

## 熱ルミネッセンス法による土器の年代測定 ?

著者	市川 米太, 長友 恒人
雑誌名	奈良教育大学紀要. 自然科学
巻	23
号	2
ページ	3-13
発行年	1974-11
その他のタイトル	Dating of Ancient Pottery by Thermoluminescent Method
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10105/537">http://hdl.handle.net/10105/537</a>

## 熱ルミネッセンス法による土器の年代測定 II

市川 米太・長友 恒人

(奈良教育大学物理教室)

(昭和49年4月30日受理)

### Dating of Ancient Pottery by Thermoluminescent Method

Yoneta ICHIKAWA and Tsuneto NAGATOMO

(Department of Physics, Nara University of Education, Nara, Japan)

(Received April 30, 1974)

#### Abstract

In an earlier paper of this bulletin, the authors described how the thermoluminescent (TL) method may be an effective one for the dating of ancient pottery and it has an advantage over radiocarbon method. The present paper is concerned with some salient points in the development of the TL technique at our laboratory during the past 10 years. The results recently obtained from the typical potteries are shown, which contain the dating results for a series of shards from Ban-Chiang and those for a series of shards from Nara.

The quartz and feldspar embedded in clay matrix have been exposed by the natural radiation since the last heating. The TL emitted from the ancient pottery is a measure of the total dose of this radiation. On the assumption that the natural dose-rate has been constant, the time elapsed since the firing of the pottery is estimated from the accumulated radiation dose and the dose per year. The TL dating used in the present investigation is the method which is known by the name of the inclusion method or the large grain method. For the estimation of the accumulated radiation dose we measured the TL of quartz and feldspar inclusions with diameters of greater than 0.3 mm. Consequently, we could neglect the contribution from alpha particles which will only penetrate into the inclusions approximately 0.023 mm on average and are typically only from 10 to 20 % as efficient as beta or gamma radiation in the creation of TL. The environmental radiation and the radiation from the pottery itself were measured with  $\text{CaSO}_4$ ; Tm TL dosimeter developed by Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.

#### 1. 緒 言

考古学の研究において考古遺物の年代を正確に決定することは、最も基礎的にして重要なことである。考古学では時間の尺度として主に土器が使用されるが、その年代は土器の形式、文様お

よび出土地層の層位によって推定された相対年代である。したがって、この方法によってなされた編年が正当なものであるかどうかを判断することはできない。これに対して約20年前 Libby によって放射性炭素年代測定法 (C-14 法) が開発され、炭素を含む遺物の絶対年代が理学的的方法によって測定されるようになった。その後、この方法による数多くの測定結果が報告されるようになり、現在これらのデータを信頼する考古学者と反対の立場に立つ考古学者の間に大きな問題を投げかけている。放射性炭素法による年代決定において問題になる点は第一に測定試料が炭素含有遺物でなければならないことである。例えば、遺跡から収集した木炭について年代測定を行ない、これと関連づけて同じ遺跡の土器の年代を推定するので試料収集においては十分な注意が払われないと誤差の原因となる可能性がある。第二には一般に理学的年代測定法の原理はある基礎仮定の上に乗って成立するものであり、仮定からのはずれは誤差の原因となる。放射性炭素法についていえば、放射性炭素の濃度が交換リザーバーのすべての部分において同一であること、この濃度が時間に対して不変であることなどの基礎仮定にもとづいている。これらの基礎仮定からのはずれからくる誤差についてはいろいろな方法によって検討が加えられ、補正がされることは勿論であるが当然それにも限界がある。したがって、データの信頼性を高めるにはいくつかの異なる原理の上に乗って理学的測定方法を開発し、同一資料を二つ以上の方法で測定することが望ましい。

このような意味で、放射性炭素法以外に現在熱ルミネッセンス年代測定法、考古地磁気法およびフィッシュン・トラック法などの理学的年代測定法が研究されつつある。特に熱ルミネッセンス年代測定法は鉱物を含む遺物であって、その製作時に 700°C 以上の温度で焼成されたものであれば総て試料として使用できる。したがって、考古学の時間の尺度となっている土器をはじめとしてカマ跡の土、レンガなど多くの遺物の年代を決定できる利点をもっている。熱ルミネッセンス法は1950年 Daniels<sup>(1)</sup> によって初めて提案され、石灰岩などの地質年代の推定に用いられた。土器の年代測定には1961年に Kennedy<sup>(2)</sup> によって初めて応用され、ギリシャの土器についてその相対年代が求められた。その後、Tite, Ralph, Fleming, Zimmerman, Aitken,<sup>(3)</sup> などアメリカ、イギリスを中心に活発な研究が進められてきた。筆者らも1962年にこの研究を始め、1963年に本紀要に熱ルミネッセンスによる土器の年代測定 I を発表した。今回はその後約10年間の研究の結果を総括して報告するものであって、これらの一部については既に他の雑誌に発表したものも含まれている。

## 2. 原 理

自然に存在する鉱物の大部分は加熱することによって自熱する以前の温度において、発光強度に差はあるがその大部分が燐光を出す。この現象が熱ルミネッセンス (TL) と呼ばれるものである。その原因としては、放射線によるもの、摩擦や粉碎によるもの、化学作用によるものなどがある。この中で、放射線の刺激が原因となって発光するものを放射熱ルミネッセンスと呼んでいる。熱ルミネッセンス年代測定法はこの現象を利用する。土器試料においては主として、土器中の鉱物の中で熱発光に対して感受性の良い石英・長石が試料として使用される。石英・長石の熱発光の機構は物性論的に完全には説明できないが、石英のアルミセンターに関してはいくつかの研究が報告されている。<sup>(4)(5)</sup> アルミセンターは Fig. 1 に示されているように石英の結晶中に不純物としてアルミニウムとアルカリ金属イオンが存在している場合で、 $\text{Si}^{4+}$  が  $\text{Al}^{3+}$  で置換され、

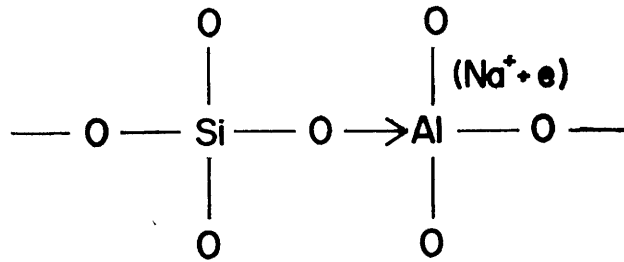


Fig. 1 アルミセンターのモデル

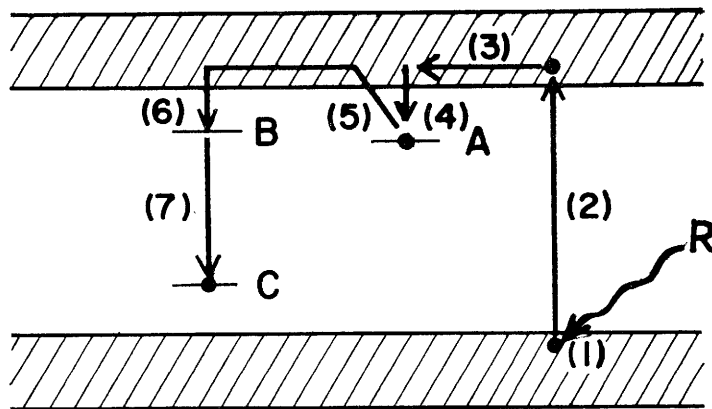


Fig. 2 熱発光過程のバンドモデル

このために生ずる電荷欠損を  $\text{Li}^+$  または  $\text{Na}^+$  が補償している構造をもつ欠陥である。この欠陥は  $\text{Al}^{3+}$  置換によって価電子帯の上に準位Cを作り、アルカリイオンの存在によって伝導帯の下に準位Aを作る。Fig. 2 にこの欠陥の熱発光過程のバンドモデルを示す。図において、1) 放射線の照射によって、2) 電子は価電子帯およびC準位から伝導帯に励起される。3), 4) 伝導帯にジャンプした電子は結晶中を移動し、A準位（トラップ）に捕獲される。A準位の電子の光吸収による励起が煙水晶の着色の原因となっているものである。5) 捕獲された電子は加熱によって伝導帯にジャンプし得るに十分なエネルギーを与えると再び伝導帯に励起され、自由電子として結晶を動き回る。捕獲中心には活性化エネルギーが異なるいろいろな深さのものがあり、浅いものは  $100^\circ\text{C}$  の加熱で伝導帯に励起されるが、深いものは  $400^\circ\text{C}$  以上の高温に加熱しないと励起されないものもある。捕獲電子の平均寿命も一般には捕獲準位の深さに関係し、数時間から数千年に及ぶものまでである。6), 7) 加熱によって再励起された自由電子は動き回った後、発光中心の正孔と再結合する。再結合の過程としては、電子がはじめ発光中心の励起準位に発光なしで移行し、ついで発光を伴って安定準位Cに移行する。この過程でTLがある。電子を放出する温度即ち、TLを生ずる温度はトラップの深さに依存しており、温度の関数として熱発光強度を記録したものをグロー曲線と呼び、TLの研究において一般的に使われるものである。一個のトラップは単一のグローピークを示すが、一般には結晶中に数種のトラップがあり、数個のグローピークより成り立つグロー曲線を示す。Fig. 3 に  $\text{Co-60}$  の  $\gamma$  線によって照射された石英のグロー曲線を示す。

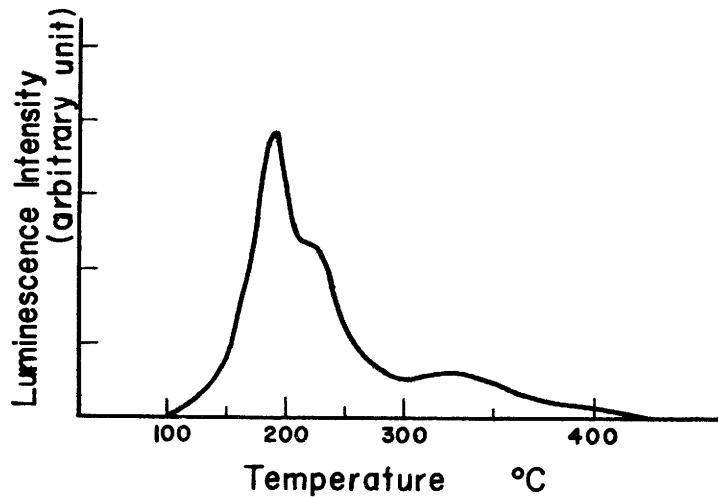


Fig. 3 石英のグローカーブ ( $4 \times 10^5$ R照射)

天然に存在する石英、長石は地質年代に渡り放射線を受けているので加熱したとき TL を示す。しかし土器においてはその製作時に  $750^\circ\text{C}$  以上の温度で焼成されているので熱発光的に零になっている。従って、土器資料から抽出した石英、長石の示す TL は土器が作られてから現在に到るまでの間に受けた天然の放射線によるものである。もし捕獲電子の寿命が測定しようとしている年代より十分に長いとすると、捕獲電子の数はそれを生ずる原因である放射線の線量  $D$  に比例していることは実験によって確かめられている。また、捕獲電子の数は加熱によって励起され元の状態に戻るとき発する熱発光量  $I$  に比例する。即ち、 $I=KD$  となる。ここで  $K$  は比例定数であり、結晶の TL に対する感受性を示すものである。結晶に等線量の放射線を照射した場合でも発する熱発光量は結晶によって異なるのである。熱ルミネッセンスの現象を利用して放射線量を測定する TL 線量計では、人工的に結晶に不純物を付加して感受性の高いものを作り試料とする。土器中の石英・長石においても試料によってそれぞれ感受性  $K$  の値は異なる。この  $K$  の値を求めるためには、試料  $\text{Co-60}$  などの人工放射線源を使用して既知線量  $D_0$  を照射し、その試料の熱発光量  $I_0$  を測定する。即ち、 $I_0=KD_0$  から  $K$  を求めることができる。以上に述べた原理によって、土器中の石英・長石の熱発光量の測定から土器が焼成されてから現在まで受けてきた蓄積線量  $D$  を求めることができる。原理的には土器が 1 年あたり受ける吸収線量  $R$  を測定すれば  $D=Rt$  によって土器の年代  $t$  を求めることができる。

土器中に inclusion として含まれている石英・長石が受ける放射線の源は、周囲の土及び土器の matrix である粘土中に含まれている U, Th, K-40 と宇宙線である。Fig. 4 に U 3ppm, Th 12ppm, K-40 1% の濃度の土中に埋められた土器の 1 年間に受ける平均的な年間線量を示してある。この表からわかるように、年間線量の大部分は  $\alpha$  線によって占められている。従って、TL 年代測定法の初期の研究段階においては、近似的に年間線量を土器中の U と Th のみによると考えられ、シンチレーションカウンタを使つて  $\alpha$  線を計数測定してこれから年間線量を評価した。筆者の研究室において 1967 年、この方法によって測定した相対年代が Fig. 5 に示されている。測定した資料は Table. 1 に示されている日本の縄文早期から古墳時代に到る 13 個の

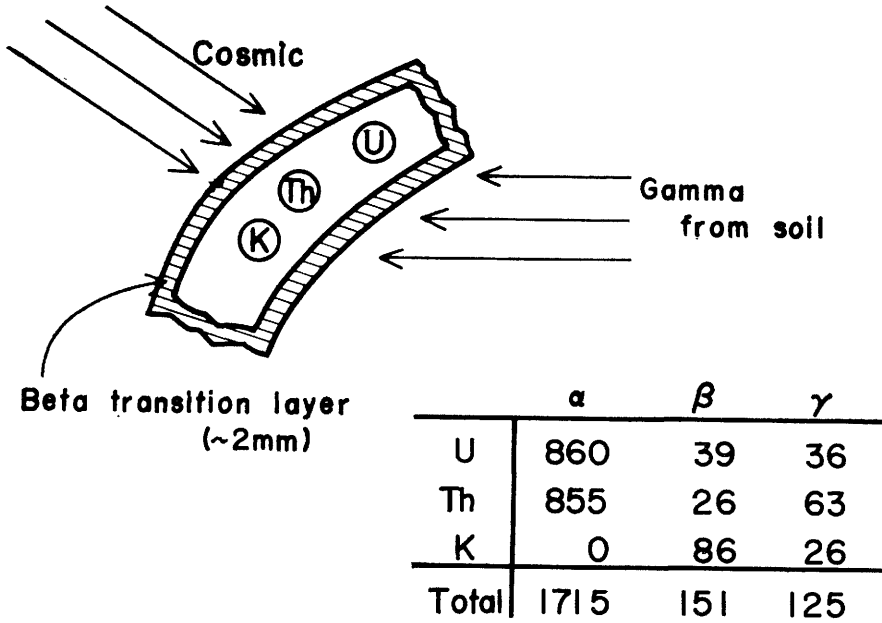


Fig 4 土器中の結晶が受ける放射線源と年間線量 (m Rads)

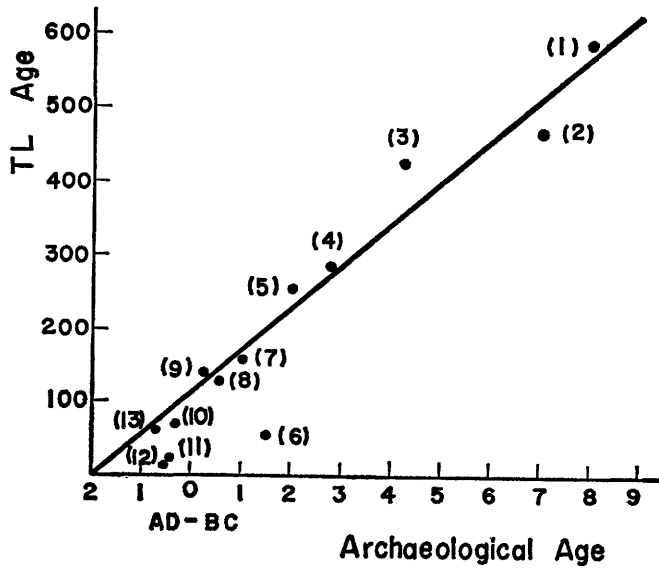


Fig 5 TL測定法による日本の土器の相対年代

Table 1. TL 測定法による日本の土器の相対年代資料

資料番号	出土地	資料	年代
1	夏島 (神奈川県)	縄文土器	7300 B. C.
2	小島 (香川)	"	7300 B. C.
3	北白川 (京都)	"	4000 B. C.
4	赤穂原 (神奈川県)	"	2700 B. C.
5	曾谷 (千葉)	"	1800 B. C.
6	滋賀里 (滋賀)	"	1000 B. C.
7	杉田 (神奈川県)	"	700 B. C.
8	神足 (京都)	弥生土器	200 B. C.
9	天神山 (大阪)	"	100 A. D.
10	平城 (奈良)	"	300 A. D.
11	石山 (三重)	埴輪	400 A. D.
12	経塚 (大阪)	"	500 A. D.
13	飛鳥 (奈良)	瓦	600 A. D.

土器である。図に示されているように相対年代を表わすD/Rの値は大体考古年代と直線関係にあることが認められた。しかし、6, 10, 11, 12の資料は直線から下方に大きくずれる傾向を示した。これらの資料は $\alpha$ 線の計数の測定において、他の資料より高い値を示したものであった。このことは、熱発光に寄与する天然放射線の大部分を $\alpha$ 線によるものとし、 $\beta$ 線や $\gamma$ 線の寄与を無視したためであると考えざるを得なかった。その後、この点に関する種々の検討が加えられた結果、次の2点が明らかにされた。<sup>(13),(14)</sup>第一には、結晶のTLに対する感受性は放射線のlinear energy transferによって異なり、 $\alpha$ 線は $\beta$ 線、 $\gamma$ 線に比べて $\frac{1}{3} \sim \frac{1}{4}$ 程度であることが実験的に検証された。<sup>(15)</sup>即ち、前述した  $I=KD$  は  $I=K_a D_a + K_{\beta,\gamma} D_{\beta,\gamma}$  と書かなければならないのである。第二には、Fig. 6に示されているように $\alpha$ 線の透過力が石英について平均 $23 \mu\text{m}$ 程度にとどまり、<sup>(14)</sup>直径の大きな粒子ではごく表面にしか影響を与えないということである。

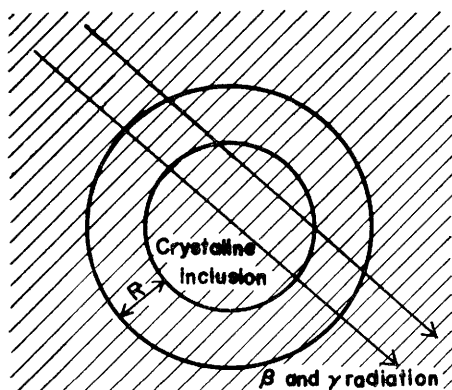


Fig. 6 石英粒子中の放射線の透過  
(R:  $\alpha$ 線の透過距離 $\sim 23 \mu\text{m}$ )

この事実の上に立って、その後のTL年代測定法は試料の選択法によって二つの方法に分けられるようになった。一つはfine grain methodと呼ばれる方法で、粒子の直径が $\alpha$ 線のrange以下のものを試料とし、年間線量の評価に $\alpha$ 線の寄与も考慮に入れるTL年代測定法である。他の一つは、large grain method 又はinclusion methodと呼ばれる方法であって、 $100 \mu\text{m}$ 以上の粒子を試料とし、試料調整についてフッ化水素酸で表面をエッチングする。従って、試料に対する $\alpha$ 線の効果は除去され、年間線量の評価においても $\alpha$ 線の寄与を無視する方法である。

### 3. 測定方法

#### (I) 試料調整法

現在、筆者らが実施している試料の調整法を箇条書きによって次に示す。

- ① 土器の表面を0.2~0.3mmの厚さにわたってはく離する。
- ② 土器片を銅板に包み、万力によって土器中の石英や長石の結晶を砕かないように注意しながら粉碎する。その後さらにメノウの乳鉢で同様な注意をしながら結晶の周囲についた粘土をはがす。
- ③ 篩い分けによって28メッシュ以上の鉱物と200メッシュ以下の粘土及び鉱物をそれぞれ除去し、残りを熱発光量測定用の試料とする。
- ④ この試料を水及びアルコールで洗浄する。
- ⑤ その後、HCl (約10%) とHF (約10%) でそれぞれ1分間と5分間酸処理をする。
- ⑥ さらに再び水とアルコールで洗浄する。
- ⑦ 試料を乾燥した後に電磁分離機によって白色の非磁性鉱物(石英・長石)と着色鉱物とに分離し、白色鉱物を試料とする。
- ⑧ この試料を篩によって、28~42メッシュ、42~100メッシュ、100~200メッシュに粒度分けし、それぞれについて熱発光量の測定を行なう。

#### (II) 蓄積線量の測定

前述したように土器の蓄積線量の評価は熱発光量の測定によって行なう。TL測定装置についての詳細は前回の論文に報告してある<sup>(10)</sup>。装置の主要部分は試料を加熱するための熱板、試料から出た燐光を電流に変換するための光電子増倍管、この微小電流を増幅するための直流増幅器、熱発光量と温度を同時に記録するための2ペン記録計などによって構成されている。前回の装置と比較して改良された主な点は、測定中、試料室を窒素ガスで満たすようにしたことである。即ち、空气中で加熱すると試料中のある成分が酸素効果によって発光することがあるからである。また、試料調整法として改良された点は前述したように土器中から白色鉱物を分取して熱発光量測定用の試料としたことである。Fig. 7 に原爆の放射線を受けた瓦を試料とした場合の全成分、白色鉱物部分及び着色鉱物部分のそれぞれのグロー曲線が示されている<sup>(16)</sup>。図に見られるように発光に寄与しているのは主として白色鉱物部分である。このことは土器についても同じであり、その成分は主として石英・長石である。従って、この部分を抽出して使用することによって、発光効率を良くすることができる。またこの試料調整法は large grain method を可能にする必要条件である。この方法によって得られたマラヤの土器の natural TL のグロー曲線が代表的なものとして Fig. 8 の(A) に示してある。試料の感受性を求めるための既知線量線源としては Co—60 の $\gamma$ 線を使用している。上記のマラヤ土器について1000 R照射した artificial グロー曲線が Fig. 8 の(B)として示されている。土器が作られてから天然の放射線によって受けてきた蓄積線量は発光の原因であるトラップの電子の平均寿命がすべて、土器の年代に比較して長いものであれば、曲線(A)と曲線(B)が基線との間に占める面積の比によって求めることができる。深さEのトラップに捕獲されている電子の平均寿命 $\tau$ は、 $\tau = \frac{1}{S} e^{E/AT}$ によって求めることができる。ここでSは frequency factor, Tは発光のピークの温度である。しかし、土器のように試料組成が複雑なものでは、そのグロー曲線から明らかなようにいろんな深さのトラップ、いろんな平均寿



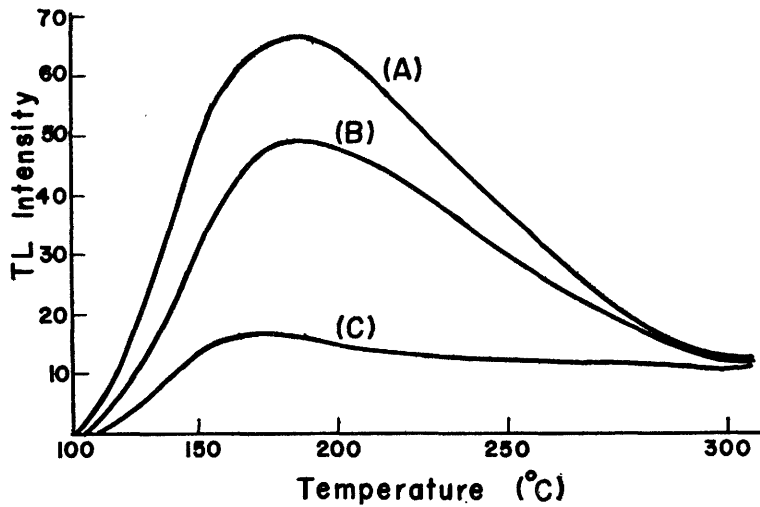


Fig. 7 原爆の放射線を受けた瓦のグロー曲線  
(A): 白色鋳物成分 (B)全成分 (C)着色鋳物成分

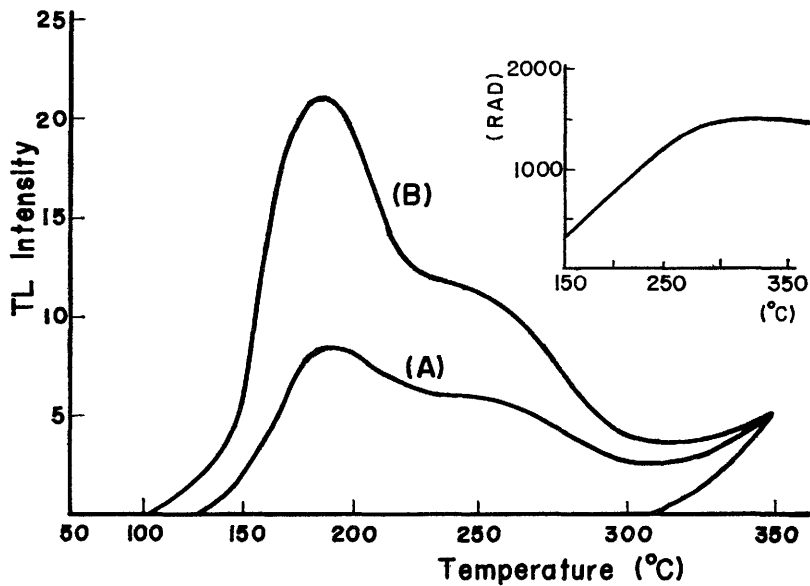


Fig. 8 マラヤ土器の発光曲線  
(A)自然放射能による TL (B)Co-60の1000R照射による TL

命の捕獲電子が存在しているため、蓄積線量を実際に求めることはかなり困難である。筆者らはなん度以上のグロー曲線の部分が土器年代に対して減衰せずに残っているかを実験的方法によって検討した。即ち、曲線(A)、(B)から各温度について土器の蓄積線量を求め、図の上部に示してあるグラフを作った。低温部においては、natural TL は減衰しているために、その分だけ蓄積線量は少なく現われるが、280°C 以上において曲線は plateau になり蓄積線量は一定の値と

なる。この部分の熱発光に寄与する捕獲電子の寿命は土器年代にわたって減衰していないものとしてこの値を蓄積線量とする。約20年前に原子爆弾を受けた瓦の TL 測定からはグロー曲線の 200°C 以上の部分が減衰していないことが認められた。

### (III) 年間線量の測定

現在、筆者らが行なっている TL 年代測定法は、大きな粒子を土器中から選び出し、その表面をフッ化水素酸でエッチングすることによって  $\alpha$  線の影響を無視できるようにする large grain method である。従って、年間線量の測定には  $\beta$  線、 $\gamma$  線の寄与のみを評価する。その測定法のひとつとしては、U, Th を化学分析によって求める方法がある。他の方法としては、石英粒子と同じ粒度の TL 線量計を利用する方法がある。この TL 線量計としては、松下電器・中央研によって開発された  $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Tm}$  が使われている。この線量計は 0.1mR より 200R まで直線性を示す非常に感度の良いものである。測定法としては、まず土器の matrix である粘土を 200メッシュ以下に粉碎してポリ袋に入れる。次に  $\text{CaSO}_4 \cdot \text{Tm}$  の粒子 300mg を 0.04mm のポリ袋に入れ、これを上記のポリ袋中の粘土の中に埋め込み、鉛箱の中に約50日間入れて放置しておいた後に線量を測定した。ポリ袋に TL 線量計を入れることによって  $\alpha$  線をカットしているのである。周囲の土からの  $\gamma$  線は、TL 線量計を2mmの銅板に包み、土器の埋っていた遺跡の土中に約50日間埋め込むことによって求めた。このとき、半径7cmの土の球の中心においた試料では受けるべき全  $\gamma$  線量の50%しか受けない。半径30cmの球を作るだけの土の量が得られる場合はその中心に試料を置くことによって全線量の95%を測定することができる。土器試料によっては周囲の土が得られず、土器に付着した数gの土しか入手できないことがある。この場合はシンチレーションカウンタを用いて試料の  $\alpha$  線放出率を測定し、これから  $\gamma$  線量の概略値を計算によって求めた。

## 4. 測定結果および考察

筆者らは、これまでに12の遺跡の出土土器について large grain method による TL 年代測定を行ってきた。その中で、今回は Ban-Chiang 遺跡と布留遺跡出土土器<sup>(17)</sup>についての測定結果を報告する。Ban-Chiang の土器は1971年3月、タイ東北部、Udon Thani 県で青銅器とともに発掘されたものである。この遺跡から出土した遺物が5,000年ないし6,000年前のもものと推定されたことから、タイに中国より古い青銅器文化が栄えたのではないかと世界的な注目を集め、発掘調査にあたったタイ国立博物館が外務省を通じて、筆者に土器片の年代測定を依頼してきたものである。この土器片の中には炭素が多く含まれており、土器中の結晶の表面も炭素によって汚染されていたため試料調整においてフッ化水素酸処理を特に長時間行なった。また発掘地点の土が入手できなかったので、周囲の土からの  $\gamma$  線寄与の年間線量は土器片の表面に付着していた土をシンチレーションカウンターで測定することによって推定した。年代測定の結果は Table 2 に示されている。

測定を依頼された土器片は地表からの深さ、50~60cm, 80~90cm, 110~120cm, および 190~200cmの4つのグループに分けられていた。表から判るように、各グループの中にそれぞれ含まれている土器片の年代はかなりの巾を持っている。これは各時代の層位が凹凸であるため、同じ深さ(絶対高度)の範囲の中に2つ以上の時代の土器片が入っている可能性があることに原因していると考えられる。タイの青銅器文明の年代については、今回測定した土器と問題となる青銅器片との関連が考古学的にもっと明確にされないと結論は下されないと思う。Table 3 に奈良

**Table 2.** Ban Chiang 土器の TL 年代測定結果

土 器	蓄積線量	年間線量	TL年代	年 代
層(cm)      資料番号	(Rad)	(Rad/Yr)	(Yr)	(Yr)
50—60      1—3	237	0.196	1210	A. D. 760
50—60      1—1	559	0.220	2540	B. C. 570
50—60      1—4	467	0.179	2610	B. C. 640
50—60      1—5	654	0.198	3300	B. C. 1330
50—60      1—2	653	0.181	3610	B. C. 1640
80—90      2—3	424	0.179	2370	B. C. 400
80—90      2—4	599	0.196	3060	B. C. 1090
80—90      2—5	781	0.194	4030	B. C. 2060
80—90      2—1	863	0.202	4270	B. C. 2300
80—90      2—2	873	0.182	4800	B. C. 2830
110—120    3—4	855	0.193	4430	B. C. 2460
110—120    3—1	951	0.197	4830	B. C. 2860
190—200    4—3	1111	0.207	5370	B. C. 3400
190—200    4—1	1010	0.177	5710	B. C. 3740
190—200    4—2	1176	0.188	6260	B. C. 4290
190—200    4—4	1266	0.198	6390	B. C. 4420

**Table 3.** 布留遺跡出土土器の TL 年代測定結果

資 料	蓄積線量 R	総年間線量	TL 年 代	年 代
縄文式土器	492	0.192	2563	B. C. 589
縄文式土器	487	0.213	2286	B. C. 312
土師器 1	342	0.214	1598	A. D. 376
土師器 2	358	0.212	1690	A. D. 283
土師器 3	351	0.214	1642	A. D. 331
土師器 4	375	0.230	1630	A. D. 343
土師器 5	387	0.231	1675	A. D. 298
土師器 6	350	0.225	1556	A. D. 417
土師器 7	369	0.217	1700	A. D. 273

県天理市布留遺跡出土土器の年代測定の結果が示してある。この土器資料は天理大参考館の置田雅昭氏の提供によるものである。縄文式土器、土師器の外に須恵器の土器片も数片あったが、須恵器は粘土成分が多い上に高温焼成されているために土器中から石英・長石の結晶を破壊せずに取り出すことが困難であった。

## 5. 結 言

TL 年代測定法は前述したように C-14 法に比較して土器を測定対象にできる利点をもっている。しかし、土器という複雑な組成をもったものを試料とし、現象が環境に支配され易い物性的なものであるため、この方法における誤差要因は10個以上考えられる。蓄積線量を評価するため

の熱発光量の測定においては土器中の白色鉱物を試料とするが、この中には石英・長石の他多種多様な鉱物が含まれているためグロー曲線の再現性が問題となる。特に土器片が小さくて多量の試料が得られないときには、少量の TL 感受性の強い鉱物の偏在によって再現性の得られないことがある。また現在もっとも解決が迫られているものとして年間線量の評価の問題がある。年間線量は土器年代にわたって一定であるという基本仮定の上立って TL 年代測定法が成り立っているが、地下水の変化など土器の埋没中の履歴の変化はこの仮定を破るものであり、出土地点の検討が必要となる。

1962年に本研究を始めて10年が経過した。現在この方法による誤差は資料によって異なるが、約±10%程度であり、考古学への寄与を考えるとこれを±5%程度まで高めることが望ましい。この目的を果たすため、現在、文部省科学研究費の交付を受けて、考古地磁気法、フィッシュ・トラック法の研究者と協力し、年代既知の資料についてそれぞれ測定して3方法間の相互チェックをしながら精度を高めるための改善を検討中である。

## 文 献

- (1) F. Daniels and D. F. Saunders: *Science* **111**, 462 (1950).
- (2) G. Kennedy: *Archaeology*, **13**, 147 (1961).
- (3) M. S. Tite and J. Wain: *Archaeology*, **5**, 53 (1962).
- (4) E. K. Ralph and M. C. Hann: *Nature* **210**, 245 (1966).
- (5) S. J. Fleming: *Archaeometry*: **9**, 170 (1966).
- (6) D. W. Zimmerman: *Archaeometry*: **10**, 26 (1967).
- (7) M. J. Aitken: *Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. A*, **269**, 77 (1970).
- (8) M. C. M. O' Brien: *Proc. Roy. Soc. London A* **231**, 404 (1955).
- (9) Y. Ichikawa: *Japan J. Appl. Phys.* **7**, 220 (1968).
- (10) 市川米太: *奈良学芸大学紀要* **11**, 55 (1963).
- (11) M. J. Aitken: *Thermoluminescence og Geological Materials*: 377 (1968).
- (12) Y. Ichikawa: *Bull. Inst. Chem. Res. Kyoto Univ.* **45**, 63 (1967).
- (13) *ibid.* **43**, 1 (1965).
- (14) S. J. Fleming: *Archaeometry* **12**, 133 (1970).
- (15) M. J. Aitken, M. S. Tite and S. J. Fleming: *Luminescence Dosimetry* ed, 490 (1967).
- (16) Y. Ichikawa, T. Higashimura and T. Shidei: *Health Physics* **12**, 395 (1966).
- (17) 市川米太, 長友恒人, 正司富輝子: *奈良教育大学古文化財研究報告* **3**, 1 (1974).