TL-ones added on natural ones in every 10°C intervals, respectively.

ごとに TL 強度を積算し、天然グローカーブの値を既知線量照射した試料からのグローカーブの値で割った数値を縦軸にとり、横軸を温度としたグラフ（プラトー曲線）を図 7 に示す。この図は岩出山軽石層中、石英からの赤色域 TL 測定で得た結果である。この図でプラトーとなっている温度領域は、既知線量付加された試料のグローカーブの増大が、天然の TL 強度に対して比例している温度範囲を表すことになる。岩出山軽石試料においては赤色域 TL での計数率が高いことから、赤色域 TL 測定結果の方がプラトー域の乱れが青色域 TL からのものに比較して少なく、またプラトー幅も青色域 TL より広いことがわかった。青色域 TL 測定のプラトーは、天然グローカーブ値が低いこともあり複雑な谷型となっており、完全なプラトー領域を見出すのは困難であった。この事は他の試料においてもほぼ同様な傾向を示した。しかし大まかにはこれらのプラトー温度領域は赤色域 TL、青色域 TL 共に高温部ピークの立ち上がり部分から始まり、350℃ 以上で黒体放射による影響を大きく受けていることから、赤色域 TL のプラトー領域である 250~350℃ を青色域 TL にも適用し、各付加線量に対する TL 積算値を次の手順に従って計算した。

プラトーテストによって求められた温度領域の TL 発光強度をマイクロコンピュータで単純に加算し縦軸に、その時の照射線量を横軸にとり、プロットした結果を図 8 - a, b に示す。赤色域 TL 測定結果からの TL 強度が青色域 TL のものに比較して、縦軸目盛りからわかるように約 30 倍多くなっているのが特徴的である。各データ点は天然試料を 10~20 回、照射試料を 5~10 回測定して平均値をプロットしてある。これらの実験データをもとに、天然蓄積線量を見積るため最小二乗法によるフィッティングを行った。この際天然試料からの TL 発光量は、他よりも 2~3 倍の重みをつけた評価をした。このようにして得た直線を外挿して X 軸と交わった値の絶対値が、その試料の天然蓄積線量として見積られる。今回、各々の TL 測定からのデータ点では再現性良い値が得られたことから誤差は無視できた。また、アニールした後  $^{60}\text{CO}$  の  $\gamma$  線を人工照射した試料

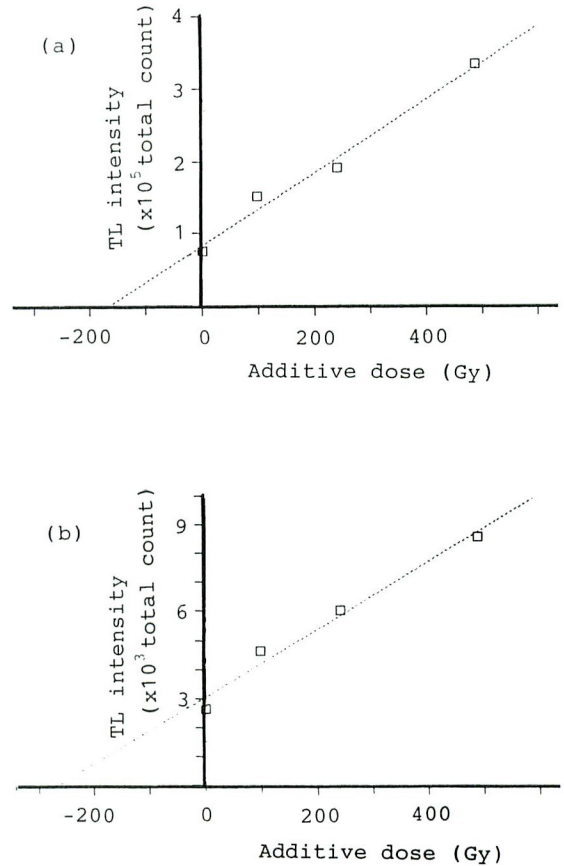


図 8 岩出山軽石層より抽出した石英粒子のプラトー域での TL 強度の線量応答性  
 (a) 赤色域 TL 測定, (b) 青色域 TL 測定  
 Fig. 8 Response of TL intensities within plateau region to additive dose. The quartz grains were extracted from Iwadeyama pumice flow.  
 (a) Red-TL measurement, (b) Blue-TL measurement.  
 Each plateau region was fixed to 250~350℃.



の TL を測定したところ、低線量でのスプラーリニアリティは殆んど見られなかった。これらの結果をもとに、赤色、青色 TL 測定領域においてそれぞれ試料毎に付加線量法を適用し試料の天然蓄積線量を見積った。得られた結果を表 3 に示す。表 3 からわかるように、岩出山軽石層の赤色域 TL からの天然蓄積線量 164Gy は、青色域 TL からの値 264Gy よりも小さな値を与えている。他の地層試料についても赤色、青色域 TL 測定による天然蓄積線量は共に層序の順で大きくなっているが、同一試料を比較すると明らかに赤色域 TL での値は青色域 TL の値よりも小さな値を示している。図 5-a, b からわかるように、TL 強度の山部分が赤色領域にあるので青色域 TL ではその山のすそを測定する事になり、強度が弱い上、ごく一部の青色域 TL 特性を有する混入粒子に左右される。青色域 TL 測定では S/N 比が悪くなっており、良好な結果を与えないことがわかった。

一方、赤色域 TL による値は高い計測値を示すため、データ自身からの誤差が少なく、青色域 TL 測定に比較して S/N 比は明らかに大きかった。赤色フィルターによる測定では青色領域はカットされるため、深成岩起源の青色域 TL 石英粒子の混入とか、微量でも強い青色域 TL を有するジルコン (Amin and Durrani, 1985) や長石 (Speit and Lehmann, 1982) の混入による信頼性の低下などの欠点は全て除去できる。ゆえに全波長域の TL 測定と比較しても赤色域 TL 測定はより信頼性が高いと考えられた。よって天然蓄積線量の見積りには、青色域 TL よりも赤色域 TL を用いる方が適切であると結論した。

火山噴出物起源の地層以外でも、土器などの人工的な熱処理が加わったものにも赤色域 TL 石英粒子が含まれている可能性が高く、これを用いる方が従来の青色域 TL 年代測定より信頼性は高いと予想できる。

### 3. 3. TL 年代評価

表 3 に示すように天然蓄積線量値はいずれも赤色域 TL 測定からのものが青色域 TL 測定からの結果よりも少なくなっており、赤色域 TL 測定からのものが計数値が高いため付随する誤差も少なくなっている。それに対し青色域 TL 測定では前述のような汚染物の混入などがあつた場合、信頼性が乏しくなる。そこで赤色域 TL からの蓄積線量を火山噴出地層の堆積以来のものとしてここでは評価した。この赤色域 TL からの天然蓄積線量をもとに TL 年代値を次式に代入して求めた。

$$\text{年代値 (year)} = \text{天然蓄積線量 (Gy)} / \text{年間線量率 (Gy/year)}$$

年間線量率の値としてはすでに市川 (1986) がこの研究で用いたものと同じ地層について TLD を使用して求めており、表 3 に引用したそれらの値を使用して年代値を算出した。以上の実験過程を終えて得られた各地層の評価年代値を、文献 (東北歴史資料館, 1988) からの年代値と共に表 4 にまとめた。年代値の誤差は線量応答関係でのフィッティングの誤差や、計数値 (ピークでの値) の標準誤差を含めた形で評価した。

愛島軽石層を除いて、一迫や岩出山軽石層、下山里火砕流では明らかに文献からの年代値と違っている。今回の評価年代値は、全体的に市川らの値と比較して若い値となっている事がわかる。これは

表3 赤および青色域 TL 測定による天然蓄積線量と年間線量率

Table 3 Paleodose values evaluated by means of red and blue-TL measurements and cited annual doses.

試料	天然蓄積線量 (Gy)		年間線量率 (mGy/a)
	赤色域 TL	青色域 TL	
愛島軽石層	110 ± 4	136 ± 22	*1.65
一迫軽石層	134 ± 6	190 ± 27	*1.55
岩出山軽石層	164 ± 13	264 ± 50	*1.60
下山里火砕流	359 ± 26	427 ± 61	*2.10

年間線量率として次のデータを使用 ※市川・佐藤・興水 (1986)  
\*市川 (1986)

表4 赤色域 TL 測定による評価年代値

Table 4 Ages of prehistoric sites (strata) evaluated from red-TL measurements.

試料	評価年代値 (Ka)	文献の年代値 (Ka)
愛島軽石層	67 ± 2	*64.2
一迫軽石層	86 ± 4	*124.0
岩出山軽石層	103 ± 8	*191.8
下山里火砕流	171 ± 12	*88.6~238.0

文献の年代値は次の文献より引用 ※市川・佐藤・興水 (1986)  
\*市川 (1986)

前述のように市川らの TL 年代測定法が主として青色域を測定対象としており、結果として赤色域 TL 測定よりも高めの天然蓄積線量が得られ、従って年代値として古い年代を与えたと解釈できる。

ここで測定した地層試料の年代は、旧石器としては我が国での最古の段階に属しており、他の測定法とのクロスチェックも待たれる。しかしながら本邦のような多雨地帯では  $^{14}\text{C}$  年代測定法には常に汚染の問題が付随しており、3 万年以上古い試料に対して加速器質量分析法を適用しても信頼性の高い年代評価は困難であるように思われる。また炭素質物質自身が関連地層から得られない場合が多い。3 万年から20万年の間の年代評価として TL や ESR 法が有望視されており、この観点から我々は TL

年代測定法の信頼性向上に努めており、近年少なからず改善法を提案してきた。その結果として、ここで提案した赤色域 TL から求めた年代値は、TL の発光特性に基づく測定を基礎としているためより信頼性が高く、馬場壇 A 遺跡の最下層（20層）の年代は10万年程度であると我々は結論した。すなわち一迫軽石層のほぼ真下が馬場壇遺跡20層に属しており、この層は岩出山軽石層の上に位置する。従って馬場壇遺跡の最下部は、岩出山軽石層で得られた年代値約10万年より若い10万年程度という結果となり、これまでの評価年代値のほぼ半分までに若い値を与えている。他の地層試料も中期から後期更新世に位置しており、いずれも日本の旧石器の年代値は、これまで提出されていた値（市川、1986）よりも新しいという結果をこの実験で得た。

これまで報告されてきた石英粒子による TL 年代値の殆んどは、特殊な場合を除いては発光波長の検定を行っておらず、青色域 TL 測定を行って得た蓄積線量を基にしているものが多い。従って信頼性の高い TL 年代測定法のためには、ここで述べて来たように波長域を調べての再測定、再検討が必要だと考えている。特に、考古学上貴重な旧石器関連地層や土器類では TL 年代測定が最適の年代測定法であり、ここで提起した方法はもとより、評価年代値の誤差に大きく寄与する年間線量率の測定をも含めて、方法論から再検討するのも重要であると考えている。

#### 4. まとめ

軽石など火山噴出物堆積層中の石英粒子の殆んどは赤色域 TL の性質を有するため、含有石英粒子を用いた TL 年代測定には赤色域 TL を用いる方が妥当と考えた。そこで赤色域 TL 年代値見積り法を火山噴出物起源より成る旧石器関連地層に適用したところ、いずれも従来の青色域 TL 測定結果より若い側の年代値となった。特に我が国で一番古い旧石器遺跡の一つと考えられている馬場壇 A 遺跡 20層は10万年程度の年代値を与えた。

これまで報告されてきた石英粒子を使った TL 年代値のいくつかは、必ずしも発光波長と適合していなかった恐れもあり、特に著しい赤色発光を示す火山噴出物起源の石英粗粒子法に対しては信頼性が乏しい可能性がある。今後は他の年代測定法とのクロスチェックとともに、TL 波長域を確認した上での TL 測定が、TL 年代測定法の信頼性を確立するために必要であろう。

#### 謝 辞

試料採取の際、多大なる御助力、御助言を下された東北大学の吉原賢二先生、山田しょう先生および佐久間光平先生に、また  $\gamma$  線照射の際協力して下さった京都大学原子炉の藁科哲男博士および松下録治氏に深く感謝致します。

#### 参 考 文 献

市川米太(1986) 4, 馬場壇 A 遺跡関連の TL 年代. 東北歴史資料館 石器文化談話会(編) 馬場壇

A遺跡 I 131-132.

市川米太・佐藤高晴・興水遼司(1986) 東北大学埋蔵文化財調査委員会(編) 東北大学埋蔵文化財調査年報 2. 127-133.

市川米太・平賀章三(1988) 熱ルミネッセンス法. 地質学編集 2号 29, 73-82.

興水遼司(1986) 5, 馬場壇A遺跡の火山灰のフィッシュン・トラック年代. 東北歴史資料館 石器文化談話会(編) 馬場壇A遺跡 I, 133-138.

早田 勉(1989) テフクロロジーによる前期旧石器時代遺物包含地層の検討—仙台平野北部の遺跡を中心に—第四紀研究. 28, 269-282.

東北歴史資料館・石器文化談話会(1988) 馬場壇A遺跡II—前期旧石器時代の研究—, 102-103.

橋本哲夫・葉葺久尚・田辺和泉・坂井 正・高橋 敏(1989) 石英粒子から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, 35-43.

橋本哲夫, 坂井 正(1990 a) パソコンを用いた位相制御に基づく温度制御. JAPC 12, 105-113.

橋本哲夫・久保田知明・坂井 正(1990 b) 青と赤色熱蛍光特性を有する天然石英からの ESR. 地球 12, 80-84.

Amin Y. M., and Durrani S. A., Spectral study of TL from natural zircon. Nucl. Tracks Radiat. Meas., 10, 55 - 60.

Hashimoto T., Yokosaka K. and 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. and Sotobayashi T., (1986b) Thermoluminescence color images from quartzes of beach sand. Geochem. J., 20, 111 - 118.

Hashimoto T., Koyanagi A., Takahashi K., Kimura K. and Hayashi Y., (1986c) A computer controlled thermoluminescence reader with a ceramic heating plate. J. Radioanal. Nucl. Chem., 102, 445 - 464.

Hashimoto T., Yokosaka K. and 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. and Hayashi Y., (1989) Provenance search of dune sand using thermoluminescence color images (TLCIs) from quartz grains. Nucl. Tracks Radiat. Meas., 16, 3 - 10.

Speit B. and Lehmann G., (1982) Radiation defects in feldspars. Phys. Chem. Minerals, 8, 77 - 82.

**Age determination of pre-historical sites in Japan using red-  
thermoluminescence measurements from quartz grains**

Tetsuo HASHIMOTO, Motoshi KOJIMA and Tadashi SAKAI

Department of Chemistry, Faculty of Science, Niigata University, Niigata 950-21, Japan

The red-TL (thermoluminescence) property from volcanically originated quartz grains was developed for thermoluminescence dating of sites related to pre-historical stone tools on the basis of following reasons ; (1) invariable appearance of red colour on three-dimension glow curves and TL colour photo-graphs from irradiated quartz grains, (2) long-life of the corresponding deep trapped electrons concerned with TL-glow peaks at higher temperature, and (3) the linear TL-response over widely absorbed doses in comparison with blue-TL ones.

For the evaluation of paleodose using an additive dose method, some portions of quartz grains (32-60 mesh), which were collected from some pre-historically significant strata or sites in the north-west Japan, were subjected to artificial irradiation with known doses from  $^{60}\text{Co}$ -gamma source and induced TL-intensities were measured with a TL-measuring apparatus installed with red or blue filter. The natural red-TL intensities in all quartz grains showed unexceptionally stronger intensities than those of blue-TL as well as the induced TL-emission. The paleodoses evaluated from plateau regions were resulted in as follows ; the red-TL paleodose values from all concerned strata were fairly smaller than the blue-TL ones which imply to contain some contaminant TL minerals. As the results, the reliable red-TL age of Iwadeyama pumice flow, which forms just an underlayer of so far one (20th Zazaragi layer) of oldest pre-historical sites in Japan, was determined to be 103 ka, although the previously determined age has been given to be 192 ka due to blue-TL measurements in the quartz inclusion method. The finally evaluated ages using red-TL of strata related to the present stone tools were dated to be around 45-200 ka BP.