

## 須恵器片など焼成遺物からの 放射線誘起ルミネッセンスによる新しい古窯地推定法

橋本哲夫<sup>1)</sup>・西山笑子<sup>1)</sup>・洪徳均<sup>1)</sup>・橋本博文<sup>2)</sup>・三辻利一<sup>3)</sup>

電離放射線（ $\gamma$ 線や $\beta$ 線など）と鉱物との相互作用の結果として、各種放射線誘起ルミネッセンスが観測される。主として陶磁器原料の粘土焼成物や須恵器片を用い、光子計測法でアフターグロー（放射線照射直後の燐光、AG）の減衰観測やカラー画像（AGCI）を撮影し、AGCIに関してパソコンを利用したカラー画像解析を行った。その結果、窯を構成する粘土や陶磁器原料からのAGCIは明らかに焼成温度および産地依存性を示すことが分かった。また、須恵器片からのAGCIカラー画像解析結果からは、焼成年代には関係なく須恵器の産地に依存した群分け（グルーピング）が可能である事を確認できた。これらの基礎検討結果を基に、新潟県六日町の飯綱山古墳群10号墳から出土した須恵器片の古窯地の推定を行った結果、大阪陶邑製須恵器古窯群に属することが示唆された。

### 1. はじめに

鉱物と電離放射線との相互作用の結果として、放射線照射直後の燐光であるアフターグロー（Afterglow、以下AGと略記）や、照射後の加熱や光照射により観察される熱ルミネッセンス（Thermoluminescence、TL）および光励起ルミネッセンス（Optically stimulated luminescence、OSL）などの各種放射線誘起ルミネッセンスが観測されることが知られており、様々な物質の物性情報を得ることができる<sup>1)</sup>。これらルミネッセンスからの情報は、蓄積ルミネッセンスなどから年代や温度情報を得るので、考古学への利用が期待されている。

火山灰起源の石英粒子から赤色TL（RTL）を、著者らは世界で最初に見い出し、RTLが加熱温度や冷却速度およびアルミニウム不純物に依存することを確認すると共に、RTL年代測定法が火山活動の盛んな地域や焼成遺物からの石英粒子にとって、不可欠であることを報告してきた<sup>2-4)</sup>。

<sup>1)</sup> 新潟大学理学部：〒950-2181 新潟市五十嵐2の町8050

<sup>2)</sup> 新潟大学人文学部：〒950-2181 新潟市五十嵐2の町8050

<sup>3)</sup> 奈良教育大学：〒630-8528 奈良市高畠町

キーワード：須恵器（Sueki pottery）、放射線誘起現象（radiation-induced phenomena）、赤・青色ルミネッセンス（red and blue luminescence）、アフターグロー（afterglow）、カラー画像解析（color imaging analysis）、古窯群分け（old kiln grouping）、焼成考古遺物（burnt archaeological relic）

また、従来から報告してきた青色TL（BTL）も深成岩起源の石英粒子から観察されるので、海岸砂や砂丘砂から抽出した石英粒子からのRTLとBTLの強度比を基に、砂の起源を探る事ができた<sup>5, 6)</sup>。

更に、放射線照射直後の薄片試料をカラーフィルムに直接押し当てることによって簡便に得られるアフターグローカラー画像（Afterglow color image, 以下 AGCIと略記）が、長石の種類や被熱温度に依存して多彩な発光パターンを示すことを、私共は始めて見い出してきた<sup>7, 8)</sup>。

長石の風化生成物としての粘土を原料として製作された、土器片や須恵器・陶磁器片などの焼成考古遺物からも多彩なAG発光が得られており、ルミネッセンス現象から、使用粘土に関連した古窯地（産地）や焼成温度、更には絶対年代などの考古学的情報を得ることができる。また、AGCIには、試料調製や撮影方法がいたって簡単であること、蛍光X線発生装置以外には特別な装置を必要としないことなどの利点がある<sup>9-11)</sup>。そこで本研究では、須恵器片や瓦片などの焼成考古遺物とその原料からのAGCIを撮影し、得られたフィルム上の画像をより定量的に扱うためにパソコンを使用したカラー画像解析を行うことで、アフターグローカラー画像（AGCI）の考古学への応用を検討し、被熱温度や須恵器生産古窯地や伝播に関する興味深い知見を得たので報告する。

## 2. 実験

### 2.1 試料調製

土器片や須恵器片など、焼成考古遺物片から鉱物カッターにより粗薄片を切り出し、グラインダーを用いてアルミナ粉末により厚さ約1mmまで研磨し、平滑な面を出してAGCI撮影用試料とした<sup>12)</sup>。

焼成遺物関連の原料としては窯跡周辺の粘土それぞれについて、乾燥後150～250 μmに粒径をそろえ、400, 600, 800, 1000, 1200 °Cでの24時間の酸化雰囲気下での熱処理を行った。なお、本実験では、熱処理の際の昇温速度や冷却速度からの影響をすべての試料で一定とするために、昇温速度を10 °C/min, 冷却速度を1 °C/minとした。1200 °Cでの熱処理では、試料に焼結が見られたため、再度軽く砕き粒径を150～250 μmに揃えた。

熱処理を行った試料をテフロンシート小片で覆い、電気炉で320 °Cに加熱しながらスライドグラスではさむことによって粒子をテフロンシートに固定した。この方法により、粒子状の試料についてもAGCIの撮影が可能となった。

### 2.2 アフターグロー強度の測定とアフターグローカラー画像観測

各温度で熱処理を行った粒子状の焼成遺物関連の原料（上越市滝寺古窯周辺の粘土）について、試料約20mgを内径5mmのアルミパンに入れ、蛍光X線発生装置（理学電気, Geiger Flex SX3063P）にてX線を5分間（約3.5kGy）照射し、照射後30秒から10分間の光子数を測定した。

試料からの発光は外径10mmのライトパイプを通し、光学フィルターを経て光電子増倍管に導入され、光子計数装置（Hamamatsu C1230）にて計測された。赤色、青色領域のAGの測定に用いた光学フィルターはそれぞれR-60（Toshiba）、またはSQ Blue B-03（Kenko）とIRC-65L（Kenko）を組み合わせ、光電子増倍管はそれぞれHamamatsu R649S、R585Sである。このIRC-65Lは赤外線カットフィルターである<sup>6, 10)</sup>。

X線照射後の経過時間に対して発光減衰曲線が得られ、測定開始から3分間の光子数を積算することによりAG強度を得た。

図1に示すように、薄片試料に対して蛍光X線発生装置にてX線を5分間（約3.5kGy）照射し、照射後30秒から暗袋中で、市販のカラーネガフィルム（FUJICOLOR SUPER G ACE 800）の感光面に直接3分間押し当てることによりAGCI撮影を行った。なお、現像は通常の現像店で行った。

得られたフィルム上の画像をより定量的に扱うために、次に示すようなカラー画像解析を行い、熱処理温度や産地の違いによるAGCIの変化を観察した。

### 2.3 カラー画像解析

可視光は、色の3原色R（red）、G（green）、B（blue）に分割してデジタル値としてコンピュータに取り込める。これらの3刺激値（R・G・B値）を用いることで画像を定量的に扱うことができる<sup>6)</sup>。

ここでは、現像済みのAGCIのネガフィルムからフィルムスキャナー（Nikon, Coolscan II）で画像を取り込み、AGCIのカラー画像解析を行った<sup>6, 13)</sup>。カラーデータとして読み込む際の一画素（ピクセル、pixel）は720dpi（インチ当たりのドット数）に相当していた。得られた画像のR・G・B値（8ビットで読み込むため0から最大値は255の値となる）について、下式のように

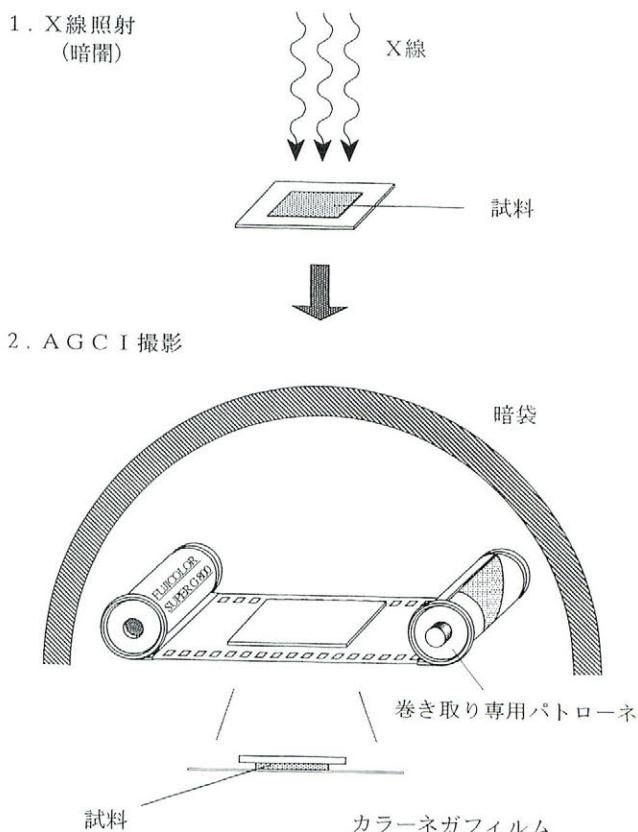


図1 アフターグローカラー画像(AGCI)の撮影手順  
Fig. 1 Photographic procedure of afterglow imaging

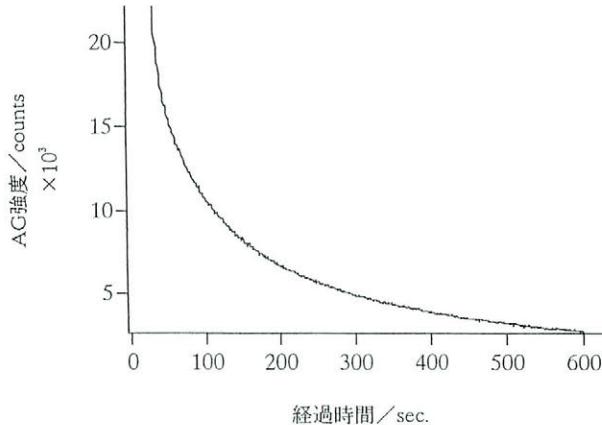


図2 赤色領域アフターグロー (RAG) の減衰曲線  
試料は滝寺古窯周辺の粘土を1000°Cで24時間熱処理し3.5Gy X-線照射し、終了時からの経過時間に関する光子計数率を表示

Fig. 2 Decay curve of afterglow intensities in red region from burnt clay  
Clay sample from Jouetsu sueki kiln site was fired for 24 hours at 1000 C and irradiated with X-rays of 3.5 Gy. The photon counting rates were plotted as a function of time elapsed from the irradiation.

それぞれのレベルとそれに対応するピクセル数の積の総和をとることで、画像全体の総発光量  $A_{red}$ ,  $A_{green}$ ,  $A_{blue}$  を求めた。ここでいうレベルとは明度に対応する値であり、したがって強度を考慮する解析となる。

$$A_{red} = \sum_i (\text{red level}_i \times \text{pixels}_i)$$

$$A_{green} = \sum_j (\text{green level}_j \times \text{pixels}_j)$$

$$A_{blue} = \sum_k (\text{blue level}_k \times \text{pixels}_k)$$

なお、AGCIが確認できない部分、およびAG発光が強く白色に近い部分からも、R・G・B値がバックグラウンドや飽和値に近い値として得られるので、ここではしきい値を下限100、上限240とし、解析範囲を限定した。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 热処理にともなうアフターグロー強度の変化

上越市滝寺古窯周辺の粘土について可視光域のAG強度を光子計数法により測定したところ、図2に示すように放射線照射後の経過時間にともなって強度が減衰する曲線が得られた。速い減衰部分はほぼ60秒の半減期を有しており、より遅い減衰成分との複合壊変を示した。

測定開始（照射後30秒）から3分間のカウントを積算し、熱処理温度（いずれも24時間）に関する変化を観測すると図3に示すような結果を得た。赤色・青色領域とともに、400～1000°Cの温度範囲では熱処理温度が高温になるにつれてAG強度が急激に上昇し、1200°Cでは極端に減少す

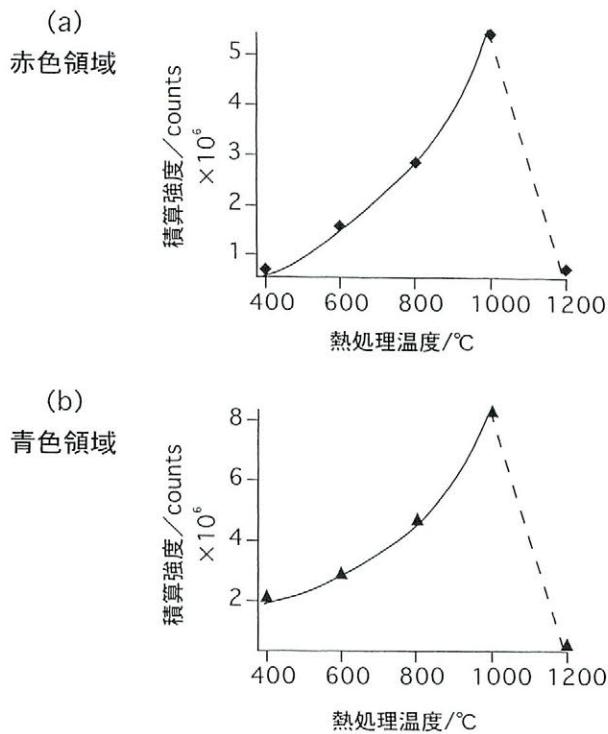


図3 赤色および青色域アフターグロー積算強度の熱処理温度依存性

試料は図2と同じでありAG減衰曲線の最初の3分間を積算した。

Fig. 3 Dependence of red (a) and blue afterglow intensities on temperatures of annealing treatment  
Caly sample is the same used in fig. 2. AGs were integrated for 3 min of AG-decay curve.

るという傾向が得られた。熱処理なしの粘土からは弱い青色AGのみが見られ、ほとんど赤色AGを示さないことからこの粘土は深成岩起源であろうと推定できる<sup>5)</sup>。なお、熱処理温度の上昇とともにAG発光強度の増加は赤色域の方が青色域より極端に大きいことが分かる。実験室での酸化雰囲気での熱処理にともなう赤色ルミネッセンス出現や増加は石英や長石でも観測してきており、深層の地質条件に比較して冷却速度が急速であり、鉱物結晶の歪みを是正できず、歪み部位が赤色ルミネッセンスの原因であろうとのこれまでの我々の提案は<sup>4, 14)</sup>、本実験での粘土でも支持された。

熱処理温度1200°Cでの急激な強度の減少は、試料表面で焼結が始まっているためと思われる。熱ルミネッセンス(TL)強度も、熱処理温度の上昇にともなって上昇し、1000°C以上の高温熱処理でTLが減少している結果と一致しており、部分的な試料の溶融ガラス化が開始されたと推定してきた<sup>8, 14)</sup>。

このように、試料に焼結が見られるまではAG強度が熱処理温度に対して敏感に変化することから、窯跡周辺の粘土を焼成し、焼成温度に関してAG強度を測定することにより、窯跡の被熱推定が可能であった<sup>11)</sup>。また、完全には焼結が進んでいない野焼きの試料(縄文土器や土師器といった

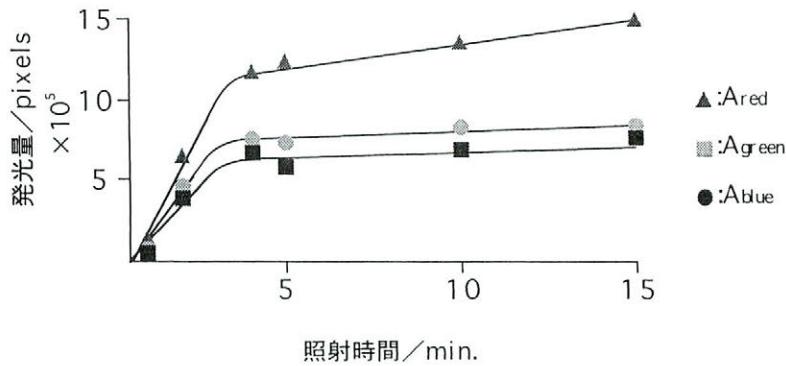


図4 須恵器片からのX線照射時間に対するAG各成分の発光量の変化  
大庭寺TG232号窯より出土の須恵器片を使用、カラー画像解析により各々の画素数でプロットした。  
Fig. 4 Change of afterglow intensities in three color regions from Sueki piece as a function of X-ray irradiation time  
Sueki piece was from TG232 kiln at Obadera at Suemura area. Each AG value was obtained from color imaging analysis of negative AG-color films.

考古遺物）についても、変化途中のAG現象を用いて被熱推定の可能性が示唆された。

### 3.2 アフターグローカラー画像観測

#### 3.2.1 X線照射時間の決定

X線照射時間を決定するために、須恵器片を使用し照射時間のみを変化させてAGCIを撮影し、カラー画像解析を行った。なお、感光時間はすべて3分とした。X線照射時間に対するR・G・Bそれぞれの変化は、図4に見られるように照射時間が長くなると総発光量がほぼ一定になった。須恵器では数分で一定に達することがわかる。

このことから、完全に総発光量が飽和していると思われる5分をX線照射時間とし、以下の実験ではすべてこの条件で撮影を行った。

またこの結果は、AGに関与する捕捉電子の寿命が、飽和時間のほぼ10分の1程度に相当する30～60秒程度であることを示唆しており、R・G・Bともほぼ同じ再結合過程を有しており、先述のAGの減衰曲線からの結果とも調和的である。

#### 3.2.2 热処理温度に対するAG発光色の変化

陶磁器原料としての市販粘土三種と上越市滝寺古窯周辺の粘土試料に対して、各温度で熱処理を施した試料を用いAGCIを撮影した結果を図5に示す。いずれの粘土試料でも、熱処理温度が高くなるにつれてAG発光色が青色から赤色領域に変化する傾向が得られた。韓国産の粘土（b）だけは黄から一部橙色へ変化しており、石灰石起源の風化物の混入が示唆された。

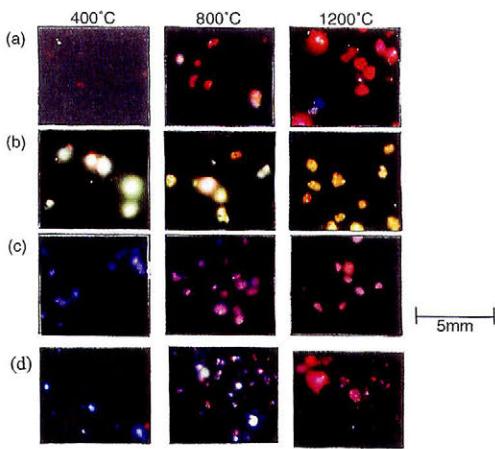


図5 4種の粘土原料の熱処理温度の上昇にともなう  
AGCIの発光パターン変化  
(a) カオリン(岩手産)  
(b) カオリン(韓国産)  
(c) 蛙目粘土(瀬戸産)  
(d) 滝寺須恵器窯周辺の粘土(上越産)

Fig. 5 AGCI patterns from ingredient of ceramics  
(a) kaoline clay from Iwate, Japan.  
(b) kaoline from Hadong, Korea.  
(c) gaerome clay from Seto, Japan.  
(d) clay distributed around sueki kiln of  
Takidera, Jyoetu, Japan

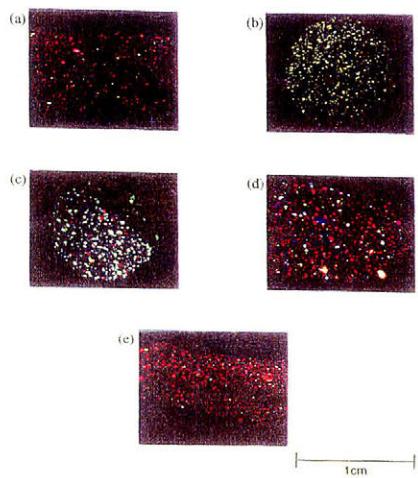


図7 各地出土の須恵器片からのAGCIパターン  
(a) 陶邑(大阪・堺市)  
(b) 朝倉(福岡県)  
(c) 正竜寺(千葉県)  
(d) 滝寺(上越市)  
(e) 飯綱山古墳(新潟・六日町市)

Fig. 7 AGCIs from sueki pottery pieces of  
different origins  
(a) Suemura kiln, Osaka,  
(b) Asakura kiln, Fukuoka,  
(c) Shoryuji kiln, Chiba,  
(d) Takidera kiln, Jyoetu,  
(e) Iizunayama ancient tomb, Muikamachi shi

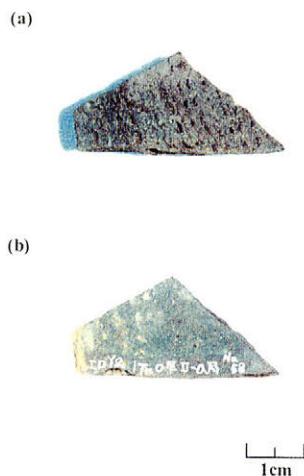


図9 飯綱山10号墳(新潟県六日町市)から出土した須恵器片の表面(a)と裏面(b)  
Fig. 9 Surface (a) and back (b) of a sueki piece excavated from  
Iizunayama ancient tomb, Muikamachishi, Niigata

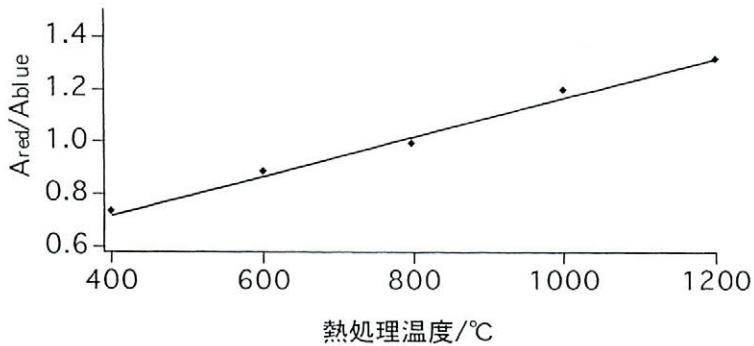


図6 焼成温度に関する総発光量 Ablue に対する Ared 比の変化  
滝寺須恵器窯周辺からの粘土を各温度で熱処理(焼成)

Fig. 6 Change of Ared/Ablue ratio in each annealing temperature  
Ared and Ablue were obtained from color imaging analysis of AGCI-films.  
Sample was the same with (d) in Fig. 5.

須恵器窯周辺の粘土からの熱処理にともなう AGCI (d) をネガフィルムとともにカラー画像解析を行った。スキャン画像全体の総発光量を用い、総発光量 Ablue と Ared の比を熱処理温度に対してプロットしたところ図6の結果を得た。熱処理温度の上昇にともない赤色の割合が増え Ared/Ablue 比が増加しており、図5の画像変化とも一致している。以上のように、ここで用いたカラー画像解析法は、半定量的にカラーの変化傾向を取り扱えることを確認でき、実際にこの解析法を古窯の被熱温度の推定に用いてきた<sup>11)</sup>。

図5で見られるように 1200 °C 以上で熱処理した後でも、得られた AGCI 画像は粘土原料に依存した特色を残している。この結果は、完全に焼結が進んだ試料片（瓦や須恵器等、高温で焼成された考古遺物）からの AGCI のカラー画像解析結果は、原料粘土の違い、換言すれば原料中の本源的な鉱物の種類と量の差異を反映していることを示唆している。

### 3.2.3 AGCI を用いての須恵器古窯の群分け

須恵器の焼成技術は韓国からもたらされ、焼結温度はほぼ 1200 °C 付近で、最終的仕上げは還元雰囲気で焼成されたと言われている。後述のように時代の異なる大阪陶邑古窯群が一群に括ることから焼成温度の影響は須恵器焼成温度付近では少ないことが予想でき、ここで取り扱った他の須恵器片もほぼ同様の焼成条件で製作されたとの仮定の基で、焼成・焼結考古遺物の产地同定や推定に AGCI の発光色の違いを利用することとした。大阪府堺市陶邑（大阪府南部窯群）・福岡県朝倉・千葉県正竜寺・新潟県上越市滝寺からなる 4ヶ所の須恵器窯跡から採取した須恵器片を使用し、これらから得られた AGCI 写真を図7 に示す。AGCI ネガフィルムを基に、R・G・B の総発光量をパソコンで算出しこれらの値を用いてカラー画像解析を行った。

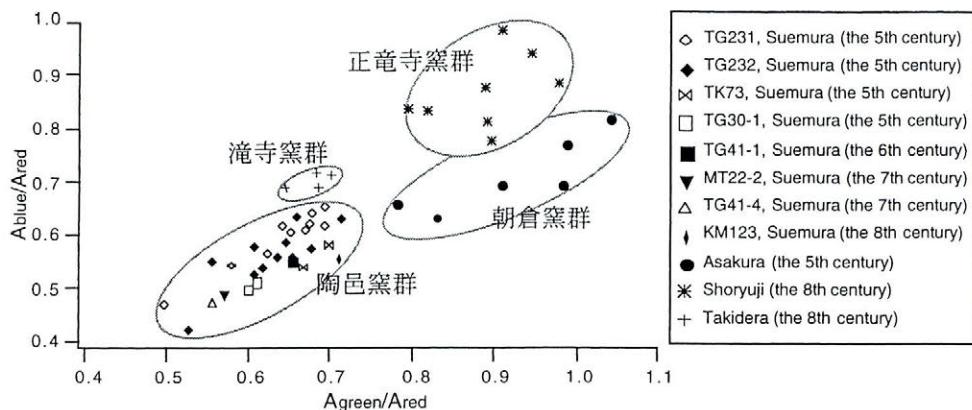


図8 AGCIパターンのカラー画像解析を用いた4個所の窯跡由来の須恵器古窯の群分け結果  
Fig. 8 Grouping results of AGCIs from four kind of different origins of sueki pottery pieces

大阪府陶邑の須恵器窯跡は近畿地方最大の窯跡であり、5世紀から8世紀にかけて大量に須恵器を生産したことが発掘調査から分かっている<sup>15)</sup>。窯跡の年代がほぼ分かっている須恵器片30片余りについてAGCIのカラー画像解析を行い、Ablue/Ared比とAgreen/Ared比に関してプロットし、他の須恵器窯群からの結果と共に図8に示す。この図において、陶邑古窯群でも初期須恵器として知られる大庭寺遺跡TG231号窯とTG232号窯から出土した須恵器片はほぼ同じ領域に属している。また時代の異なる須恵器片10片についてのプロット結果も陶邑窯跡出土のものは全て同一群に括ることができる。このことは、同一地区から産出する須恵器の粘土組成に大差がなく、焼成条件の僅かな違い等が同一群内のデータの広がりとして表れてくるのであろう。岩石薄片からのAGCIの主たる特性は、含有長石鉱物に依存することを確認してきている<sup>8)</sup>。したがって、須恵器片のAGCI特性も微少な長石鉱物が支配的であり、岩石風化に由来する粘土中に残るアルカリ長石群と斜長石鉱物群の混合割合に大きく依存しているのは確かである。アルカリ長石群や斜長石群それら自身も、それぞれカリ長石と曹長石の混合および曹長石と灰長石の混合となっており、これらが複雑にからみ合って粘土の産地に依存した、特有のルミネッセンス特性を發揮するのであろう。

三辻らが蛍光X線分析装置により元素分析し、K, Ca, Rb, Sr含量を用いた窯群間の相互識別結果を基に、大庭寺TG231号窯・大庭寺TG232号窯出土初期須恵器も含めて全ての陶邑出土須恵器片に関して、韓国産の陶質土器ではなく大阪陶邑産の須恵器であることを確認した結果とも一致している<sup>16)</sup>。蛍光X線分析による元素分析結果も、ここで開発したルミネッセンスカラー解析法も、結局は粘土に含まれる本源的鉱物としての多様な長石鉱物成分の差異を反映した結果に基づいているとの先述のことと調和している。これらの結果は、輸送手段が限定されていた古代の陶邑窯群では4世紀間に亘って、ほぼ同一の起源を有する窯付近の原料粘土を使用していたであろうとの考えと矛盾しない。須恵器同様に縄文・弥生土器も含めて、完成品の伝播の可能性はあるものの、

これら製造のための粘土の採取場所が常に古窯周辺であろうとの考古学者の推定は妥当であろう。

この仮定に基づくと、須恵器のような高温焼成考古遺物の場合、AG 発光色は原料粘土がほぼ同一であれば、窯の違いや時代の違いによって変化しないため、AGCI 画像解析法は焼成遺物の産地同定や伝播の研究に適していると言える。

図5の高温焼成物からの AGCI パターンに原料粘土依存性が見られることから、須恵器産地の違いによる AGCI カラー画像解析の差異の可能性を調べた。図7の AGCI パターンには明らかな違いが見られる。陶邑 (a) は赤色、朝倉 (b) は黄色、正竜寺 (c) は黄色と赤色、滝寺 (d) は赤色と青色が、それぞれのパターンに顕著である。それぞれ数個の須恵器片について AGCI カラー画像解析を行い、陶邑からの須恵器と同様に図8にプロットした。AGCI パターンから予想されたように各々の須恵器産地は固有の群に区分けする事が可能となった。即ち、赤色の顕著な須恵器は座標の左側に、青色が顕著な須恵器試料では右上方へと群分けでき、黄色 AGCI パターンは右下側へと群を作っている。

今回は偶然に4群がはっきりと群分けできたが、窯群を増加させれば重なり合う試料も出てくる可能性がある。しかしながら、ルミネッセンス法では、今一つ天然または既知量のテスト放射線照射後の TL 値を軸とし須恵器からの AGCI と TL からの測定結果を三次元プロットできるので、窯群毎の群分けのより細分化が可能であり、結果として未知の考古遺物の製作古窯群の推定が正当に行えるであろう。

須恵器では酸化焼成の最後の段階で、酸素供給を少なくして最後に還元焼成で処理し製品を得たことが知られている。酸化・還元焼成での AGCI の特性変化も今後の研究課題として残っている。今後この方向に向けて、取り組む予定である。

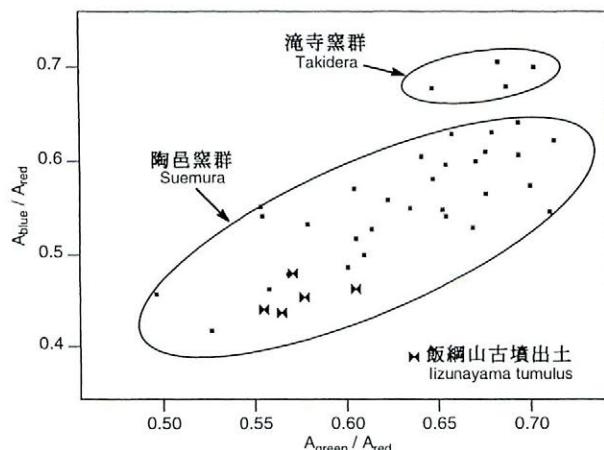


図10 飯綱山10号墳(新潟県六日町市)から出土した須恵器片の陶邑須恵器古窯群への帰属結果

Fig. 10 Provenance assignment of a sueki pottery piece from ancient tomb  
A sueki pottery piece was excavated from Iizunayama ancient tomb.

### 3.3 古墳出土須恵器片の古窯推定

新潟県六日町市飯綱山には5世紀後半に出現した古墳が現在も30基確認され、東日本屈指の規模と内容を誇る古墳群として知られている。この内、10号墳は直径約36mの2段築成の大形円墳である。1996年の調査において図9に示した須恵器片が発見され、様式から陶邑TK47型式併行の須恵器大ガメが墳頂に置かれていたと推定されている<sup>17)</sup>。

ここでは、10号墳発掘で得られた須恵器小片（図9の小片そのもの）に、開発してきたAGCIカラー画像解析法の適用を試みた。データを増やすため小片を数回研削し新しい表面を得て数個のAGCIパターンを得た。その写真の1例を図7（e）に示す。この須恵器片は、全面的に微細な赤色AGCIパターンから成っており、このパターンのみからでも（a）の陶邑須恵器に類似していることが容易に分かる。

より客観的に判断するためにカラー画像解析を適用した。図8から特に陶邑群と滝寺群のプロットを拡大し、ここでの須恵器片からの結果を付け加えて図10に示す。この図より、飯綱山古墳出土の須恵器片は、4種の須恵器古窯群中では陶邑群に属していることが読み取れる。ここでのAGCIカラー画像解析法と考古学研究者の須恵器様式からの判定は、飯綱山古墳出土の須恵器片が陶邑産の須恵器であるとの点で一致している。今後とも新潟近県を含む北陸・関東地方産の須恵器片のデータ蓄積が進めば、陶邑産の須恵器であるかどうかの判定はより確実になるであろう。

三辻らは<sup>16)</sup>東北地方南部地域から九州南部の鹿児島県にまたがる各地の5世紀代の前方後円墳から出土する須恵器に陶邑産のものが見い出されることに注目しており、祭祀道具としての須恵器の伝播に近畿地方の王と地方豪族首長との関連を探っている。今回の5世紀末と推定されている飯綱山古墳出土の須恵器片も年代的にも陶邑産の可能性と調和的であるものの、他の陶邑産須恵器の出土がほぼ前方後円墳に限定できるのと違って、大形円墳である飯綱山古墳出土である特徴を有している。

## 4.まとめ

焼成考古遺物や焼成遺物関連の原料からのAGCIの観察によって、以下のことが分かった。

1. 热処理温度によるAG発光色の変化が、AGCIにより確認できた。焼結前の温度範囲では熱処理温度にともなってAG強度が急激に変化することから、完全な焼結温度以下で焼成された土器や窯跡の粘土などの被熱温度推定が可能であることが示唆された。
2. 焼結の進んだ試料片から、陶器原料としての粘土の産地毎に異なるAGCIパターンが得られたことから、須恵器片に関してもAGCIパターンのカラー画像解析を用いて製作古窯（産地）の群分けが可能なことを見い出した。
3. AGCIカラー画像解析法を新潟県飯綱山古墳出土の須恵器片に適用したところ大阪府陶邑古

窯産である可能性を確認できた。

AGCI カラー画像解析法が、焼成考古遺物の産地推定に利用可能なことを確認できたので、より高い信頼性と操作法並びにデータ処理の簡便化に向けて、間接的な写真撮影法に替わる、高感度 CCD カメラでの RGB データ取得とデジタルデータを用いたカラー画像の解析を検討している。

## 謝辞

本研究に使用しました、大阪府陶邑窯跡群出土の須恵器片の一部を提供して頂いた大阪府教育委員会に御礼申し上げます。滝寺古窯関連の試料採取では（財）新潟県埋蔵文化財調査事業団の小田由美子さんにお世話になりました。また、実験・データ処理法開発で御助言を頂いた（株）ゼットコスマスの伊藤茂樹社長並びに秋田県教育委員会の川村幸生氏に深謝いたします。なお本研究費の一部は文部省科学研究費補助金（基盤研究 B, No.10480024）および受託研究費（東京電力（株）），と日本原子力研究所からの黎明研究（受託研究）費に依りました。記して感謝の意を表します。

(2000. 8. 7 受理)

## 参考文献

- 1) Marfunin, A. S. (1975) Spectroscopy, Luminescence, and Radiation Centers in Minerals. Spring-Verlag. Berlin & Heiderberg
- 2) Hashimoto, T., Hayashi, Y., Yokosaka, K., Koyanagi, A. and Kimura, K. (1986) Red and blue colouration of thermoluminescence from natural quartz sands. Nuclear Tracks Radiat. Measur. 11 (4/5) : 229-235
- 3) 橋本哲夫 (1993) 鉱物からの放射線由来のルミネッセンス. 応用物理 62 : 584-588  
橋本哲夫 (1997) ルミネッセンスカラー画像観測法の開発とその利用. ぶんせき 266 : 147-152
- 4) Hashimoto, T., Yasuda, K., Sato, K., Sakaue, H. and Katayama, H. (1998) Radiation-Induced Luminescence Images and TL-Property Changes with Thermal Annealing Treatment on Japanese Twin Quartz. Radiat. Measur. 29 : 493-502
- 5) Hashimoto, T., Koyanagi, A., Yokosaka, K., Hayashi, Y. and Sotobayashi, T. (1986) Thermoluminescence color images from quartzs of beach sands. Geochem. J. 20 : 111-118
- 6) Hashimoto, T., Yokosaka, K., Habuki, H. and Hayashi, Y. (1989) Provenance search of dune sands using thermoluminescence colour images (TLCIs) from quartz grains. Nucl. Tracks Radiat. Meas. 16 : 3-10
- 7) Hashimoto, T., Ojima, T., Konishi M. and Kanemaki, M. (1995) Comparison of radiation-induced colouration images, thermoluminescence, and after-glow colour images with alumini-

- um impurity distribution in Japanese twin quartzes. Radioisotopes 44 : No. 5 : 379-388
- 8) Hashimoto, T., Notoya, S., Ojima, T. and Hoteida, M. (1995) Optically stimulated luminescence (OSL) and some other luminescence images from granite slices exposed with radiations. Radiat. Measur. 24 : 227-237
- 9) 橋本哲夫・小西正芳・高橋英史・市野正廣 (1994) 石英粒子からの熱ルミネッセンス観測による窯遺跡の被熱温度推定. 考古学と自然科学 30 : 11-22
- 10) 橋本哲夫 (1999) 『考古学と自然科学』 4 年代測定学・地球科学. 2) さまざまな年代測定・判別法. (7) ルミネッセンス法. 同成社 pp.84-98
- 11) Hashimoto, T., Nishiyama, E. and Mituji, T. (2000) Thermoluminescence and afterglow color images from ancient pottery pieces. Ancient TL 18 : 5-10
- 12) 橋本哲夫・真柄美和・西山笑子 (1999) 陶磁器片からの熱ルミネッセンスカラー画像と赤色熱ルミネッセンス (RTL) 年代測定への試み. Radioisotopes 48 : 661-672
- 13) 川村幸生・橋本哲夫 (1995) アフターグローカラー画像 (AGCI) 自動撮影システムの製作 . Radioisotopes 44 : 182-186 (1995)
- 14) Hashimoto, T., Notoya, S., Arimura, T. and Konishi, M. (1996) Changes of luminescence colour images from quartz slices with thermal treatments. Radiat. Measur. 26 : 233-242
- 15) 中村 浩 (1992) 「須恵器窯跡の分布と変遷」 東京, 雄山閣
- 16) 三辻利一・岡井 剛・野中俊宏・松井敏也 (1997) 統計学の手法による古代・中世土器の产地問題に関する研究 (第一報) —5世紀代の須恵器の产地推定—. 情報考古学 3 : 1-25
- 17) 甘粕 健・橋本博文ほか (1997) 「新潟県南魚沼群六日町飯綱山古墳群 (10, 27号墳) 測量調査報告書」

# New Provenance Search of Ancient Sueki Pottery Pieces using Color Imaging Analysis of Radiation-Induced Afterglow Emission

Tetsuo HASHIMOTO <sup>1)</sup>, Emiko NISHIYAMA <sup>1)</sup>, Duk-Guen HONG <sup>1)</sup>,  
Hiromoto HASHIMOTO <sup>2)</sup> and Toshikazu MITSUJI <sup>3)</sup>

- 1) Department of Chemistry, Faculty of Science,
- 2) Department of Archaeology, Faculty of Humanities, Niigata University,  
Ikarashi-ninocho Niigata 950-2181, Japan,
- 3) Nara Educational University, Takabatake-cho, Nara 630-8528, Japan

An afterglow (AG) or radiophosphorescence was conveniently photographed by means of a commercially available negative color film immediately after the irradiation of X-ray on pottery slices. The resultant photographs, so-called AG color images (AGCIs), showed a variety of emission-color patterns dependent on kinds and origins of minerals or thermal history of pottery.

Both red and blue AG-intensities on some burnt clay ingredients were revealed in the similar increasing tendency up to 1000°C and suddenly decreasing property at 1200°C for 24 hrs using photon counting. The AGCI patterns from the burnt clay were significantly varied with annealing temperatures towards reddish wavelength side, showing intrinsic features of clay origins even at highest annealing temperature of 1200°C for 24 hrs.

Subsequently, the AGCIs of archaeological pottery slices, prepared from Sueki pottery pieces presumably burnt around 1200°C, are subjected to the color image analysis to obtain more quantitative information. The relationships of two color intensity-ratios, such as green/red and blue/red, were found to reflect evidently the origin of pottery or clay ingredients. The plotting results between green/red and blue/red gave the possibility of grouping dependent on the provenance of old kilns. On the basis of these AGCI-analyzing results, a piece of unknown Sueki, excavated in old tomb (Iizunayama-Muikamachishi) in Niigata, was tentatively assigned to be provided from Suemura area, Osaka, in prehistorical age, identified at the end of 5th century.