

## 熱ルミネッセンス法による窯跡出土白磁片の年代測定

青 木 智 史 奈良教育大学理科教育講座 (古文化財科学)  
長 友 恒 人 奈良教育大学

(平成25年 5 月 7 日受理)

## Thermoluminescence Dating of the Porcelain Shards from Kiln Sites

Satoshi AOKI

(Department of Science Education, Nara University of Education)

Tsuneto NAGATOMO

(Nara University of Education)

(Received May 7, 2013)

### Abstract

The thermoluminescence (TL) dating method has been applied mainly in the field of archaeology and art history, for estimating the ages of heated artifacts such as ceramics. It is indispensably important for the research of ancient potteries to know the age of their manufacturing. In the present work, we applied a thermoluminescence method to the porcelain shards which were collected at the Woosan-ri porcelain kiln sites, Kwangju, Korea. The Woosan-ri porcelain kiln is considered to have been operated from 15th to 16th century according to several historical records. It is difficult to get the reliable ages by TL method for porcelain dating, because porcelains are almost glass formed from fused feldspar, and a little minute particle of quartz. In this research, we proposed an improvement condition for porcelain measurement by TL method. In this paper, the authors show the results of TL measurements, and discuss the validity and effectiveness of TL method for porcelain dating. The results of the present work correspond exactly with the archaeological fact. This result shows that TL dating is an effective tool for the research on the history of porcelain. Further improvement of TL measurements and accumulation of data should be desired for the future development in this field.

キーワード：熱ルミネッセンス (TL)、  
年代測定、磁器

Key Words : thermoluminescence (TL),  
dating method, porcelain

### 1. はじめに

熱ルミネッセンス (TL) 法は、陶磁器の焼成年代を測定する方法として代表的な分析法であり<sup>(1)</sup>、これまでも多くの重要な研究成果が得られている<sup>(2)(3)</sup>。TL法は文字通り TL 現象を利用して年代測定を行う方法である。物質の発光現象には、高温状態となることによって生じる熱放射の他に、外部からの様々な刺激 (熱、光、電子線など) により物質中の電子が励起され正孔と結合する際に生じるルミネッセンス現象が存在する。この外部からの刺激が熱エネルギーである場合のルミネッセンス現象が TL 現象である。一般に陶磁器の胎土には、石

英や長石類などのルミネッセンス鉱物が含まれている。通常、天然のこれらの鉱物には不純物中心や空格子など様々な格子欠陥が存在している。格子欠陥が存在する結晶はエネルギー状態が不安定となり、放射線損傷などによって生じた自由電子を捕獲して準安定状態となる性質がある。放射線が結晶に入射すると相互作用により電子と正孔の対が形成され、電子は伝導体へ励起され自由電子となり正孔は正孔中心へ移る。ほとんど自由電子はすみやかに再結合しもとのエネルギー準位に戻るが、いくつかの電子は電子捕獲中心に捕獲され準安定状態となる。石英のような TL 分析に適した鉱物の場合、吸収した放射線量に対して一定の割合で電子が蓄積されるた

め、電子の蓄積量から放射線量を評価することが可能となる。電子を蓄積した状態の結晶に高温などの強い刺激を加えると捕獲された電子はエネルギーを得て励起され、伝導帯を移動して正孔中心の正孔と結合し、正孔中心のエネルギー状態に依存した波長のルミネッセンスを放出する。ルミネッセンスの発光強度は、正孔と結合した電子の数と比例するため、ルミネッセンス強度から電子の蓄積量を知ることができる。電子の蓄積量は吸収した放射線量と比例関係にあるため、ルミネッセンス強度は吸収した放射線量に比例する。この性質を利用し、ルミネッセンス法は吸収した放射線量を評価するのである。

天然の鉱物は、その鉱物が形成されて以来環境放射線を吸収し続けており、結晶には電子が蓄積された状態となっている。このような鉱物が陶磁器の焼成のような高温に曝されると蓄積していた電子がすべて解放され、結晶中の電子の蓄積はゼロの状態となる。この現象をTL法ではゼロイングと呼んでいる。このゼロイングは、TL年代測定法にとっての起点となるイベントであり、極めて重要である。通常、500℃以上の高温に曝されると電子はすべて解放されることから、それ以上の温度となる陶磁器の焼成では完全にゼロイングがなされることになる。ゼロイング後、鉱物は再び自然放射線を吸収して電子を蓄積していく。つまり、TL測定によって評価されるのはゼロイングから測定時までの間に吸収した放射線量（蓄積線量、Paleodose；PD）である。鉱物が一年間に吸収する放射線量（年間線量、Annual dose；AD）を評価することができれば、蓄積線量を年間線量で除することにより、ゼロイング以降の経過年代を評価することが可能となる。この年代値がTL年代である。つまり、焼成以降に再加熱を被っていないければ、TL年代は陶磁器の制作年代を示すことになる。

TL法は陶磁器の年代測定法として適用範囲が広く、土器や陶器、磁器、輪や瓦など大半が年代測定の対象となる<sup>(4)</sup>。しかし、未だ検討すべき問題も少なくない。

例えば、カオリン（本論では、主としてカオリナイトからなる鉱石・粘土をカオリンと呼称する）を主成分とする陶磁器のうちで極めて高温で焼成される白磁や青花磁器を測定対象とした場合に、バラツキが非常に大きくかつ線量依存性も良好ではないデータが得られる場合があった。磁器のTL分析に関しては多くの先行研究があり、磁器製品の測定の困難さについて言及した例もある<sup>(5)</sup>。しかしながら、これまで十分な検討を実施できてはいなかった。今回、操業時期が限定的な窯跡出土の白磁片試料を対象としたTL測定において、同様の解析困難なデータが得られたことから、これを奇貨としていくつかの検討を行い、磁器製品のTL年代測定条件の改良を試みた。

## 2. 分析対象

分析対象としたのは、韓国京畿道広州市に位置する牛山里窯跡群の2地点で2005年にサンプリングした白磁片4点（Sample01～04）（図1）である。牛山里窯は朝鮮王朝前半期の主要な白磁窯の一つである<sup>(6)</sup>。測定試料のうち、Sample01～03は15世紀後半に操業したと考えられる窯跡で、Sample04は16世紀後半に操業したと考えられる窯跡で採集した試料である。また、Sample01、Sample02、Sample04は最終的な焼成（本焼き）の後に変形等の理由で灰原に廃棄された製品であるが、Sample03は施釉前の素焼き段階で破損し廃棄されたものである。

## 3. 試料採取および試料処理

### 3.1. 試料採取

一般に白磁はカオリナイトなどの粘土鉱物を主成分とする微細な粒子で構成された胎土で作られており、石英粗粒子法<sup>(7)</sup>に適した石英試料を含んでいない。よって、

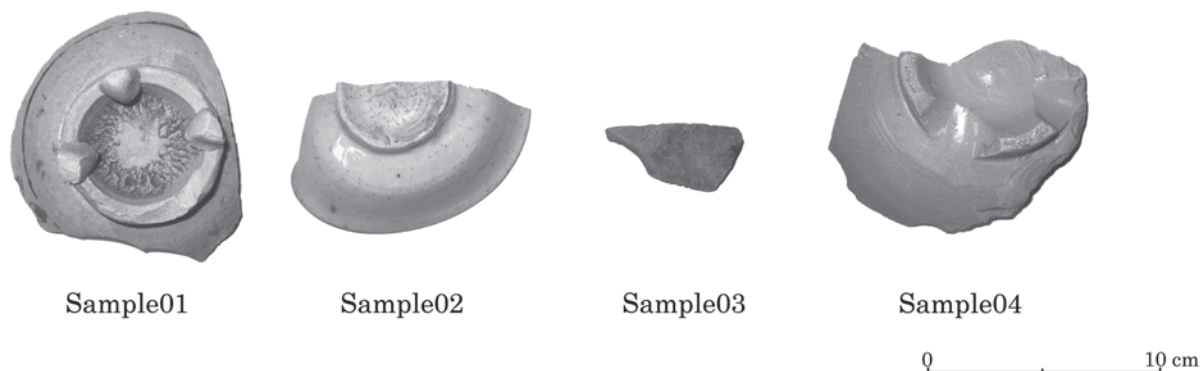


図1 測定対象試料

蓄積線量の評価には多鉱物準微粒子を試料とする準微粒子法を採用した。測定試料採取は以下の手順で行った。

試料の表面部分は露光により蓄積線量が減少しているため測定に用いることはできない。また、周辺土壌からの $\alpha$ 線および $\beta$ 線の影響を除外する目的からも表面部を除去しておく必要がある。そこで、暗室内（暗赤色灯下、照度1 lx以下）で表面から2 mmの深さの部分までを除去した。作業にはミニター株式会社製の超硬カッターを用いた（以下、超硬カッター）。表面部除去の後、超硬カッターを用いて採取時に過剰な摩擦および圧力を加えないように注意しながら磁器片胎土から粉末試料を数百mg採取した。採取後、200メッシュの標準篩にかけ、粒径75 $\mu$ m以下の試料を採取した。

### 3. 2. 試料処理

粒径75 $\mu$ m以下に粒度分けした試料を10%の過酸化水素水で16時間処理を行い、有機物の除去を行った。その後、蒸留水で洗浄し、50℃の恒温槽で乾燥させた後、炭酸塩鉱物を除去するため20%の塩酸で60分間処理を行った。洗浄後、恒温槽で乾燥させた後、300メッシュの標準篩にかけて粒径50 $\mu$ m以下の試料を採取し、測定試料とした。

## 4. 測定

### 4. 1. 蓄積線量の評価

蓄積線量の評価は、準微粒子法によるMultiple aliquot additive dose (MAAD)法<sup>(8)</sup>を適用した。MAAD法は、Natural試料（最終被熱時から測定時までの間に自然放射線のみを吸収した試料）と<sup>60</sup>Coによる $\gamma$ 線照射によって任意の線量の放射線を照射した付加線量試料を測定し、生長曲線を作成して等価線量（Equivalence dose; ED）を評価する方法である。本測定では1回の測定に2 mgの試料を用い、各線量で5回の測定を実施した。吸収した放射線量に対し試料のルミネッセンス強度が直線的に増加するなら等価線量は蓄積線量であるが、一般的に低線量領域における生長曲線の傾きは異なっている。このため補正しなければ蓄積線量は過大または過小評価されてしまうため、スプラリニアリティ（Supralinearity; S P R）補正を行わなければならない。S P R補正值の測定は、アニール（熱処理）した試料に任意の付加線量を照射して測定する。アニール条件は350℃で60分間とした。得られたS P R補正值を等価線量に加えたものが蓄積線量である。また、等価線量評価のための積算温度領域はプラトーテストにより求めた。等価線量およびS P R補正值は最小二乗法による直線回帰により評価した。

T L測定には、DAYBREAK社製のTL/OSL自動測

定装置-1150 TL SYSTEM-を使用した。昇温速度10.0℃/sec、最高温度400℃で測定した。光学フィルタはCorning 7-59およびSchott BG-39を用いた。検出波長域は350～470nmである。

### 4. 2. 年間線量の評価

本測定では、サンプリング地での直接測定が不可能であったため、年間線量の評価には間接測定法を採用した。間接測定法は、胎土や土壌中の放射性元素含有量を評価し、Adamiecらの換算式<sup>(9)</sup>を用いて年間線量を算出する方法である。

準微粒子法で評価する必要があるのは、年間 $\alpha$ 線量、年間 $\beta$ 線量、年間 $\gamma$ 線量、および年間宇宙線量である。これらの和が総年間線量となる。準微粒子法における $\alpha$ 線量率に対する粒径補正は実際には必要ないことが長友らの先行研究によって明らかにされており<sup>(10)</sup>、本研究では微粒子法<sup>(11)</sup>と同様の年間線量評価を行った。通常、土壌中における各放射線の飛程は、 $\alpha$ 線が約0.1mm、 $\beta$ 線が約2 mm、 $\gamma$ 線が約300mm程度である。試料採取に際して、表面から約2 mmの深さまで除去したため、 $\alpha$ 線と $\beta$ 線に関しては試料胎土由来の年間線量を評価する。一方、 $\gamma$ 線と宇宙線は飛程が長いので周辺環境由来の放射線量が主となる。よって、年間線量は $\alpha$ 線量および $\beta$ 線量は白磁片胎土から、 $\gamma$ 線量はサンプリング地で採取した周辺土壌から、宇宙線量については韓国は日本と同程度の緯度であることから日本の平地における平均的な値である0.15mGy/aを採用して各々年間線量を評価した<sup>(12)</sup>。

白磁片胎土および周辺土壌中の放射性元素含有量は、高純度Ge検出器を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリーにより評価した。試料を粉末状にしたもの10gを57.5×64.0×2.5mmのプラスチックケースに詰め、厚さ0.04mmのポリチャック袋に内包して測定し、独立行政法人産業技術総合研究所が提供している岩石標準試料（JG-1a、JR-1、JA-3、JB-2、JB-3）を同一条件で測定し、検量線法によりK、U、Thの含有量を評価した。また、放射線は試料に到達するまでに水にある程度吸収されるため、年代値を正確に評価するには含水率補正が必要である。白磁片および周辺土壌はサンプリング地で採取したのち速やかに重量を測定しこれを土中における基準含水状態と仮定し、その後50℃の恒温乾燥槽で1週間程度乾燥させ乾燥による重量変化がなくなった時点で乾燥重量を測定した。この含水重量と乾燥重量を用いてZimmermanの補正式<sup>(13)</sup>により含水率補正を行い、年間線量を評価した。

## 5. 結果とその検討

### 5.1. 測定結果

蓄積線量の評価結果を表1に、T L年代値の評価結果を表2に示した。また、白磁胎土および周辺土壌中のK、U、T hの含有量を表3に、それをもとに評価した年間線量を表4に示した。T L測定の結果、本焼き後に廃棄された製品であるSample01、Sample02、Sample04の3試料と、素焼き段階で廃棄された製品のSample03の両者に明確な違いが生じた。

評価されたT L年代値をみると、Sample03は $540 \pm 130$ 年前となり15世紀とする考古学的な年代観と調和的な年代値が得られているが、Sample01およびSample02のT L年代値は明らかに過大に評価されている。一方でSample04は過小にT L年代値が評価されている。図2で示したのはSample01のE D測定時のT Lグローカーブであるが、Natural試料および各付加線量試料のグローカーブのばらつきが非常に大きいことがわかる。妥当なT L年代値が評価されたSample03のE D測定時のグローカーブ（図4）と比較するとその違いは明らかである。また、Sample01は、Natural試料とNatural試料に3Gy付加した試料（N+3Gy）、およびNatural試料に6Gy

付加した試料（N+6Gy）と9Gy付加した試料（N+9Gy）のTL強度の差がほとんど見られない温度領域（225～305℃）があり（図3）、全体としても線量依存性が非常に悪いデータであることがわかる。プラトーテストの結果、320～340℃の温度領域でプラトーが見られ生長曲線の直線性も認められるものの（図6）、評価された蓄積線量は $9.50 \pm 0.65$ Gyとなり明らかに過大評価されており、T L年代値も $2380 \pm 480$ 年前と極めて古く評価されている。Sample02およびSample04についても同様の傾向が認められるため線量依存性は悪い。また、評価された蓄積線量の信頼性は低くT L年代値は考古学的な年代観と整合しないものとなっている。また、これらの試料のT L強度は、一般的な陶磁器と比べて非常に微弱である。

### 5.2. 問題点の検討

陶磁遺物として見た場合、Sample01、Sample02、Sample04の3試料とSample03の両者の大きな違いは、先述したように本焼きまで終えた製品か、素焼き段階の製品であるかの点である。この違いは、陶磁技術的観点からみると非常に大きな違いといって良い。陶磁器は粘土で作られているため成形後に乾燥させるとある程度固化

表1 蓄積線量の評価結果 (Gy)

Sample No	E D	S P R	P D
Sample01	$6.61 \pm 0.46$	$2.89 \pm 0.47$	$9.50 \pm 0.65$
Sample02	$5.09 \pm 0.77$	$0.74 \pm 1.73$	$5.84 \pm 1.89$
Sample03	$3.71 \pm 0.66$	$0.52 \pm 0.62$	$4.23 \pm 0.91$
Sample04	$2.22 \pm 0.72$	$-0.22 \pm 0.17$	$2.01 \pm 0.74$

表2 T L年代値の評価結果

Sample No	P D (Gy)	A D (mGy/a)	T L年代値(年前)
Sample01	$9.50 \pm 0.65$	$3.99 \pm 0.76$	$2380 \pm 480$
Sample02	$5.84 \pm 1.89$	$5.88 \pm 0.76$	$990 \pm 350$
Sample03	$4.23 \pm 0.91$	$7.88 \pm 0.78$	$540 \pm 130$
Sample04	$2.01 \pm 0.74$	$6.44 \pm 1.03$	$310 \pm 130$

表3 白磁胎土および周辺土壌中のK、U、T hの含有量

Sample No	K (%)	U (ppm)	T h (ppm)
Sample01胎土	$1.33 \pm 0.10$	$1.31 \pm 0.53$	$4.3 \pm 0.9$
Sample02胎土	$2.08 \pm 0.13$	$3.83 \pm 0.70$	$9.3 \pm 1.3$
Sample03胎土	$3.27 \pm 0.18$	$5.22 \pm 0.95$	$13.2 \pm 2.4$
Sample04胎土	$2.28 \pm 0.14$	$3.01 \pm 0.66$	$7.7 \pm 1.5$
牛山里15c窯跡土壌	$2.27 \pm 0.14$	$3.58 \pm 0.71$	$17.6 \pm 2.2$
牛山里16c窯跡土壌	$4.51 \pm 0.22$	$4.84 \pm 0.83$	$25.8 \pm 2.6$

表4 年間線量の評価結果 (mGy/a)

Sample No	$\alpha$ 線量	$\beta$ 線量	$\gamma$ 線量	宇宙線量	年間線量
Sample01	$0.64 \pm 0.05$	$1.35 \pm 0.14$	$1.85 \pm 0.75$	0.15	$3.99 \pm 0.76$
Sample02	$1.56 \pm 0.08$	$2.32 \pm 0.09$	$1.85 \pm 0.75$	0.15	$5.88 \pm 0.76$
Sample03	$2.25 \pm 0.14$	$3.63 \pm 0.14$	$1.85 \pm 0.75$	0.15	$7.88 \pm 0.78$
Sample04	$1.33 \pm 0.07$	$2.43 \pm 0.29$	$2.54 \pm 0.99$	0.15	$6.44 \pm 1.03$



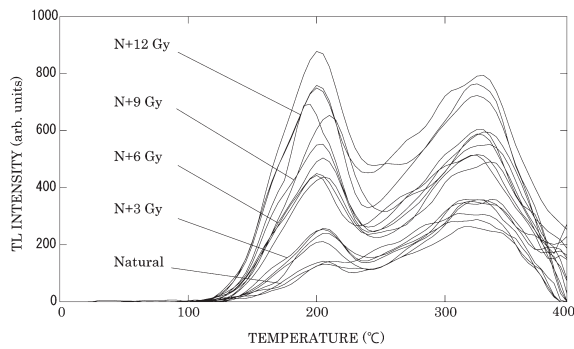


図2 Sample01のE Dグローカーブ

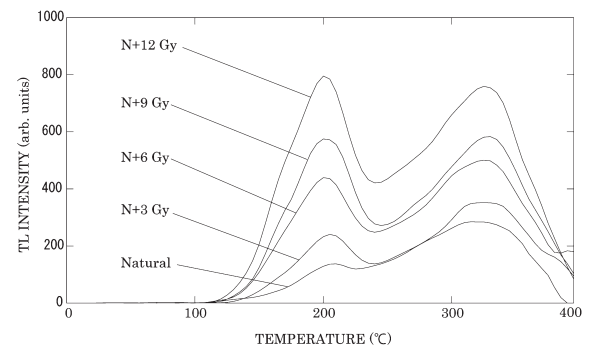


図3 Sample01のE Dグローカーブ (各線量平均)

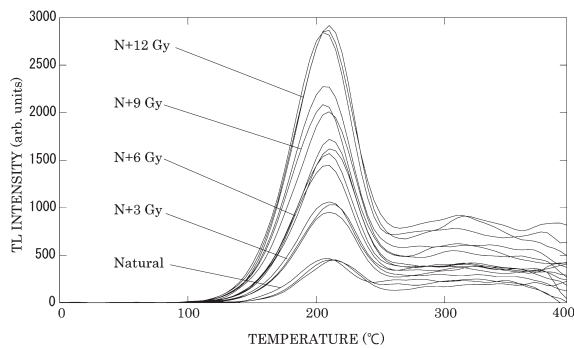


図4 Sample03のE Dグローカーブ

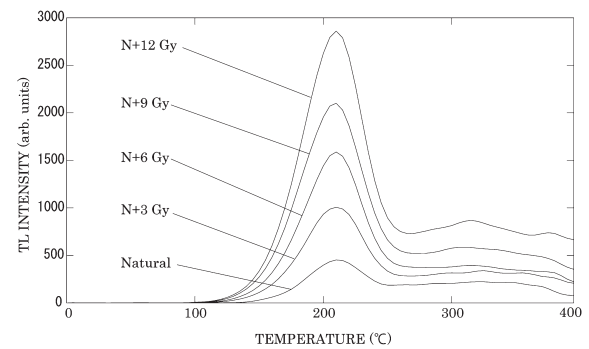


図5 Sample03のE Dグローカーブ (各線量平均)

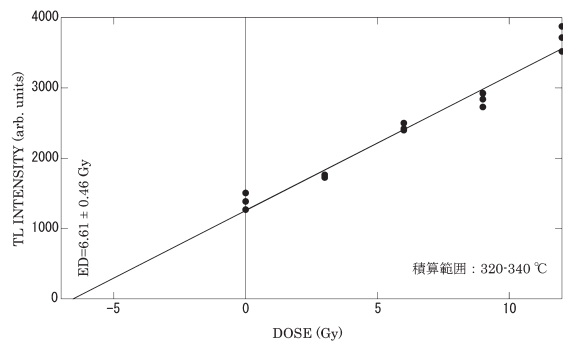


図6 Sample01のE D生長曲線

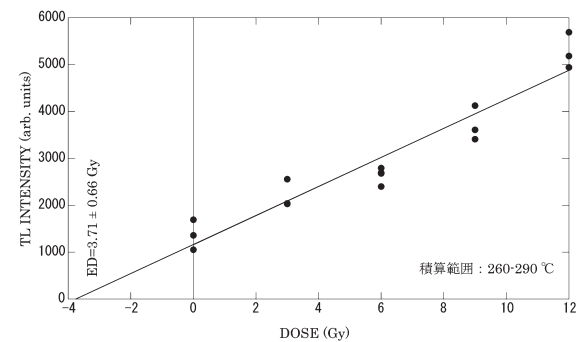


図7 Sample03のE D生長曲線

するが、この状態は非常に脆く、水分を加えると再び軟化して変形してしまう。そこで、釉薬などを施す前に一度800～1000℃程度の温度で焼成し、カオリナイト等のメタカオリン化を利用して焼き固めてその後の処理を容易にする手順が踏まれることがある。これが素焼きである。素焼きは1200℃を超える温度で行われる磁器の本焼きよりも低温である。このことから、TL分析における両者の違いはこの温度差にあると考えることが妥当であり、胎土中の鉱物が1200℃を超える高温により変化したために生じた可能性が高い。そこで、Sample01、Sample04について粉末X線回折分析を行い、試料中の鉱物組成を確認した。測定には、マックスサ

イエンス社製粉末X線回折装置M18XHF-SRAを使用し、線源はCu（モノクロメータ使用、波長1.541Å）、管電圧40.0kV、管電流100mA、走査速度1.00deg/min、発散スリット1.00°、散光スリット1.00°、受光スリット0.15mmの測定条件で行った。分析結果（図8）をみると、石英（ $\alpha$ -quartz）とムライト以外の鉱物のピークは検出されないことがわかる。また、ガラスのブロードなピークも確認される。これは、1200～1300℃に達する高温で焼成されたことにより、カオリナイトやハロイサイトのような粘土鉱物はムライト化し、融点の低い長石類は熔融してガラス化したことを示している。よって、試料中の長石類は非結晶化し、TLを生じなくなったと考えられ

る。このことをさらに検討するためにIRSL測定も実施した。多鉱物微粒子中から石英のみを抽出する石英微粒子法において、長石からのIRSL信号が非常に強いことを利用して長石由来のIRSL信号が検出されるか否かによって石英に純化されているかを確認する方法がある<sup>(14)</sup>。この考え方を応用して、本研究でもSample04についてTL/OSL自動測定装置NRL-99-OSTLを用いたIRSL測定を実施した。測定条件は、励起波長 $890 \pm 50$ nm、検出波長350~500nmとし、測定温度は60℃、プレヒート条件として160℃で60秒間を採用した。付加線量は、3Gy、6Gy、9Gy、12Gyである。測定の結果、電気的なノイズと同程度の非常に微弱なIRSL信号しか得られなかった。さらに、得られたIRSL信号はバラツキが大きく、付加した放射線量に対する依存性も認められなかった。このことから、試料中の長石類が非結晶化してIRSLを生じない状態となっていると判断できる。この結果はX線回折分析の結果を支持するものである。基本的に粘土鉱物は電子捕獲中心のエネルギー準位が浅いためTL年代測定に利用することは難しく、陶磁器を対象としたTL年代測定では胎土中の石英や長石類を測定対象としている。特に微粒子法においては長石類を主たる測定対象としており、検出波長域(350~470nm)は青色域のTLを示す長石類に適した波長域となっている。X線回折の結果が示しているように、長石類がガラス化してルミネッセンスを生じない状態となっている場合、ムライトはTLをほとんど示さないため胎土中に含まれる微細な石英が測定対象となる。磁器胎土中に含まれる石英はわずかであるため、TL強度は非常に微弱なものとなるはずである。このことはTL分析の結果とも一致する。さらに、深成岩に起源をもつ石英は基本的に紫外から青色域にTL発光がみられるため検出波長域(350~470nm)で測定することが可能であるが、火山岩起源の石英や高温を被った石英は赤色域のTL発光を示すことが報告されている<sup>(15)(16)</sup>。また、このような石英は、紫外から青色域のTLが弱くばらつきが大き

いことも指摘されている<sup>(17)</sup>。これら先行研究と今回実施したX線回折等の分析結果とを併せて検討すると、磁器のTL測定における検出波長域の再検討が必要と判断される。よって、光学フィルタをCorning 4-96およびHA15へ変更し、検出波長域を従来の検出波長域より赤色方向へ広げ380~580nmとしてSample01、Sample02、Sample04の再測定を行った。

### 5.3. 新たな検出波長域でのTL測定結果とその考察

測定条件は、光学フィルタをCorning4-96およびHA15へ変更し検出波長域を380~580nmとした以外は同じである。

Sample01のED測定時におけるTLグローカーブを図9に示した。また、Sample04のED測定時におけるTLグローカーブおよび生長曲線を図10および図11に示した。新たな検出波長域でのTL測定の結果、Sample01、Sample02、Sample04の3試料はTLグローカーブのまとまりが改善し、プラトー領域における線量依存性も向上した。また、TL強度も増大している。ただし、いずれも300℃以上の温度領域ではグローカーブが大きく乱れ線量依存性も悪化した。よって、プラトーテストの結果得られた最適積算領域はいずれも230~260℃の温度領域となった。表5および表6に示した蓄積線量およびTL年代値の評価結果は、Sample01が $540 \pm 240$ 年前、Sample02が $550 \pm 160$ 年前、Sample04が $400 \pm 140$ 年前となり、Sample04がやや若めに評価されているものの、概ね考古学的な年代観と整合的な年代値が得られている。このことから、測定対象とした白磁片胎土中の石英は赤色域に発光の中心があるTLを示すものであり、従来の微粒子法における検出波長域はこれらの試料に対して適切ではなかったと考えられる。よって、本研究で測定対象としたようなカオリンを主成分とし極めて高温で焼成された磁器製品を測定する際には、新たに設定した検出波長域(380~580nm)がより優れた測定条件と判断される。

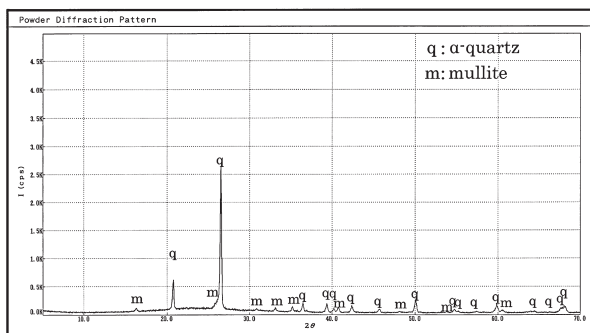


図8 Sample04の粉末X線回折結果

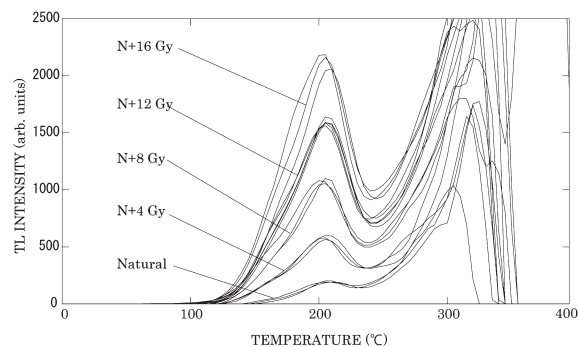


図9 新たな検出波長域でのSample01のEDグローカーブ

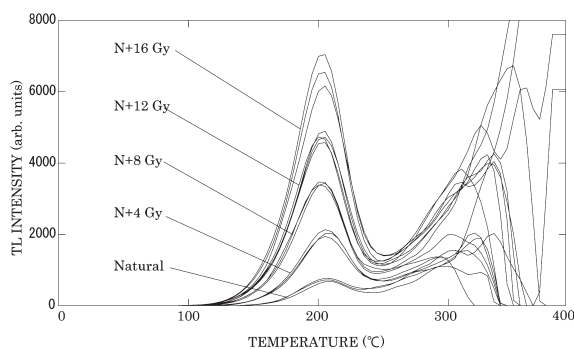


図10 新たな検出波長域での Sample04 の E D グローカーブ

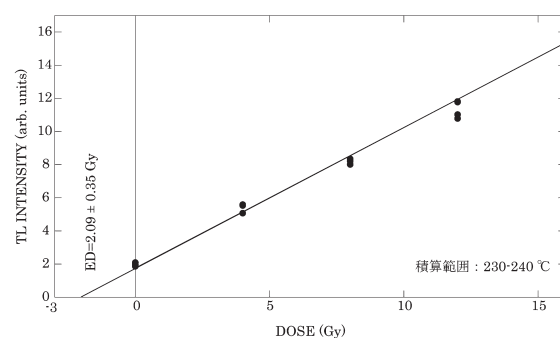


図11 新たな検出波長域での Sample04 の E D 生長曲線

表 5 新たな検出波長域での蓄積線量の評価結果 (Gy)

Sample No	E D	S P R	P D
Sample01	$3.65 \pm 0.34$	$-1.49 \pm 0.81$	$2.16 \pm 0.88$
Sample02	$3.19 \pm 0.45$	$0.07 \pm 0.68$	$3.26 \pm 0.82$
Sample04	$2.09 \pm 0.35$	$0.48 \pm 0.72$	$2.57 \pm 0.80$

表 6 新たな検出波長域での T L 年代値の評価結果

Sample No	P D (Gy)	A D (mGy/a)	T L 年代値 (年前)
Sample01	$2.16 \pm 0.88$	$3.99 \pm 0.76$	$540 \pm 240$
Sample02	$3.26 \pm 0.82$	$5.88 \pm 0.76$	$550 \pm 160$
Sample04	$2.57 \pm 0.80$	$6.44 \pm 1.03$	$400 \pm 140$

## 6. まとめ

研究の結果、新たな測定条件を採用することによって従来は蓄積線量の評価が困難であった種類の磁器試料の T L 年代測定が可能となった。未だ解決しなければならない問題も残されているが、より実効的な分析が可能となったことの意味は大きい。特に T L 法による陶磁器の真贋判定においては、基本的に測定以前の放射線履歴が不明なため正確な年間線量を評価し得ず、蓄積線量のみから作品の新旧を判定することを迫られる場合が多い<sup>(18)</sup>。このため、より正確な蓄積線量評価を可能とする本研究の成果は意義深い。ただし、すべての磁器において今回提案した測定条件が優れている訳ではなく、従来の測定条件が適している例も確認されている。また、低い温度領域における T L ピークの捕獲電子の寿命は短いため、300℃以上の温度領域でグローカーブが大きく乱れ線量依存性も悪化する点は、さらに古い時代の試料の年代測定を行う場合に大きな問題となる。よって、測定に際していずれの検出波長域を採用するかについては、試験的な測定の実施など事前の検討が必要となってくると考えられる。また、測定装置の違いや光電子増倍管の感度特性、さらに分析試料の年代や性質などの違いによって、最適な測定条件は異なってくるはずである。このため、今後さらに様々な条件下での測定と検討を重ねていく必

要がある。

## 謝 辞

本研究で測定対象とした白磁片は、韓国・公州大学校の徐廷昊博士のご厚意によって測定のお機会を得たものである。また、分析にあたり京都大学の下岡順直博士および奈良県立橿原考古学研究所の奥山誠義博士に多大なご助力を賜った。ここに記して感謝の意を表したい。

## 参考文献

- (1) S. J. Fleming (1980) Thermoluminescence Techniques in Archaeology, Oxford science publications, Oxford University Press.
- (2) Y. Ichikawa, T. Nagatomo and N. Hagihara (1978) Thermoluminescent dating of Jomon pattern pottery from Taishaku valley, Archaeometry, vol. 20, PART 2, pp.171-176.
- (3) M. J. Aitken, P. R. S. Moorey and P. J. Ucko (1971) The authenticity of vessels and figurines in the Hacilar style, Archaeometry, vol. 13, PART 2, pp.89-141.
- (4) 青木智史・長友恒人 (2007) 熱ルミネッセンス年代測定法を用いた法蔵寺鳴滝乾山窯の操業時期推定, 東洋陶磁, 第三十六号, pp.27-37.
- (5) D. Stoneham (1983) Porcelain dating. In: Third Specialist Seminar on TL and ESR Dating, V. Medjdahl, S.G.E. Bowman, A.G. Wintle and M.J. Aitken (eds). Council of

- Europe, Strasbourg, PACT 9, 1, pp.227-239.
- (6) 崔健・李鍾政・尹美淨 (1995) 廣州牛山里白磁窯址, 海剛陶磁美術館 學術叢書, 第5冊、海剛陶磁美術館・天眞庵聖域化委員會.
  - (7) S. J. Fleming (1970) Thermoluminescent dating : refinement of the quartz inclusion method, *Archaeometry*, vol.12, PART 2, pp.133-145.
  - (8) M.J.Aitken (1985) *Thermoluminescence Dating*, Academic Press.
  - (9) G.Adamiec and M.J.Aitken (1998) Dose-rate conversion factors: update, *Ancient TL*, Vol.16-2, pp.37-50.
  - (10) 長友恒人・下岡順直・小林由弥 (2004) ルミネッセンス年代測定における年間  $\alpha$  線量の粒径依存性の検討と準微粒子法への適用, *奈良教育大学紀要*, 第53巻 第2号, pp.11-16.
  - (11) D. W. Zimmerman (1967) Thermoluminescence from Fine Grains from Ancient Pottery, *Archaeometry*, vol. 10, pp.26-28.
  - (12) 長友恒人 (1999) ルミネッセンス法, *考古学のための年代測定入門*, 古今書房, pp.59-76.
  - (13) D. W. Zimmerman (1971) Thermoluminescent dating using fine grains from pottery, *Archaeometry*, vol. 13, PART 1, pp.29-52.
  - (14) 奥村輔・下岡順直 (2011) ルミネッセンス年代測定を開始するための心得 ―日本における年代研究の現状―, *地質技術*, 1, pp.5-17.
  - (15) T. Hashimoto, Y. Habuki, A. Koyanagi and K. Yokosaka (1986) Red and Blue colouration of thermoluminescence from natural quartz sands, *Radiation Measurements*, 11, pp.229-235.
  - (16) D. Miallier, M. Fain, T. Montretm, S. Pilleyre, S. Sanzelle and S. Soumana (1991) Properties of the red TL peak of quartz relevant to thermoluminescence dating, *Radiation Measurements*, 18, pp.88-94.
  - (17) M. Fattahi and S. Stokes (2003) Dating volcanic and related sediments by luminescence methods: a review, *Earth-Science Reviews*, Volume 62, Issues 3-4, pp.229-264.
  - (18) 青木智史・長友恒人 (2010) TL法による陶磁器真贋判定―その方法と適用について―, *民族藝術*, Vol26, 民族藝術学会, pp.247-257.