

シンポジウム

(2) 熱ルミネッセンス法の試料

奈良教育大学 市川 米太

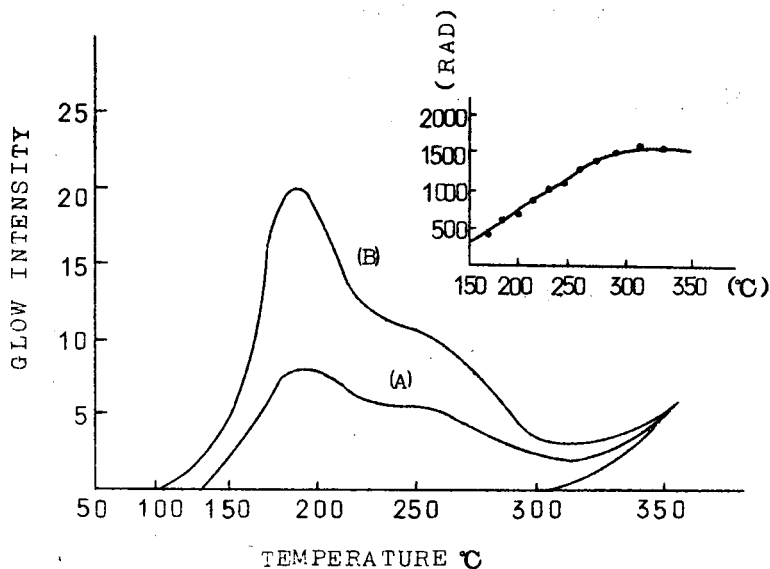
自然界にある大部分の鉱物は種々の刺激を受けて、温度輻射以外の機構によって500℃以下の温度で可視領域の光を発輝する。このように、物質が加熱されたとき白熱する以前に燐光を放出する現象が熱ルミネッセンスである。熱ルミネッセンスをおこす原因にはいろいろあるが、この中で放射線の刺激エネルギーの一部が物質中に蓄積され、そのエネルギーが加熱によって解放されて光の形で放出される現象が放射熱ルミネッセンスである。

熱ルミネッセンス法はこの現象を利用した年代測定法である。土器中の結晶は土器が焼成されたときにそれまでたまっていた燐光の原因である捕捉電子をことごとく放出して、熱発光的に零になる。従って土器中の結晶を加熱することによって得られる熱発光量は土器が作られてから現在にいたるまでの胎土中又は周辺の放射線の効果によるものである。

それであるから熱発光量から土器の受けた放射線量を測定し、又胎土中及び周辺の放射線の年間線量を測定すれば焼成時以来の年代を求めることができるのである。試料として使用する物質は土器中の鉱物であるが、その構成は白色鉱物、有色鉱物、粘土鉱物からなっている。この中で放射線熱ルミネッセンスに対する感受性の最も良いもの、すなわち最も良く光る鉱物は石英・長石を主成分とする白色鉱物であることがわれわれの研究によって明らかにされた。現在、熱ルミネッセンス法では一般に土器中の白色鉱物を取り出して試料とされている。以上述べた事項を考慮に入れてこの方法に有利な試料とはどんなものであるか、又試料採取にあたっての注意すべき点などについて述べる。

1. 熱履歴

土器の受けた放射線量を評価するには、これに比例する熱発光量を測定しなければならない。熱発光量の測定は普通燐光強度を温度の函数として示す熱発光曲線を使用する。その一例を第一図に示す。Aの曲線は土器中の白色鉱物を加熱することによって得られたものである。Bは白色鉱物に1000Rを照射した後に加熱して得られたものである。この両者の比較において、180℃の



第一図 Glow curves for Gua Orang 60

(A). Natural glow curve.

(B). TL induced by 1000R of Co-60.

山は、この山に寄与する捕捉電子の寿命が短く減衰しているが、280℃以上の高温部においては捕捉電子の寿命が測定しようとする年代に比して充分長いことを示している。従って280℃以上の部分の熱発光量から試料の吸収線量を求めることができる。

火事などによって土器が200℃以上の温度まで加熱されている場合は、高温部分の熱発光曲線の減衰が考えられるので、そのような試料から求めた年代は実年代より若いことになる。又土器が食物を煮るために使われていた場合は最終使用の時点からの年代を示すことになるであろう。

2. 土器の鉱物組成

前述したように、熱発光量を測定するには放射熱ルミネッセンスに対する感受性の良い白色鉱物を利用することが有利である。試料調整法としては、土器の表面層を取り除き、内部の層を万力及びメノウの乳鉢で粉碎して100メッシュ以上の粒子をふるい出す。これを水洗、アルコール洗した後電磁分離機によって白色鉱物と有色鉱物に分けるのである。

従って100メッシュ(0.25mm)以上の白色鉱物を含んでいる土器が試料として望ましい。

日本の土器については、縄文・弥生・土師の土器は一般に大きな白色鉱物を含んでるが、須恵器は粘土成分が多く、高温で焼成されているので試料調整にロスが多く多量の試料が必要である。

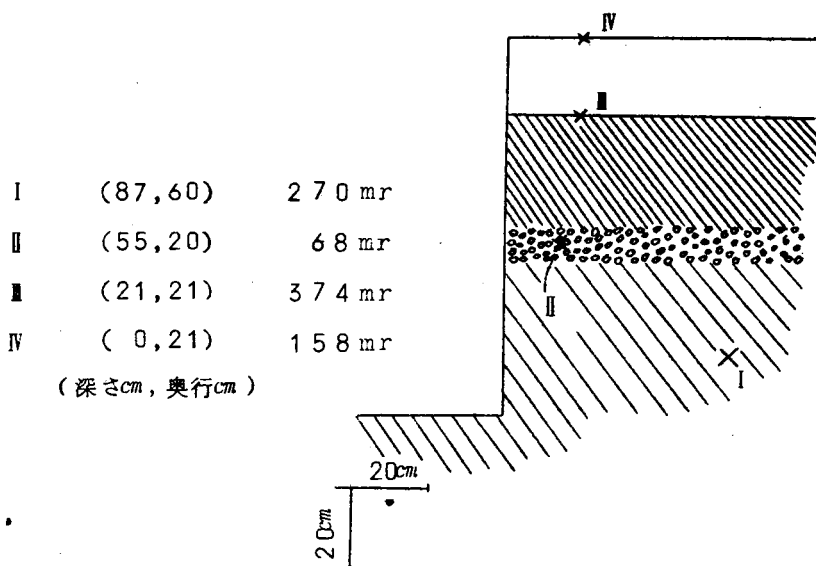
3. 土器の厚さ

試料調整にあたって、表面層はそれぞれ各2 mm 程度の部分は取り除かれる。これは、第一に太陽光や照明燈の光などに曝されると、このために捕捉電子が減衰することが考えられるからである。又、第二に土器が埋められているとき、地下水などで洗われている状態にあり、このとき地下水中に含まれているウラン、トリウムなどの放射性物質が表面に吸着される可能性がある。この結果土器中の放射能の強さは表面と内部で異なった値を持つことになる。実際に縄文土器について、 $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ を使用して表面と内部の年間線量を測定した結果は両者に差のあることを示した。以上の理由で土器の表面層は各々2 mm 程度剥脱してから試料調整をしなければならないので厚さの薄い土器では困難であり、8 mm 以上の厚さのあることが望ましい。

4. 周辺の土

現在、熱ルミネッセンス法には二つの方法がある。第一は試料として150 μ 以上の大きな鉱物粒子を選び出して使用する方法であり、第二は5 μ 以下の細い粒子を試料として使用する方法である。後者の細粒子法では試料に及ぼす放射線作用の大部分は土器の胎土中に含まれているウラン、トリウムからの α 線によるものと考え、周辺からの放射線の影響を無視して年間線量を評価する。これに対して、前者の粗粒子法では α 線の飛程の短いことを考慮して、大きな試料に効果的な放射線は β 線と γ 線であると考え、 α 線を無視して年間線量を評価する。従って、粗粒子法においては周辺の土からくる γ 線を無視することはできず、周辺の土の放射能の強さを測定しなければならない。両者の方法は一長一短を有しどちらが年代測定法として優れているかは現在の段階では判断できない。我々が今採用している方法は粗粒子法であり土器が埋っていた周辺の土の放射能の強さを測定する必要がある。周辺の土が石灰岩や砂である場合は放射能は弱く一様であるから問題は比較的簡単である。しかし、その他の場合は同じ場所から出土した土器であっても層位によって周辺の土からの放射能の強さが異なる場合が起ってくる。その一例として飛鳥寺遺跡の土中における γ 線量の分布を第二図に示す。

図のⅠは基盤、Ⅱは砂利の層、Ⅲは耕土の下部、Ⅳは田圃である。この例は最も複雑な地層の場合を示すものであるが、年間線量は68 mR から374 mR にわたって変化している。このような地層から出土した土器については現地周辺土の放射能の強さを測定する必要がある。



第二図 飛鳥遺跡の土中線量分布

5. 土器の個数

熱ルミネッセンス法で土器を使用する場合、土器が粘土、無色鉱物、有色鉱物などの複雑な成分によって構成されていることが常に問題となる。この材料の不均一性は発光物質の不均一性であり、放射線源の不均一性を惹起する。このことから起る誤差をできるだけ縮めるためには同一箇所から出土した土器5個程度について夫々年代を測定し、その平均値を求める必要がある。

以上述べたように熱ルミネッセンス法にとって望ましい試料としては、

1. 200℃以上に加熱されたことがないもの。
2. 0.15mm以上の無色鉱物を多く含んでいるもの。
3. 土器の厚さが8mm以上あるもの。
4. 周辺の土の放射能の強さが測定できるものか又は砂や石灰岩中に埋っていたもの。
5. 個数は5個以上あること。

の五つの条件を充たすものであることと結論できる。

〔 質 疑 応 答 〕

(問) 須恵器や瓦が試料としてあまり良いものではないということであるが、一次粘土の源はやはり長石や石英なのだが。

(答) 我々の方法は、粗粒子法である。この方法の成り立つ条件は、長石や石英の粒が粗くて、その粒の周りにつまっている粘土などから出る α 線は、粒のほんの表面で止ってしまう(数ミクロンで)ので、熱ルミネッセンス信号の源として α 線は無視してよいということである。だから、粗い粒子の入っていない須恵器などは不利になる。

(問) かまの焼土は土器より以上に Polous だが、試料として使えるか。

(答) その中に石英、長石の粒が入ってさえいれば、選り出して使える。

(問) 長石だけを釉薬に使った土器があるが試料になるか。

(答) 土器の表面は光の影響をうけて、蓄積されていた捕捉電子がなくなっていくという現象 (Optical Bleaching) がある。さらに、表面からすこしの間は、受ける放射線量が急激に変化することがたしかめられている。このため、釉薬試料は好ましくない。

(コメント、浜田) 造礁サンゴの熱ルミネッセンス年代測定を試みたが、サンゴは、加熱すると結晶構造が変化するので、熱ルミネッセンスの機構が複雑であって、実用できない。

(問) 熱ルミネッセンスの光の量は、同じ土器でもその部分によって差があるということの原因は何か。

(答) 粒の周りの粘土に含まれるウランウム、トリウム、カリウムの量が差があるためである。

(問) 微粒子法の方が有用なのではなからうか。微粒子法なら、粘土そのものを用いることができる。

(答) そう断定することはできない。また、微粒子法は、測定操作がたいへん複雑になる。試料一つ一つについて、化学分析、 α 線較正照射が必要になるので、設備も大型になる。

質問者： 鎌木義昌，笹嶋貞雄，檜崎彰一，東村武信，広岡公夫，室賀照子