

プレ・ドース法による土器の
熱ルミネッセンス年代測定
—考古学年代(5~6世紀)との比較—

長友恒人・中川照久・辻本堅二

(奈良教育大学物理教室)

小池 寛

(京都府埋蔵文化財調査研究センター)

(昭和62年4月30日受理)

Thermoluminescence Dating of Ancient Earthenwares by Pre-dose Method

Tsuneto NAGATOMO, Teruhisa NAKAGAWA, Kenji TSUJIMOTO

Department of Physics, Nara University of Education,

Takabatake-cho, Nara 630, Japan

and

Hiroshi KOIKE

The Kyoto Prefecture Research Center for Archaeological Properties,

Terado-cho, Muko, Kyoto Pref. 617, Japan

(Received April 30, 1987)

Abstract

Thermoluminescence (TL) dating by pre-dose method was made for the earthenwares obtained from Shibayama site, in Kyoto prefecture, which consists of several small kofuns (ancient tombs), sheds, ditches and a well from the Kofun to Heian periods.

Pre-dose method was applied to 5 of 7 shards and 4 of them were analyzed by quartz inclusion method. The annual gamma-ray dose rates were estimated, *in situ*, using the TL dosimeters (Matsushita UD-110S) mounted in dosimetry sets with polyethylene and copper tubes. One of the data by pre-dose method were analyzed assuming that the saturation of sensitization in 80°C peak is due to that of hole concentration in hole trap R in Zimmerman's band model.

The results obtained by pre-dose method agreed with archaeological ages as well as the results by quartz inclusion method.

はじめに

熱ルミネッセンス (TL) 年代測定法には、石英粗粒子法 (Fleming: 1970)、微粒子法 (Zimmerman, D. W.: 1971)、プレ・ドース法 (Fleming: 1973) などの方法があるが、日本の土器についての年代測定は石英粗粒子法によって行われてきた (Ichikawa *et al.*: 1978, 1982)。これは、縄文式・弥生式土器や埴輪等日本の古代土器にはこの方法を適用しやすい粗い石英粒子を含むものが多いこと、また石英粒子法では年間吸収線量率の測定が比較的容易であるなどの理由による。また石英粗粒子法はプレ・ドース法と異なり考古学試料では飽和現象を起こすことが少ないのもその理由のひとつにあげられるであろう。

今回、プレ・ドース法を用いて、京都府の芝山遺跡から出土した考古学年代では 1000 年 B. P. を越えるとされる土師器や須恵器の年代測定をした。プレ・ドース法は、石英粗粒子法と同様に粗い石英粒子を使用するので年間吸収線量率決定が容易である。この方法はグローカーブの 80°C (昇温速度 5°C・s⁻¹) ピークの感度に着目するものであり、1500 年前までの試料に対して適用できるとされている (Fleming: 1973)。このピークの感度増加は数 100 Gy の線量を吸収すると頭打ちの飽和現象を示すことが多いので、今回の測定ではデータの解析方法として飽和に対する補正を考慮した。また年間吸収線量率のうちガンマ線量測定には従来用いられていた線量計粉末のかわりにガラスカプセルタイプの線量計素子を使用した。

またプレ・ドース法とともに石英粗粒子法によっても TL 年代測定を行い、考古学年代とも比較することによりプレ・ドース法の有効性を考察した。石英粗粒子法については従来行われてきた方法と同じであるから、以下試料処理や測定法等に関してはプレ・ドース法についてのみ述べる。

遺跡と試料

1) 遺跡の概要

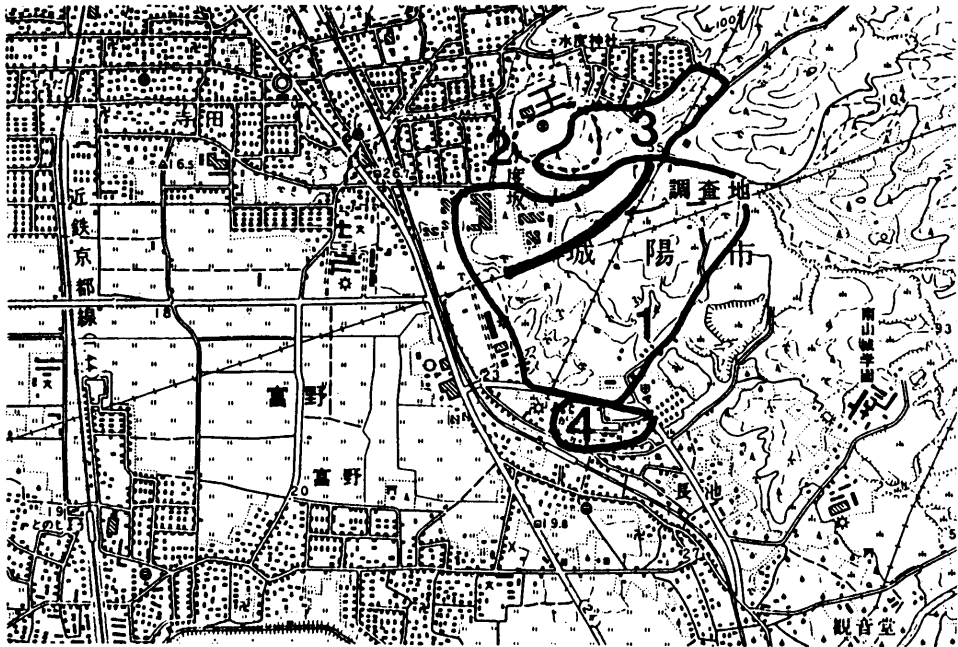
今回年代測定した試料を発掘した芝山遺跡は京都府城陽市寺田南中ノ芝に所在する古墳時代から平安時代にかけての複合遺跡である (小池: 1987)。昭和 52 年、城陽市教育委員会によって考古学的調査が行われ、古墳時代から奈良時代の遺構・遺物が確認されている (第 1 図)。

検出した遺構は、古墳時代の竪穴式住居跡・墳墓、飛鳥時代の竪穴式住居跡・溝、奈良時代の堀立柱建物遺跡等である (第 2 図)。

〈古墳時代〉

住居 4 は、3.5 m × 2.8 m の方形プランを呈する住居跡で床面直上から古式土師器 (甕・高坏・壺・小型丸底土器) と砥石を検出した。古墳時代の竪穴式住居跡は 1 基だけである。

古墳 1・2 は、直径 17 m ~ 20 m の円墳で奈良時代に削平をうけており、墳丘及び埋葬主体部は残存しない。周溝の土層堆積状況や奈良時代の整地層の存在から、所謂、高塚であった可能性が高い。古墳 3・4 は、奈良時代に若干の削平を受けているが、主体部の残存状態は極めて良好で、須恵器 (蓋坏・台付長頸壺・広口壺) 鉄製品 (刀子) が各々から出土している。古墳 5 は、後述する溝 1 以東に位置する一辺 10 m の方形墳である。最北端の周溝には壇上施設を設け供献土器を埋地し、最南端には陸橋状施設を設け墓道を構築している。古墳 6・7 は 4.5 m × 3.1 m



第1図 芝山遺跡の位置図

1. 芝山遺跡 2. 宮ノ平古墳群 3. 宮ノ平遺跡 4. 森山遺跡

の楕円形を呈する小円墳で主体部から須恵器（壺・坏蓋）等が出土している。その他、土壇墓群等がある。古墳3～7は削平を受けているが、主体部の残存は良好であることから低墳丘であった可能性が高い。

〈飛鳥時代〉

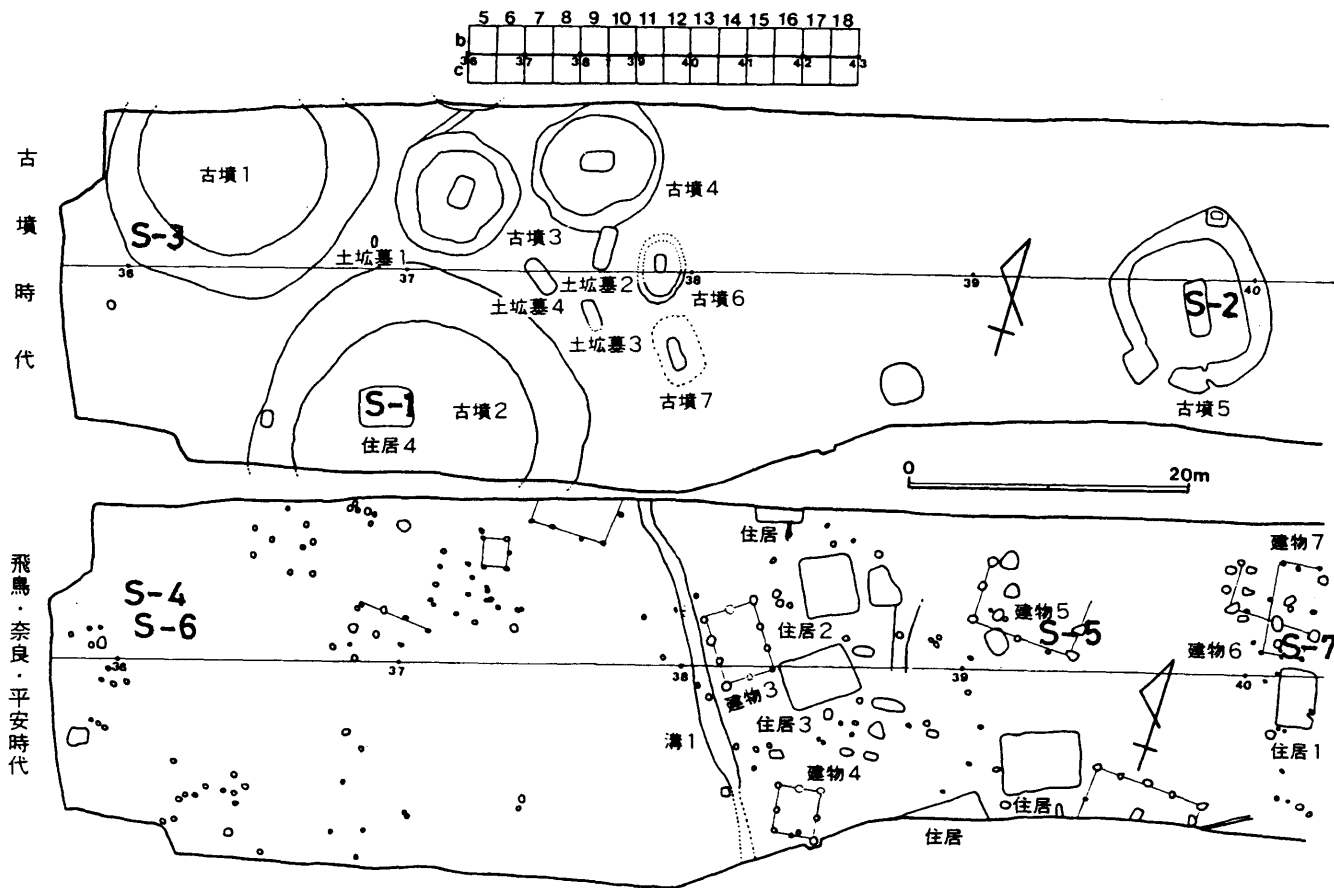
溝一条・竪穴式住居跡6基を検出した。住居3は4m×5mの長方形プランを呈し、床面直上から須恵器（甕・坏）土師器（甕・皿・碗）が出土している。溝1は古墳群（墓域）と住居群（住居域）を区画する意味で重要である。

〈奈良時代〉

おもな検出遺跡は、堀立柱建物跡である。堀立柱建物跡は現在整理中のため軒数・規模等明確ではないが、建物跡の主軸線から3時期に分類できる。基本的には柱穴の直径は40cm程度であるが、一辺1mのほりかたを有するものもある。

2) 測定に供した試料

1)に概説した遺構から出土し、今年代測定に供した試料の概要を第1表に、検出した位置を第2図に示す。試料は量的に十分ではなかったのでプレ・ドース法と石英粗粒子法の両方で測定したのはS-4とS-6の2点であり、特に少量の試料はプレ・ドース法のみにより、いくらか多量のは石英粗粒子法によって年代測定をした。試料S-6は、直径1～5cmの礫を含み竹の根が繁茂して空隙が多数観察された地層の中から検出された。また、S-3はS-6の直下にあつて礫を多数含む地層の中から検出されたものである。



第2図 芝山遺跡の遺構配置図

記号(第1表の試料番号に対応する)は試料が検出された位置を示す。

第1表 年代測定試料

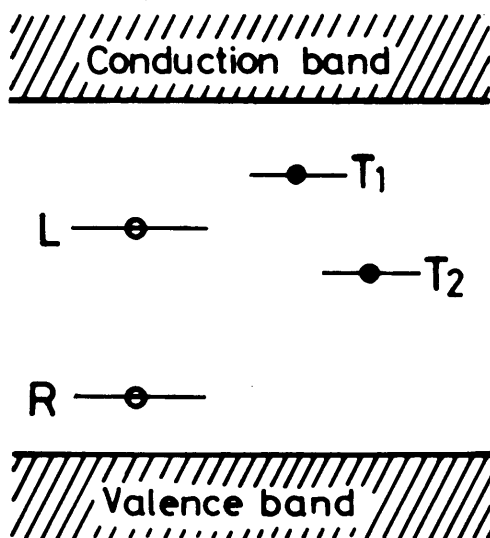
試料番号	種類	器形	年代	検出遺構
S-1	布留式	高杯	古墳時代(5C初)	竪穴式住居4跡
S-2	須恵器	甕	古墳時代後期(5C末)	古墳5主体部
S-3	須恵器	甕	古墳時代(6C初)	古墳1周溝下層
S-4	須恵器	甕	奈良時代(8C)	古墳1周溝上層
S-5	土師器	甕	奈良時代(8C)	建物5の横の溝
S-6	土師器	杯	奈良時代(8C)	古墳1周溝上層
S-7	猿投	壺	平安時代(10C)	建物6の柱穴

測定

1) 試料処理

ブレ・ドース法の試料処理は以下の手順で行った。

- (1) 試料の表面を1~2mm削り取った後、含まれている石英粒子を割ってしまわないように注意して砕く。次に砕いた試料を60~100 mesh (149~250 μ m), 100~200 mesh (74~149 μ m), 200~300 mesh (49~74 μ m) にふるい分ける。
- (2) 60~100 mesh の試料を電磁分離器によって磁性鉱物と非磁性鉱物に分離する。
- (3) 分離した非磁性鉱物を王水処理で表面の汚れや少量混入している有色鉱物を取り除き、水とアセトンで超音波洗浄した後乾燥する。
- (4) 乾燥後の試料は、測定試料として均質にするために縮分器で縮分し、そのうち1つは後述する活性化温度の設定用とし、他は吸収線量測定用と既知線量を照射したのちに測定する試料とする。



第3図 ブレ・ドース現象を説明するバンド・モデル (Zimmerman, J.: 1971 から作図)。

- (5) 測定用に縮分した試料のひとつは、粉末のまま⁶⁰Co ガンマ線の既知線量を照射する。照射した試料を約600°Cまで化学変化を起こさない無機系接着剤(トレニース#3000)で厚さ23.3 mg/cm²の銀プレートに接着する。

2) 活性化温度の設定

石英の80°CピークのTLの感度が増加するのは、第3図のバンドモデルにおいてホールセンターRにあるホールが熱的励起により発光中心Lに移動する(活性化)ことによると説明されている(Zimmerman, J.: 1971)。石英粒子を数100°Cで加熱した後に微量の放射線(テスト・ドース)を照射して昇温すると、過去に吸収した放射線量に依存した発光量が測定される。このときの発光量はテスト・ドースが一定の時、吸収した放射

線量のほか加熱温度にも依存する。このため、各試料について同一の吸収線量に対する発光量が一定となる温度（活性化温度）を予め確かめ、測定時にはこの温度で活性化する。

活性化温度の設定は試料ごとに以下の手順で行った。

- (1) テスト・ドース以外の放射線による 80°C の発光を除去するために、試料を 150°C まで加熱した後、Gd-KX 線によって約 0.01 Gy のテスト・ドースを与え、 $5^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ で昇温して S_0 （テスト・ドースに対する 80°C ピークのレスポンス）を測定する。
- (2) S_0 を測定した試料を N_2 ガス雰囲気中の電気炉に入れ、温度 T で 1 分間保持する。
- (3) 試料に再びテスト・ドースを与え、 S_T （温度 T で活性化された石英のテスト・ドースに対する 80°C ピークのレスポンス）を測定する。

相対感度 S_T/S_0 を 300°C から 500°C までは 50°C ごとに、500°C から 575°C までは 25°C ごとに測定して、 S_T/S_0 が一定となる温度領域を調べた。この温度領域は、感度増加が観察されたすべての試料について 50 ~ 75°C の幅をもち、550°C 付近であったので、今回の測定では活性化温度を 550°C とした。

3) 吸収線量の測定

80°C ピークの感度増加から石英粒子が土器の焼成から測定されるまでに吸収した放射線量（吸収線量）N Gy を知るために以下の手順で測定を行った。

- (1) 活性化温度の設定のときと同じ方法で S_0 を測定する。
- (2) S_0 測定後、 N_2 ガス雰囲気中の電気炉に入れ、550°C で 1 分間活性化する。
- (3) テスト・ドースを与えて、 S_N （吸収線量 N Gy を吸収し、活性化された石英のテスト・ドースに対する 80°C ピークのレスポンス）を測定する。これを S_0 と比較することにより吸収線量 N Gy による 80°C ピークの感度増加を知ることができる。
- (4) ^{60}Co ガンマ線の既知線量 γ Gy を付加した試料についても $S_{N+\gamma}$ を (1) ~ (3) と同様に測定する。

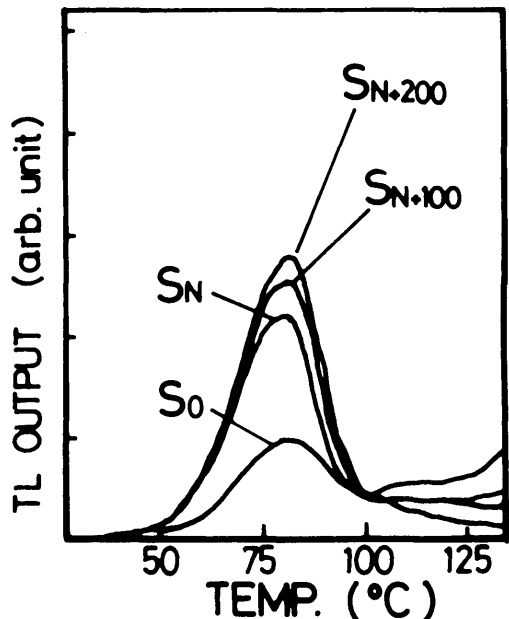
これにより吸収線量と付加線量の和 $N+\gamma$ Gy による 80°C ピークの感度増加が分かる。

第 4 図に試料 S-4 のグローカーブを例として示す。

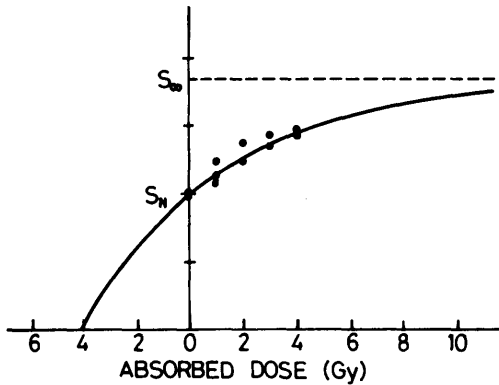
4) データの解析

プレ・ドース法では、吸収線量に対する 80°C ピークの感度増加の飽和が比較的低線量で起こることを考慮してデータの解析をする必要がある。

感度増加が吸収線量に比例する場合は、吸収線量 N Gy による相対感度の増加率 $(S_N/S_0 - 1) / N$ は付加線量 γ Gy を与えた試料の相対感度の増加率 $(S_{N+\gamma}/S_0 - S_N/S_0) / \gamma$ に等しいから、吸収線量 N Gy



第 4 図 試料 S-4 のプレ・ドースピーク。
 S_0 : 活性化前, S_N : 活性化後, S_{N+100} : γ 線 100 rad 照射後活性化, S_{N+200} : γ 線 200 rad 照射後活性化。



第5図 試料S-4のデータ解析.

は $N = \gamma (S_N - S_0) / (S_{N+\gamma} - S_N)$ により簡単に求めることができる。

吸収線量が大きくなるにつれて感度増加が頭打ちしてしまう場合がある (Chen: 1979). この飽和現象がホールセンター R (第3図参照) に捕獲されるホール数の飽和に起因するものと仮定して、測定値を式 $S_{N+\gamma} = S_\infty [1 - \exp\{-\alpha (N+\gamma)\}]$ に最小二乗法によってあてはめることにより、吸収線量 N Gy は、 $N = \{\alpha \ln(1 - S_N / S_\infty)\}^{-1}$ として求めることができる。ここで、 S_∞ は飽和した感度、 α は定数である。(第5図参照)。

今回の測定では、試料S-4についてこの飽和現象を考慮したが、その他の試料については吸収線量に対する感度増加に比例性がみられたので、飽和現象は考慮しなかった。

5) 年間吸収線量率の測定

年間吸収線量率の測定においては、プレ・ドース法では石英粗粒子法と同様にアルファ線の寄与は無視できるものとする。従って、ベータ線とガンマ線の年間吸収線量率のみを測定すればよいが、ベータ線の線量率の測定は従来もちいられてきた方法をそのまま踏襲した (Ichikawa *et al.*: 1982)。

ガンマ線の年間吸収線量率測定には、ガラスカプセルに封入した熱ルミネッセンス線量計素子 (松下 UD 110-S) を使用した。直径 2 mm 長さ 12 mm の線量計素子を厚さ 1 mm のポリエチレンチューブに封入したものを壁厚 1 mm の銅パイプに入れて土器試料が検出された場所に埋め込んだ。これを 79 日後に回収して、そのグローカーブを測定し、0.828 rad の ^{60}Co ガンマ線を照射した線量計素子のグローカーブと比較して年間線量率を求めた。

従来、我々は $\text{CaSO}_4:\text{Tm}$ の粉末をポリエチレンチューブと銅パイプに封入したものをガンマ線量率測定用に使用してきたが、今回用いた方法と従来の方法で測定値の違いは 3% 以下であることが確認されている (長友ほか: 1986)。第2表に年間吸収線量率の測定結果を示す。

結果と考察

測定の結果を第3表に示す。表にはS-1とS-5について石英粗粒子法の結果しかないが、S-1は80°Cピークに感度増加の現象がなかったためであり、S-5については試料の量が十分でなかったので石英粗粒子法のための試料処理のみを行ったことによる。S-2とS-3及びS-7は、S-5よりさらに試料が小さく、十分な量の石英粒子を得られなかったのでプレ・ドース法のみで測定した。結果の誤差が大きいのは、試料が比較的小さかったので、表面の除去を少なくしたこと、粒度を十分に同じになるように揃えることが出来なかったことによると思われる。プレ・ドース法によって測定したS-3とS-5は考古学年代が6C初頭から6C前半(約1430~1490 yB.P.)であるから両者は一致しているとみることができる。またS-7のTL年代も考古学年代とよく一致している。

S-1については、上述のようにプレ・ドース法による測定も試みたが、80°Cピークに感度増加がみられず測定不可能であった。Zimmerman (Zimmerman, J.: 1971)によれば感度増加は熱的活性化によってホールセンターRから発光中心Lへホールが励起されることによるので、活性化温度を800°Cまで試みたが、感度増加は観測されなかった。このことから試料S-1に含まれる石英粒子にはRに相当するホールセンターが存在しないか、あるいはRとLのエネルギー差が大きく800°C以上の活性化温度を必要とするものと考えられる。

プレ・ドース法と石英粗粒子法の測定結果を直接比較できるのはS-4とS-6の2試料である。プレ・ドース法によるTL年代は石英粗粒子法によるそれに比べて、S-4ではより古く、S-6ではより若くなっているが、いずれの結果も測定誤差の範囲で一致している。S-6についてはプレ・ドース法、石英粗粒子法ともTL年代が考古学年代と一致しない。前述のように、この試料が検出された位置は礫が多数あって、竹の根が繁茂していたため、考古学年代とTL年代が一致しない可能性は予想されていた。実際、年間吸収線量率(第2表参照)と考古学年代から推定されるS-6の吸収線量が略4.0~4.5 Gyであるのに対して、測定値はプレ・ドース法、石英粗粒子法ともかなり少ない。またS-3についても考古学年代との一致がよくないが、この試料はS-6の直下にあったものでありS-6と同様に礫が周囲に多数見られた場所である。

以上のことから、プレ・ドース法は石英粗粒子法と同様に古代土器の年代測定に有効であり、特に、土器片が小さく予想される年代が比較的新しい場合にはプレ・ドース法が有用であると考えられる。

第2表 年間吸収線量率

試料	β 線量率 (mGy \cdot y ⁻¹)	γ 線量率 (mGy \cdot y ⁻¹)	年間吸収線量率 (mGy \cdot y ⁻¹)
S-1	2.30 \pm 0.072	1.50 \pm 0.031	3.80 \pm 0.078
S-2	1.75 \pm 0.022	1.14 \pm 0.036	2.89 \pm 0.042
S-3	2.10 \pm 0.095	1.201 \pm 0.126	3.31 \pm 0.158
S-4	2.02 \pm 0.025	0.98 \pm 0.031	3.00 \pm 0.040
S-5	2.40 \pm 0.011	0.99 \pm 0.021	3.39 \pm 0.024
S-6	2.58 \pm 0.081	0.98 \pm 0.031	3.54 \pm 0.087
S-7	2.01 \pm 0.095	1.51 \pm 0.048	3.52 \pm 0.106

第3表 年代測定の結果

試料	測定法 ^{A)}	自然吸収線量 (Gy)	年間吸収線量 (mGy \cdot y ⁻¹)	TL年代 (y B. P.)	考古学年代
S-1	Q. I.	6.18 \pm 0.91	3.80 \pm 0.078	1620 \pm 240	5C初頭
S-2	P. D.	4.35 \pm 0.41	2.89 \pm 0.042	1505 \pm 141	5C末期
S-3	P. D.	4.71 \pm 0.20	3.31 \pm 0.158	1423 \pm 86	6C初頭
S-4	Q. I.	3.94 \pm 0.51	3.00 \pm 0.040	1313 \pm 170	奈良時代
	P. D.	4.11 \pm 0.61		1370 \pm 203	
S-5	Q. I.	4.12 \pm 0.43	3.39 \pm 0.024	1215 \pm 127	奈良時代
S-6	Q. I.	3.06 \pm 0.69	3.54 \pm 0.087	864 \pm 195	奈良時代
	P. D.	2.53 \pm 0.33		728 \pm 93	
S-7	P. D.	3.78 \pm 0.24	3.52 \pm 0.106	1074 \pm 68	10C初頭

A) P. D. はプレ・ドース法による測定、Q. I. は石英粗粒子法による測定である。

謝 辞

本実験に際して無機系接着剤トレニース#3000 を快く提供していただいた東レ工業 K. K. の松村輝一郎氏に謝意を表します。

参考文献

- Chen, R. (1979) Saturation of the 110°C TL peak in quartz and its potential application in the pre-dose technique, *PACT Journal* **3**, 325-335.
- Fleming, S. J. (1970) Thermoluminescent Dating: Refinement of the quartz inclusion method, *Archaeometry* **12-2**, 133-145.
- Fleming, S. J. (1973) The pre-dose technique: A new thermoluminescent dating method, *Archaeometry* **15-1**, 13-30.
- Ichikawa, Y., Nagatomo, T. and Hagihara, N. (1978) Thermoluminescent dating of Jomon pattern pottery from Taishaku valley, *Archaeometry* **20-2**, 171-176.
- Ichikawa, Y., Hagihara, N. and Nagatomo, T. (1982) Dating of pyroclastic flow deposits by means of the quartz inclusion method, *PACT Journal* **6**, 409-416.
- 小池 寛 (1987) 「芝山遺跡発掘調査概報」第 25 冊, 京都府埋蔵文化財調査研究センター。
- 長友恒人, 山本健司 (1986) 熱ルミネッセンス年代測定におけるガンマ線年間線量測定法の簡便化——市販 TLD カプセルを用いる試み——, 奈良教育大学古文化財教育研究報告第 15 号, 31-39.
- Zimmerman, D. W. (1971) Thermoluminescent dating using fine grains from pottery, *Archaeometry* **13**, 29-52.
- Zimmerman, J. (1971) The radiation-induced increase of the 100°C thermoluminescence sensitivity of fired quartz, *J. Phys. C.: Solid St. Phys.* **4**, 3265-3276.