

沢田遺跡竈跡の熱ルミネッセンス年代測定

奈良教育大学 応用物理学教室

長友 恒人

はじめに

竈跡の火床の焼けた砂を試料として、熱ルミネッセンス (TL) 年代測定を行った。TL 年代測定法は焼成または加熱された考古遺物の年代を決定する方法である。測定された結果は過去において最後に加熱された年代を示すので、今回の測定結果は竈の操作が終了した年代を示すことになる。TL 年代測定では土器を試料として測定することが多いが、炉跡の焼土や焼石、遺跡に含まれる火山灰を測定した例もある。

1. 測定の原理

TL 年代測定法は自然界に微量に存在している放射線を測定することによって年代を決定する方法である。以下に、今回の測定に即して TL 年代測定の原理を簡単に述べる。

自然の放射線源

自然界に存在し、TL 年代測定に関係する主な放射線源はウラン (U)、トリウム (Th)、カリウム (K) などの放射性元素である。このうち U には²³⁸U と²³⁵U の 2 種類があり、²³²Th と同じように崩壊して別の放射性元素に変わり続けて、最終的には安定な鉛 (Pb) になる。崩壊の度にアルファ線、ベータ線またはガンマ線を放出する。K の中には⁴⁰K が 0.012% 含まれていて、これがベータ線とガンマ線を放出している。このほか、地球の外から降り注いでいる宇宙線も TL 年代測定に関係する放射線である。(ちなみに、年代測定法としてよく知られている炭素14法では、宇宙線によって生成された放射性元素である¹⁴C から放出されるベータ線を測定して年代を決定する。)

放射線の作用と TL

これらの放射線は砂に吸収されるが、このとき放射線は砂を構成する電子を電子トラップと呼ばれる場所に蓄積される。トラップに蓄積された電子を捕獲電子という。捕獲電子は砂が加熱されたり、日光に曝されたりしない限り、電子トラップに安定して存在するが、一度加熱されるとトラップから飛び出して光を放出する。この光が熱ルミネッセンス (TL) である。竈の火床の砂では、竈の操作の度に加熱されるのでトラップの捕獲電子は不安定であり、安定してトラップに蓄積されるのは、竈の操作が完全に停止してからである。

蓄積線量と年間線量

竈が操業を停止してから発掘後測定までに砂が吸収した放射線量を蓄積線量と呼ぶが、蓄積線量は電子トラップ中の捕獲電子の数に比例する。測定した TL 量は捕獲電子の数に比例するから、結局、蓄積線量は TL 量に比例することになる。このようにして、TL 量を測定することにより蓄積線量を決定することができる。

自然の放射線は何らかの異常がない限り時間的に一定の割合で放出されるので、砂が放射線を吸収する割合も一定である。1 年間に砂が吸収した放射線量を年間線量と称する。年間線量を測定により決定するためには人工的に合成した高感度の TL 線量計素子を用いる。

TL 年代

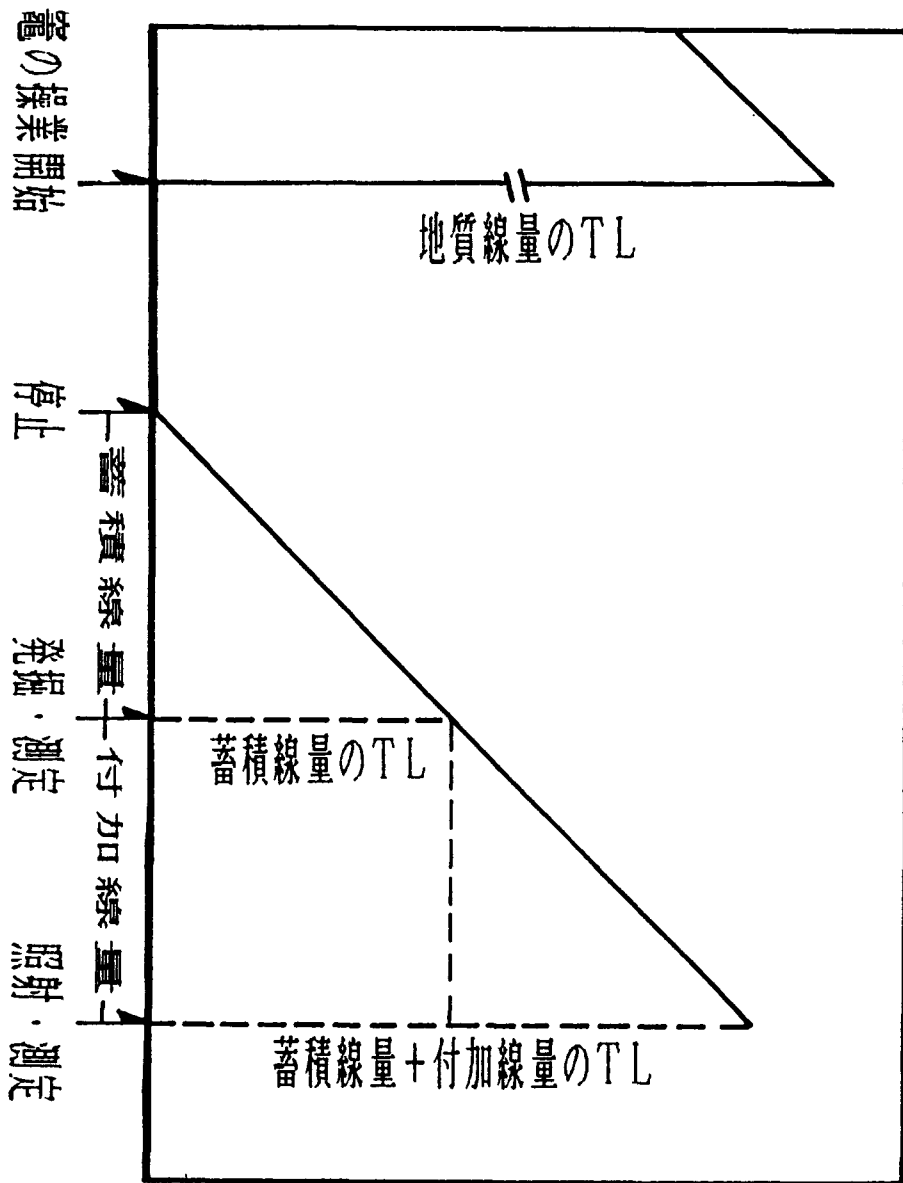
砂の蓄積線量が時間的に一定の割合で蓄積されたとすれば、これを年間線量でわり算することにより、過去に加熱されてから経過した時間、すなわち、年代に換算することができる。これを TL 年代という。竈跡の測定では竈の操業の終了の年代を知ることになる。

付加線量法による石英粗粒子法

砂が吸収した蓄積線量は TL 量に比例しているが、測定した TL 量がどれだけの蓄積線量に相当するかは、蓄積線量の TL 量を測定しただけでは決められない。このため、処理した試料にコバルト-60からの既知量のガンマ線を人為的に吸収させて TL 量を測定する。既知のガンマ線量と TL 量の比から蓄積線量を計算することができる。この人為的なガンマ線量を付加線量と呼ぶ。

TL 年代測定法にはいくつかの方法があり、測定しようとする試料の種類や形状などによって最適の方法が適用される。今回の試料では適当な大きさの石英が多く含まれていたため、石英粗粒子法によって測定した。この方法は、試料処理によって0.1mm程度の大きさの石英粒子を選別し、さらに粒子の表面をフッ酸によって除去することにより、アルファ線の蓄積線量に対する寄与を無視できるようにする方法である。

以上のことを示したのが第 1 図である。図の横軸は放射線量であり、この目盛りは年間線量を測定することにより、年代軸に読み変えることができる。縦軸は TL 量である。



第1図 熱ルミネッセンス (TL) 年代測定 の原理

2. 試料処理

砂に含まれる鉱物の多くは、前記で説明した TL 現象を示すが、結晶が安定で吸収した放射線量に比例した発光をする良質の鉱物は石英である。今回の測定は、石英粗粒子法によったので、砂の中から0.1mm程度の大きさの石英だけを以下のような試料処理で選別した。

電跡の焼けて赤みがかかった色の砂を直射日光に当たらないように採取した。直射日光を避けたのは、砂の中の石英に蓄積された捕獲電子の一部が太陽光のエネルギーで発光して消滅することにより、その数が減少するのを防ぐためである。

砂を大量の水で十分に洗い、塩分や目に見えるゴミなどの有機物を取り除いた。

100メッシュと200メッシュの標準篩でふるい分けて、74 μ mから149 μ mの粒度の砂を残した。

磁力を利用するマグネチックセパレータで磁性鉱物を除去した。石英は非磁性鉱物成分の方に分離される。今回の試料は磁性鉱物の含有量が多く、また非磁性鉱物成分に石英のほか長石や他の非磁性の着色鉱物が混入したので、セパレータの条件設定を変えて分離を繰り返した。

石英以外の非磁性鉱物はフッ酸に溶解しやすいので、これらを除去するために、フッ酸処理をした。正長石の含有量が多かったので原液(46%)のフッ酸で20分間処理をした。原液で完全に溶解しなかった正長石は脆くなって割れ易いので、フッ酸処理後の非磁性鉱物試料を流水下で200メッシュの篩の中で軽くこすり正長石を除去した。

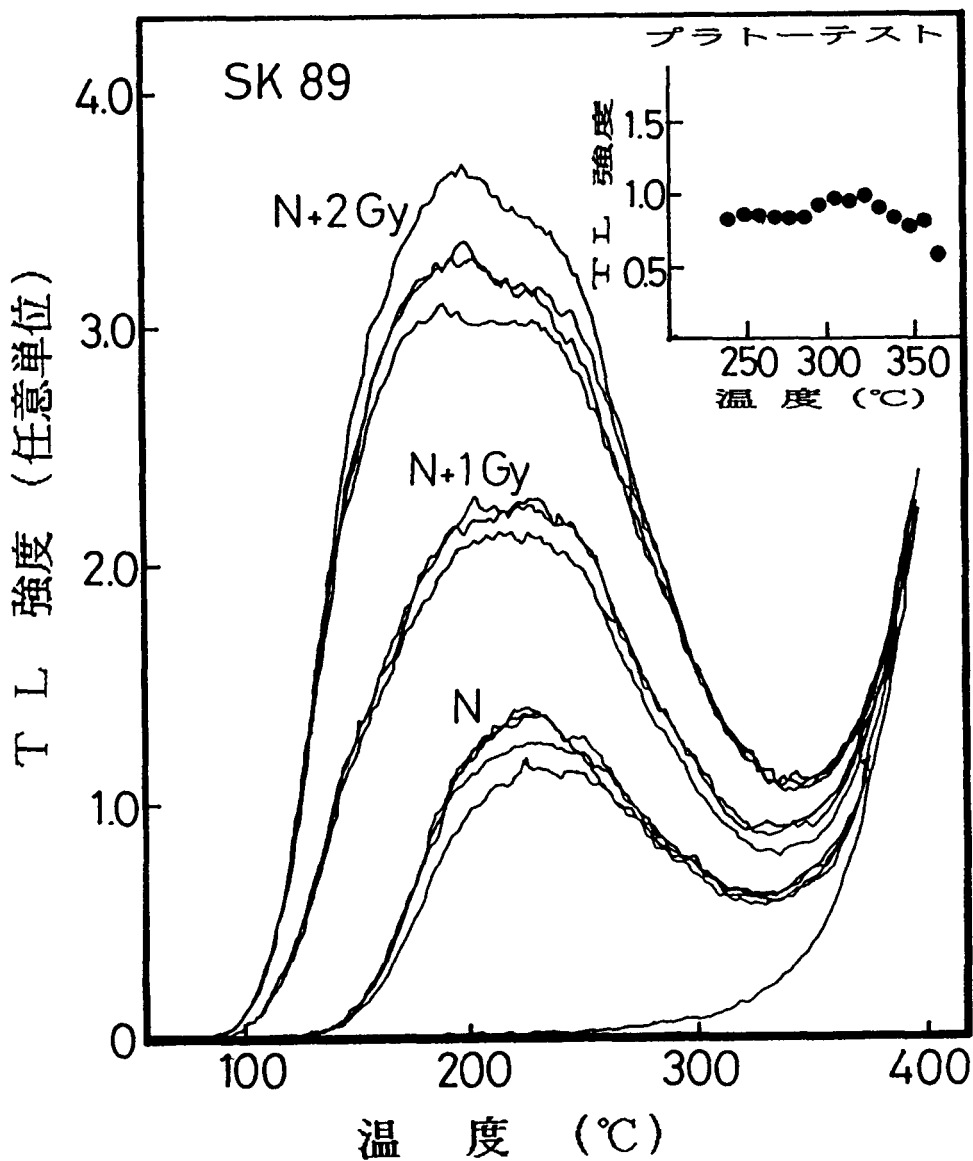
フッ酸処理は石英表面をエッチングして除去する作用もあるが、濃度が濃いため石英表面が荒れたので20%の酢酸で処理をした。

更に、残っている石英以外の成分を除去するため、再度マグネチックセパレータで、磁場強度を強くして分離した。

3. 測定

蓄積線量の測定

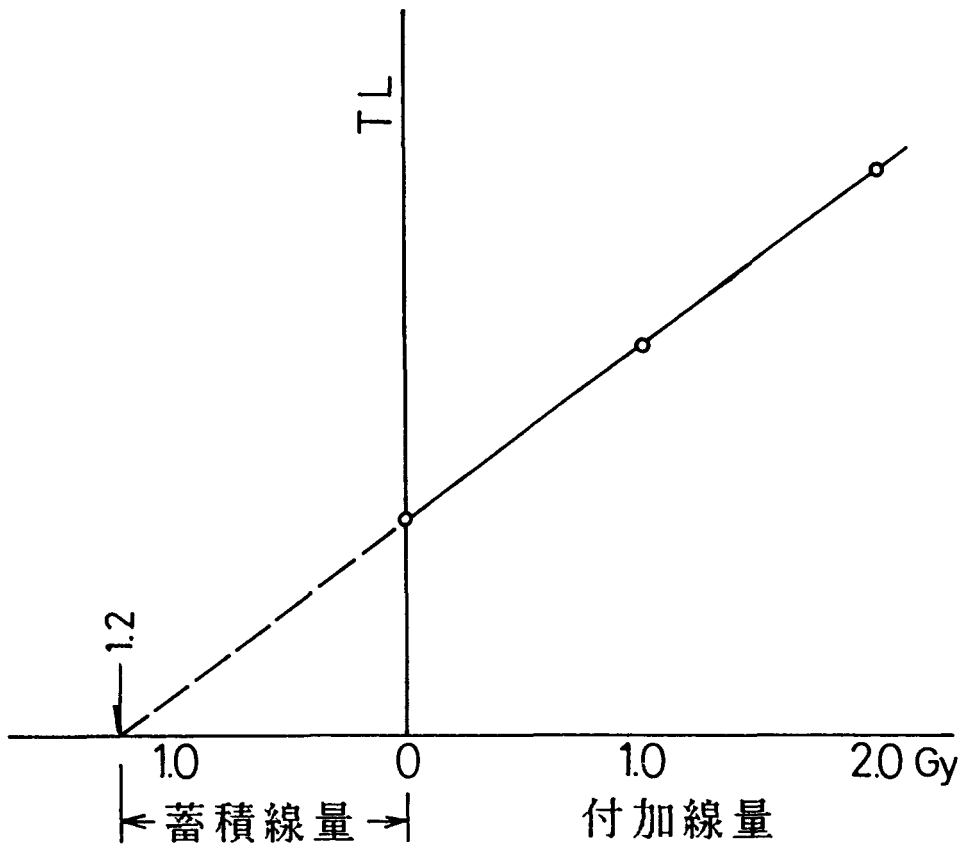
石英試料を TL 測定装置で加熱しながら発光量を測定し、温度に対して発光量を記録したものをグローカーブと呼ぶ。第2図に SK89のグローカーブを示した。図の中で、記号Nを付したカーブは付加線量を与えないもの、N+1Gy、N+2Gy はそれぞれ付加線量を1.0Gy、2.0Gy 照射した石英のグローカーブである (Gy は放射線量の単位、グレイである)。



第2図 第89号壺の火床の石英粒子のTL グローカーブ

第2図の挿図はプラトーテストと呼ばれる。これは石英結晶中に捕獲された電子が現在まで安定で存在したことをチェックする一つの方法であり、プラトー（平ら）になった温度領域では安定であったことを示している。

プラトーの温度領域で第3図のように付加線量に対して発光量をプロットしたとき、直線の延長が横軸と交わる点までの放射線量を等価線量という。SK89の等価線量は1.22Gy, SK90の等価線量は1.70Gyであった。



第3図 等価線量の決定方法

等価線量は電の操業停止から現在までの放射線量に関係するが、必ずしも蓄積線量と一致しない。これは放射線量に対する TL 量が低放射線量で比例しない場合があるからである。これに対する補正をスプラリニア補正といい、実際には電気炉で、400°Cで30分アニールした石英に人為的にガンマ線を照射して、低放射線量での比例性をテストする。蓄積線量は等価線量とスプラリニア補正値の和である。SK89のスプラリニア補正値は0.25Gy, SK90のスプラリニア補正値は0.05 Gyであった。

年間線量の測定

石英粗粒子法の場合、蓄積線量に寄与する放射線は試料周辺の自然放射性元素からのベータ線とガンマ線および宇宙線である。これらの放射線量はベータ線量測定とガンマ線+宇宙線量測定の二つに分けて行った。ベータ線はガンマ線、宇宙線に比較して物質の透過能が小さいのでベータ線をガンマ線や宇宙線と同時に一つの方法で測定することが困難であるからである。

ベータ線量の測定のために、電跡の試料を50 μ m程度に粉砕してコイン上にプレス成形した2枚の試料板をつくる。その間に粒子状の人工結晶である TL 線量計素子を薄く広げて数週間放置する。TL 線量計素子は放射線に対する感度が非常に高いので、2・3週間で試料中のベータ線量を測定することができる。

今回、ベータ線量の測定はSK89, SK90の他、SK148についてもおこなった。結果はそれぞれについて、1.201, 1.227, 1.163mGy/yであり、測定誤差の範囲で非常に良く一致した。これは電跡の海岸の砂が均質であることによる。従って、ベータ線量率としてはこれらの平均値を採用した。

ガンマ線+宇宙線量は、通常銅のパイプに封入した TL 線量計素子を用いて遺跡現地で測定するが、これらの放射線の寄与はベータ線の寄与より少ないことが多いので、2・3ヵ月放置することが必要である。今回は電跡の砂を大量に持ち帰り、これを地面に埋めて測定した。ベータ線の項で述べたように海岸の砂は均質であったので、ガンマ線+宇宙線量率の評価に関しては一つの測定値 (0.926mGy/y) で代表させた。

4. 結果と考察

以上のような方法で測定した等価線量、スプラリニア補正值、蓄積線量、年間線量をまとめたものが第1表である。表の最後の欄に蓄積線量を年間線量で割った TL 年代を示した。

第1表 TL 年代測定結果

試料	等価線量 (Gy)	スプラリニア補正 (Gy)	蓄積線量 (Gy)	年間線量 (mGy)			TL 年代 (year)
				β	γ	$\beta+\gamma$	
SK89	1.22 \pm 0.15	0.15 \pm 0.10	1.37 \pm 0.25	1.20	0.93	2.13 \pm 0.06	643 \pm 119
SK90	1.70 \pm 0.30	0.05 \pm 0.05	1.75 \pm 0.35	1.20	0.93	2.13 \pm 0.06	822 \pm 166

TL 年代は1991年を基準として何年前であることを示す。

TL 年代測定は土器に対して適用されることが多いが、土器の場合は焼成する前に粘土を水簸などの方法で精選しているため、試料処理した胎土中の石英粒子も均質である。また、土器の焼成

温度も600°C程度を越えているのが普通であり、石英粒子も十分に高温雰囲気になっている。このため、土器の TL 年代測定ではグローカーブの再現性がよい。

これに対して、今回の測定試料は火床の砂であったため、土器のように均質に高温度まで焼かれていたとは限らない。実際、試料処理をかなり慎重に行ったにも拘らず、SK90のグローカーブは再現性が悪く、等価線量も SK89に較べて大きい結果になった。SK90の試料採取の際、不十分な焼け方の砂が混入した可能性がある。SK89についても、測定結果は通常の土器の TL 年代測定値に比べて大きな誤差を含んでいる。

上述の事情を考慮して、竈の操業が停止された TL 年代としては SK89の測定結果、すなわち、現在から643±119年前とするのが妥当であろう。