

熱ルミネッセンス，光ルミネッセンス，電子スピン共鳴年代測定法を利用した文化財科学研究

下岡 順直^{1)*)}

●キーワード：熱ルミネッセンス (thermoluminescence), 光ルミネッセンス (optically stimulated luminescence), 電子スピン共鳴 (electron spin resonance), 年代測定 (dating), 真贋判定 (authenticity testing), 被熱温度推定 (assessment of firing temperatures), 測定装置 (equipment)

1. はじめに

日本文化財科学会発足 30 周年にあたって，日本の文化財科学研究における熱ルミネッセンス (thermoluminescence, TL) 年代測定，光ルミネッセンス (optically stimulated luminescence, OSL) 年代測定，電子スピン共鳴 (electron spin resonance, ESR) 年代測定の利用についてまとめる。

ルミネッセンス法と ESR 法は，試料が浴びた自然放射線量の定量に基づく年代測定法である。石英や長石などの鉱物において，自然放射線の電離作用によって生じた電子は，鉱物結晶中の不純物中心などに捕獲される。捕獲された電子の量は，自然放射線による被ばく線量に比例し，TL では加熱によって，OSL では光励起によって，ESR ではマイクロ波の照射によって計測する。捕獲された電子の量は，電子の蓄積がゼロリセット（年代の初期化）されるイベントの発生時から現在までに蓄積した量（蓄積線量）である。このイベントは，TL では土器の焼成や火山噴火など，OSL では太陽光による露光，ESR では TL や OSL と同様もしくは結晶の生成である。TL や OSL 法では捕獲された電子を励起することにより解放する過程で得られる発光（ルミネッセンス）

強度から蓄積線量を見積もる。ESR 法では，試料が吸収するマイクロ波の大きさから蓄積線量を見積もる。そして，鉱物が一年間に吸収する自然放射線量（年間線量）を見積もり，蓄積線量を年間線量で割ることで年代に換算する。

本稿では，2 章は文化財科学研究におけるルミネッセンス年代測定研究史，および ESR 年代測定略史をまとめる。3 章は，TL 法，OSL 法，ESR 法の測定法と測定装置について概略を説明する。ルミネッセンス年代測定で主に使われる手法については，表 1 に示す。4 章は，2000 年以降の日本での研究動向についてまとめる。5 章は，課題と今後の展望について記述する。なお，ルミネッセンス年代測定に関する概説書は，Aitken (1985)，

表 1 ルミネッセンス年代測定で使われる主な手法
Table 1 Summary of the main different methods used in luminescence dating

略称	方法	日本語名
TL	Thermoluminescence	熱ルミネッセンス
TB-TL	Total bleach TL	残存TL差し引き法
ITL	Isothermal TL	-
OSL	Optically stimulated luminescence	光ルミネッセンス
TT-OSL	Thermally trasferred OSL	-
IRSL	Infra-red stimulated luminescence	赤外光励起ルミネッセンス
pIRIR	Post-IR IRSL	-
POSL	Pulsed OSL	-

(註) 手法の種類については，下岡 (2016b) に詳しい

¹⁾ 京都大学大学院理学研究科附属地球熱学研究施設 〒 874-0903 大分県別府市野口原 3088-176

^{*)} 現所属：立正大学地球環境科学部環境システム学科 〒 360-0194 埼玉県熊谷市万吉 1700

Aitken (1998), 長友 (1999), 橋本 (1999), 奥村・下岡 (2011), 下岡 (2016b) など, ESR 年代測定法では, 池谷 (1987), 塚本 (1999), 今井・下川 (1999) などが挙げられる。

2. 背景と歴史

2.1 日本におけるルミネッセンス年代測定研究の始まり

Kennedy と Knopff は, 1960 年に TL 現象を用いた年代測定法を考古学へ適応した研究を発表した。それは, ギリシャ土器片 16 試料の内, 13 試料のデータについて, 既知年代から 200 年とは違わないという報告であった (Kennedy and Knopff : 1960)。上述の発表は, 渡辺 (1961) によって紹介された。そして, 上述した発表のことを知った東村は, 先を越されたことにショックを受けたと回顧している (東村・長友 : 1991)。その後, 東村が渡辺とやりとりした手紙において, まだこの方法が完成されていないのだとわかった。そこで, 当時, 内地留学していた市川を誘って TL 年代測定法の開発を始めた。これが, 日本において広島原爆線量の測定に成功し (Higashimura et al. : 1963, 東村 : 1990), 世界に先駆けて非磁性 (白色) 鉱物のみを抽出した TL 測定の成功 (Ichikawa et al. : 1965) から, Fleming による石英粗粒子法の開発 (Fleming : 1970) へとつながった TL 年代測定研究の始まりとされる。

2.2 ルミネッセンス年代測定研究史

2.2.1 TL 法の開発

日本における TL 測定研究では, 原爆線量測定と併行して, 土器の年代測定が進められた。土器の試料処理では, 曝光した土器の表面は optical bleach による影響を受けているため, 表面を除去することが考案された (Tite : 1966)。さらに, TL 測定では, 測定時の試料を窒素雰囲気にするすることで, 酸素吸着による発光および不意に混入した有機物の燃焼による発光を防いだ (Aitken et al. : 1963)。市川 (1968) は, これら手法を基に B.C. 7,300 の縄文土器から弥生土器および A.D. 600 の古代飛鳥寺の瓦まで約 13 点について TL 測定した。年間線量は, α 線を低バックグラウンドのシンチレーションカウ

ンターで測定した。そして, 等価線量を α 線のカウントで割ることによって求めた年代 (Specific TL) と放射性炭素 (^{14}C) 法などから算出された考古年代の相関図を示した。これらの内, 9 試料までが考古年代とよく一致した。しかし, 4 試料は若すぎる年代を示した。この理由として, 13 試料について行われた化学分析により, 4 試料に関しては土器に含まれる放射能が強く, TL に寄与する放射線の主要成分を α 線に求めるという手法自体に問題があると結論づけた。

その後, Fleming (1970) による Quartz inclusion method (石英粗粒子法), および Zimmerman (1971) による Fine grain method (微粒子法) を用いて, 土器の TL 年代測定が始まった。長崎県吉井町橋川内洞穴の土器が測定され, 縄文前期の土器が粗粒子法で 5,901 年前, 微粒子法で 5,449 年前, 粗粒子法でそれぞれ中期の土器が 4,237 年前, 晩期の土器が 4,142 年前, 弥生土器が 1,992 年前と求められた (市川・仲川 : 1973)。奈良県天理市布留遺跡では縄文晩期土器片 2 点と土師器片 9 点, 鳥取県倉吉市服部遺跡では土師器片 6 点が TL 測定された。布留遺跡の試料は 2,563 年前と 2,286 年前, 土師器は 1,598~1,700 年前, 服部遺跡土師器片は 1,485~1,616 年前と求められた (市川ほか : 1974)。千葉県千葉市荒屋敷遺跡では, 加曾利 E 式で 4,030 年前, 阿玉台式で 4,410 年前の TL 年代が報告されている (市川・萩原 : 1976)。広島県帝釈峡寄倉岩陰遺跡においては, 縄文から平安までの各層準の土器が TL 法と ^{14}C 法で測定された (Ichikawa et al. : 1978)。その結果, 各層とも妥当な年代が求められており, 下の層になるにつれて古くなっている。また, 暦年較正されていない ^{14}C 年代よりも TL 年代の方が若干古い値を示している (表 2) のは大変興味深い。

TL 法では土器片を粉碎して測定に用いたが, 破壊分析であることから土器片の試料提供はなかなか難しかった。そこで, 土器片と共伴する焼石などを用いた TL 年代が試みられた。泉福寺洞穴では隆線文土器とともに出土した炉跡と考えられる遺構の砂岩が測定された (Ichikawa and Nagatomo : 1978, 市川・萩原 : 1978)。年間線量測定は, 砂岩をダイヤモンドカッターで 2 分割し, その間にポリエチレン袋に入れた硫酸カルシウム

表2 帝釈峡寄倉岩陰遺跡出土土器の TL 年代と¹⁴C 年代 (Ichikawa et al. : 1978 より作成)

Table 2 TL age and ¹⁴C age of pottery from the Yosekura rockshelter, Taishakukyo, Hiroshima. (The table is modified after Ichikawa et al. : 1978).

Sherd	TL 年代 (年前)	¹⁴ C年代 (yBP)
1. 2La	1,085 ± 35	820-1,750
1. 2Lb	1,590 ± 65	
1. 2Lc	1,940 ± 45	
3La	2,180 ± 110	2,300-3,100
3Lb	2,445 ± 100	
4La	2,665 ± 120	3,100-3,900
4Lb	3,590 ± 125	
5La	4,300 ± 130	
5Lb	3,935 ± 180	
6La	2,945 ± 60	
6Lb	3,385 ± 70	
6Lc	3,935 ± 100	
6Ld	4,060 ± 80	
7La	3,915 ± 295	
7Lb	4,035 ± 245	
7Lc	4,180 ± 230	
8La	4,755 ± 190	
8Lb	4,660 ± 210	
8Lc	5,280 ± 265	
8Ld	6,135 ± 245	
9La	4,575 ± 90	4,800-6,000
9Lb	5,465 ± 135	
10La	5,800 ± 115	6,800-
11La	5,900 ± 150	
12La	7,505 ± 600	
13La	7,590 ± 230	

(CaSO₄ : Tm) の熱ルミネッセンス線量計 (TLD) 素子をはさんで石膏で砂岩を結合し、遺跡の周囲の土で囲んで 0.6 m 地中に 4 ヶ月埋め込んで年間 β 線量と年間 γ 線量および年間宇宙線量を同時に測定する方法を用いた。その結果、泉福寺洞穴の焼けた砂岩の TL 年代は 12,170 ± 1,170 年前, 11,980 ± 280 年前, 11,370 ± 760 年前となり、フィッシュントラック (FT) 法で 10,800 ± 400 年前 (豆粒文土器, 焼けた黒曜石), ¹⁴C 法で 10,300 ± 200 yBP (条痕文土器, 腐植土中の炭素) と整合する結果が求められた。

その後、多数の縄文土器が TL 測定に供されてきたことから、TL 年代測定への期待度が受け取れる。大分県二日市洞穴では、縄文早期に相当する条痕文土器・押形

文土器が測定された (市川 : 1982)。花見山遺跡の隆線文土器および東方第 7 遺跡 (後に石原遺跡と改称) では、夏島式とされる撚糸文土器が TL 測定された (市川 : 1982)。

アメリカの Chodistaas 遺跡では、TL 年代と年輪年代を比較している (市川 : 1987)。Chodistaas 遺跡は、16 以上の部屋からなるアパート状のプエブロとよばれる住居址であり、この天井の丸太 100 本以上が年輪年代用試料に供された。住居址は廃棄されるときに焼かれており、TL 年代測定には床面の土器が用いられた。土器類は住居址焼失の際、完全にゼロリセットされたと考えられる。TL 測定の結果、5 点の土器の平均年代値は 664 年前となった。年輪年代は、辺材が失われていたがおおよそ A.D. 1,260~1,290 年の間であった。これら TL 年代と年輪年代は、非常に良く整合している。

旧石器時代の試料では、静岡県広野北遺跡 (市川 : 1985b)、東京都鈴木遺跡 (市川 : 1981)、宮崎県堂地西遺跡 (市川 : 1985c) などにおいて焼石や礫が TL 測定された。宮崎県下屋敷遺跡では、集積遺構の赤色化した石を TL 測定し、25,000 年前と 30,000 年前が報告された (長友 : 2002)。岩手県早坂平遺跡では、焼礫について約 23,000 年前であった (長友ほか : 2004a)。

その他では、噴火時にゼロリセットされた溶岩や火砕流堆積物、テフラ試料に対しても TL 法は有効な方法であることが確認された (Guerin and Valladas : 1980, Ichikawa et al. : 1982)。しかし、火砕流中には一般的に石英が少なく、しかも火山ガラスが大量に含まれているために、当初は石英粒子のみを抽出することが困難であった。そこで、HF 処理後に流水下で再度篩い分けをして 200 メッシュ以下になった長石やガラス成分を除去することで再現性の良いデータになった (Ichikawa et al. : 1982)。長友 (東村・長友 : 1991) は、イングランドで発表を行い、「通常の試料処理によるばらついたグローカーブを示した後、試料処理を改善したグローカーブを示したとき、見事に会場がざわめいた」と記している。群馬県黒井峯遺跡では、榛名山二ツ岳降下火山灰 (渋川テフラ) の TL 年代測定がなされた (平賀ほか : 1992)。黒井峯遺跡は、6 世紀初めの榛名山噴火による火山灰 (渋川テフラ) 堆積後にムラが形成され、6 世紀中頃の榛名

山爆発による軽石（伊香保テフラ）によって埋没したと考えられている。渋川テフラは、群馬県域の土師器および須恵器編年から推定すると、MT15 型式もしくは TK10 型式に相当する（坂口：1990）。TL 年代は 1.48 ± 0.12 ka となり、考古年代と良く合う結果であった。

上述した結果の測定は、石英粗粒子法もしくは微粒子法による付加線量法を用いて行われた。その一方で京都府芝山遺跡では、プレ・ドース法を土器に応用した年代測定が行われた（長友ほか：1987）。プレ・ドース法は、石英における低温側の TL ピークの感度変化を利用して線量評価を行う方法であり、予想される年代が若い試料に対して有効であるとされ、原爆線量評価の DS86 報告などに寄与した。芝山遺跡においては、8 世紀と考えられる須恵器と土師器が石英粗粒子法を用いて従来の方法とプレ・ドース法によって比較が行われた。その結果、測定誤差の範囲内で一致した。

年間線量評価方法では、長友・山本（1986）によって松下電気産業製の $\text{CaSO}_4 : \text{Tm}$ を用いた TLD 素子（UD-110S）による年間 γ 線量測定の簡便化が図られた。これまでは、年間 γ 線量測定に用いられてきた銅パイプに封入する TLD 素子の形態は粉末であったために異物の混入など様々な問題があったが、石英ガラスに封入した UD-110S ではそれが防げ、繰り返し利用が可能になった。1991 年には、年間線量測定における誤差について検討が行われた（長友：1991b）。

土器の真贋判定では、メキシコの硬質壺一点とタイ・バンチェン（Ban-Chiang）の陶磁器数点が試みられた（市川・長友：1981）。陶磁器の真贋判定法については、後述する。

炭窯や製鉄遺構の年代測定例も、1988 年以降増加した。奈良県長谷遺跡では、古墳時代中期の竪穴住居とともに炭窯が検出された。炭窯上部に $1,080 \pm 150$ 年前、竈に $1,560 \pm 140$ 年前の年代値が与えられた（市川：1988）。広島県大矢たたら炉跡では、土器を試料としたときの石英の抽出方法を用いた場合、焼土中の焼けている石英と焼けていない石英は区別できず混ざっているために TL グローブの再現性が悪い。そこで、鉄とともに焼かれた石英粒子は、弱い磁性を帯びていると考えられるので、通常の磁気分離後にさらに強い磁気をかけ

て分離し、焼けた石英のみの抽出に成功した（市川ほか：1978）。広島県石神製鉄遺跡では、炉の床面と側面から試料を採取している。これらは、大矢たたら炉跡と比べて焼けていない土の混入が見られず、試料処理が容易であったと言及している。古地磁気法では A.D.1,350 \pm 20 年（伊藤・時枝：1985）、 ^{14}C 法では、木炭に対して 460 ± 20 yBP（KSU-795）および 490 ± 20 yBP（KSU-796）が求められた（山田・小橋川：1985）のに対して、TL 年代では炉の底面 624 年前、側面 630 年前と求められ（市川：1985a）、手法間で誤差の範囲を超えて年代がばらついている。

島根県米屋山遺跡炭窯跡（長友：1991a）、今佐屋山遺跡（長友：1992a）、重富遺跡瓦窯跡（長友：1992b）、中ノ原遺跡製鉄遺構（長友：1993）では、TL 法と古地磁気法を、茨城県沢田遺跡竈跡（長友：1992c）および大安寺旧境内杉山瓦窯（長友：1997）では TL 年代測定が行われた。中ノ原遺跡製鉄遺構においては、TL 法、古地磁気法と ^{14}C 法が行われた。 ^{14}C 法では、炉床地下構造内木炭および北側排滓部出土木炭による年代測定と、鉄塊から抽出した炭素による加速器質量分析器（AMS） ^{14}C 年代測定が行われた。これら 2 つの ^{14}C 年代測定結果はほぼ整合したが、TL 法および古地磁気法による年代は、 ^{14}C 年代よりも古い年代が求められた（山田ほか：2001）。

窯跡や土器、焼石、焼土など被熱した遺構および遺物など文化財科学研究における温度推定については、古地磁気法やメスバウワー法、X 線回折（XRD）分析などを用いて様々な試みがなされてきた。TL 法および ESR 法を用いた被熱温度推定法では、市川ほか（1979）が、川砂と砂岩風化土を用いた基礎実験を行い、焼成温度と TL における低線量域の線量依存性が関連する可能性を示唆した。1994 年には、富山県石太郎遺跡および福島県太平遺跡で検出された窯跡の温度推定（橋本ほか：1994）が行われた。奥山・長友（1998, 1999）は、焼土と焼石の被熱温度推定を報告している。2000 年には、福島県上ノ台遺跡で検出された竪穴住居の地床炉および土坑の被熱温度推定と、ゼロリセットが検証された（大和地質研究所：2000）。2000 年以降の被熱温度推定法の進展については、後述する。

2.2.2 OSL 法の開発

池谷・鶴久森 (1979) が開発したレーザー励起発光年代測定は、OSL 法の先駆けとされる。Huntley ほか (1985) は、堆積物から抽出した石英の緑色光励起による OSL 年代測定を行い、その有効性を示した。Godfraysmith ほか (1988) は、太陽光による石英と長石の TL および OSL 信号の減衰について観察した。その結果、OSL 信号は数分間太陽光を照射するとゼロリセットするが、TL 信号は長く残ることがわかった。Hütt ほか (1988) は、長石の赤外光励起ルミネッセンス (infra-red stimulated luminescence; IRSL) 年代測定を開発した。OSL を検出する場合には、石英では青色光もしくは緑色光で励起するために、励起光を除外するように検出波長領域を設定しなければならない。しかし、励起光が赤外光の場合は励起光と検出光の波長が重なることがなく、検出波長を全可視光領域に設定することができた。また、Hütt ほか (1988) は、カリ長石を用いて IRSL 発光メカニズムについても考察した。

Lang and Wagher (1996) は、ドイツ新石器時代の考古遺跡堆積物の IRSL 年代測定を行った。年代の過小評価を改良するために、青色の狭い検出波長領域と測定前の加熱処理 (プレヒート) 条件 220℃ で 5 分間を提案し、信頼できるデータを得た。この試料で興味深いことは、遺跡堆積物の年代とピットの年代を求めることで、セトルメントを復元したことである (図 1)。

Porat and Ronen (2002) は、イスラエル Evron quarry 遺跡の遺物を含む堆積物においてカリ長石を用いた

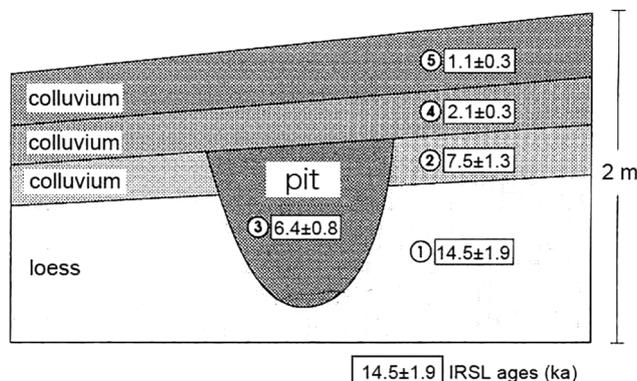


図 1 遺跡堆積物の模式セクション (Lang and Wagner : 1996 より引用)。各層準から IRSL 年代が得られている。

Fig.1 Schematic cross-section of the archeo-sedimentary sequence (modified from Long and Wagner, 1996). IRSL ages were obtained for various sediment layers and the pit.

IRSL 測定によって、330~630 ka の年代を求め、ESR 年代との比較を試みている。

南アフリカの南ケープ海岸に位置するブロンボス洞窟では、装飾用に穴のあけられた貝殻やオーカーが出土した。同じ出土層から見つかった焼けた石器 5 点の TL 年代 (平均) は 77 ± 6 ka, 装飾用具出土層の OSL 年代は 75.6 ± 3.4 ka の年代が得られた (Henshilwood et al. : 2004, Jacobs et al. : 2006)。

日本では、1995 年に長友ほかによって OSL 年代測定法の基礎研究が開始された (長友 : 1996, 長友ほか : 1997, 1998, 2000, 下岡・長友 : 2001)。2000 年以降の動向については、後述する。

2.3 ESR 年代測定略史

アパタイトと石灰岩の ESR 信号を用いて放射線量を見積もることで年代測定が可能であることを、Zeller (1968) によって示唆された。『考古学と自然科学』第 3 号には、東村 (1970) が、ESR 法の産地分析と年代測定への可能性を記述している。

ESR 法の年代測定としては、Ikeya (1975) による秋芳洞鍾乳石の測定によって確立された。ESR 法の年代測定としての原理は、ルミネッセンス法と同様であり、貝や珊瑚、骨や歯牙、テフラなどの年代測定にも適応可能であることが示された (塚本 : 1995, 1999)。

ESR 年代測定は当初、化石人骨や獣骨に適用されたが、歯牙のエナメル質を用いた年代測定が ESR 年代測定の中でもっとも適した試料であり、化石人骨の歯牙を用いた年代測定が多く行われている (塚本 : 1999)。しかし、歯牙の場合、埋没期間にウランの吸着が起こることから年間線量に変化する。そのため、埋没の初期にウランが吸着したモデルと、現在まで連続的にウランが吸着していったという二つのモデルから年代を算出するのが一般である (池谷 : 1987, 塚本 : 1999)。

日本の文化財科学研究では、ESR 法は年代測定よりも石材の産地推定に応用されてきた (例えば、Warashina : 1992 など)。また、藁科 (1981) は縄文土器や土師器の胎土に含まれる粘土鉱物に着目し、ESR 信号の波形と強度の変化を用いた被熱温度推定を行った。Toyoda and Ikeya (1993) は、焼石から抽出した石英中の E_1' 中心に

着目し、 E_1' 中心と被熱温度の相関から求める被熱温度推定法を考案した。2000年以降のESR法による被熱温度推定については、後述する。

3. 原理と装置

3.1 対象試料と試料採取方法

TL法では、土器や焼土、焼石、火山灰などから抽出した石英や長石を主に対象とする。OSL法は、レス(黄土)などに適しているが、一般的に遺跡堆積物などにも応用可能であり、堆積物から抽出した石英や長石を用いる。ESR法では、TL法やOSL法で用いる試料のほかに、歯

牙のエナメル質や貝殻、鍾乳石などにも有効である。なお、歯牙のエナメル質によるOSLを用いた線量評価法の研究も始められている(下岡・長友:2006)。

土壌堆積物や火山灰などの試料採取は、直射日光が当たらないように十分注意して行う必要がある。これはOSL現象と同じ原理で、試料が光にさらされると、それまでに蓄積された電子が失われてしまうからである。そこで、試料に直射日光を当てないために、試料採取には通常2種類の 방법이用いられる(図2)。一つは、塩化ビニール製もしくはステンレス製のパイプを採取場所に打ち込んで行う方法である(図2 a)。もう一つは、暗幕で採取場所を遮光してから光が当たっている試料表面部分をさげ、遮光のできる容器に試料を採取する方法である(図2 b)。

暗室に搬入できるサイズの試料であれば、暗室内で曝光した表面部分を除去することもできる。土器や焼土の場合は、暗室でグラインダーを用いて試料の表面を1 mm程度削り落とし、光の影響を受けている部分を取り除く。焼石では、ダイヤモンドカッターで岩石表面を切り落とすか、フッ化水素酸溶液を用いて表面を溶解して、光の影響を受けている部分を取り除く。陶磁器片などの場合は、超硬カッターを用い、過剰な摩擦と圧力を加えないようにしながら500 mg程度の粉末試料を削り出す(青木ほか:2010a)。

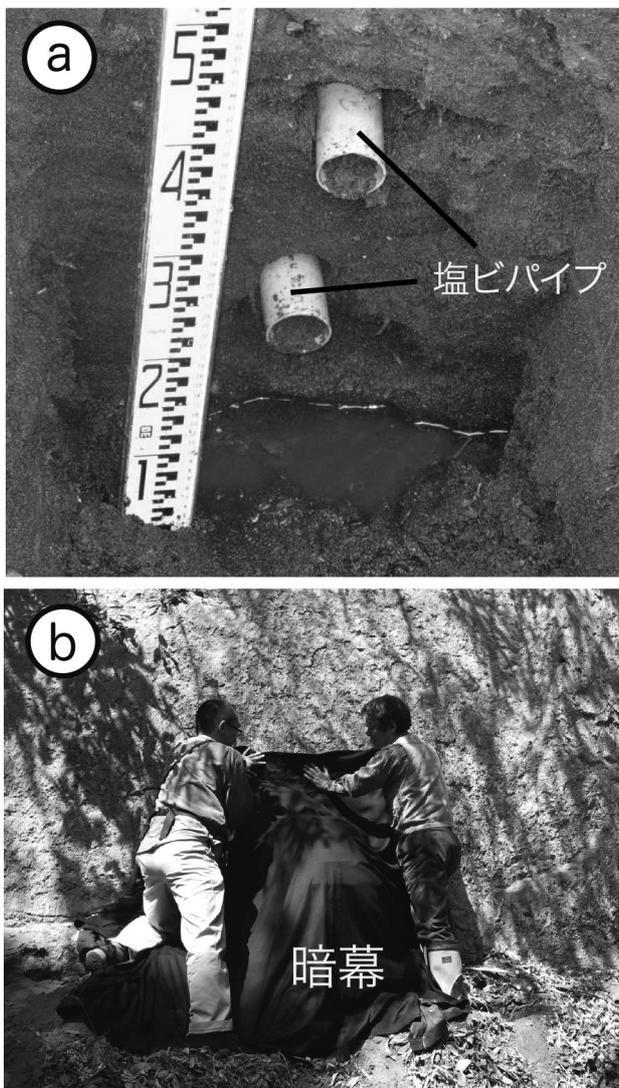


図2 ルミネッセンス年代測定のための試料採取方法。(a)塩化ビニール製、もしくはステンレス製パイプを採取場所に打ち込む方法(b)暗幕で遮光した状態で、光が当たっている表面部分を避けて採取する方法

Fig.2 Methods of obtaining samples for dating: (a) drive the pipe into the cross-section; (b) covering with an opaque cloth, where the sample was collected after the top of the surface layer had been removed.

3.2 測定装置

ルミネッセンス測定では、デンマーク国立Risø研究所で開発された測定装置が世界の多くのラボに普及している。日本では、産業技術総合研究所や奈良女子大学、東濃地科学センターなどでRisø製の測定装置を用いるラボもあるが、測定装置を自作しているラボも多い。自作している要因として、Risø製の装置は測定データの解析ソフトが充実している一方で自作のほうが安価でいろいろと改良しやすいことや、Risø製の装置は ^{90}Sr β 線源を装着しているが、日本では放射線源の管理に法律上厳しい制約があるため導入が容易ではないことが挙げられる。そこで、自作の装置では β 線源の代わりにVarian製VF-50などX線管球を装着するなどの工夫(Hong et al.:2005)がとられている。ちなみに市販の測定装置に

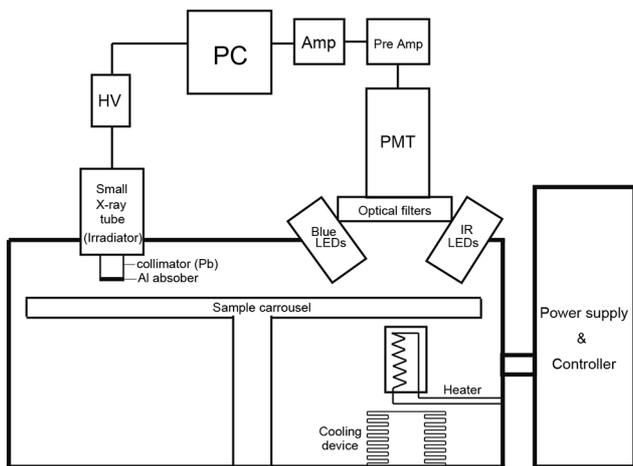


図3 OSL/TL自動測定装置の模式図

Fig.3 Schematic diagram of equipment used for OSL and TL measurements.

は、Daybreak 製（例えば Bortolot : 2000）や lexsysg 製（Dornich et al. : 2012, Richter et al. : 2013），nanoGray 製（小畑ほか : 2015）などがあるが、これら装置の測定部のメカニズムとしては大差なく、複数試料を自動測定するために試料をセットする部分が異なる。筆者が現在使用している装置を図3に示す。この装置（NRL-99-OSTL 2-KU）は、長友ほか（2001a, 2007a）によって設計製作された装置（NRL-99-OSTL）を基にして新たに製作した装置である（下岡ほか : 2015）。測定装置の製作に関しては、後述する。

ESR 測定には、Bruker 製のものもあるが日本では主に JEOL Resonance 製の測定装置が市販されている。ESR 測定装置は向かい合う2つの磁極の間にある空洞共振器に試料を入れて、磁場を変化させながらマイクロ発振器で発生させたマイクロ波を試料に照射して ESR 信号を得る（塚本 : 1995, 1999, 今井・下川 : 1999）。

3.3 測定方法

3.3.1 蓄積線量の評価

蓄積線量の評価法には、付加線量法と再現法が用いられる（Aitken : 1985）。付加線量法は化学分析で行われる標準添加法と同様の方法で、試料に一定量の放射線を段階的に加えてルミネッセンス信号もしくは ESR 信号を測定して作成した生長曲線を外挿する。再現法は、人為的ゼロリセット後、放射線を照射した試料を測定して作成した検量線に、測定した試料のデータを内挿する。

表3 SAR法によるOSL測定手順

Table 3 SAR protocol for estimating the paleodose using OSL measurement.

Step	Treatment	Observed
1 ^(a)	Give dose, D_i	-
2	Preheat (200–300° C for 60 s)	-
3	Stimulate for 100 s at 125° C	L_i
4	Give test dose	-
5	Cut heat (160–200° C)	-
6	Stimulate for 100 s at 125° C	T_i
7	Stimulate for 40–100 s at 280° C	-
8	Return to 1	-

^(a) Step1: For the natural sample, $i = 0$ and $D_0 = 0$

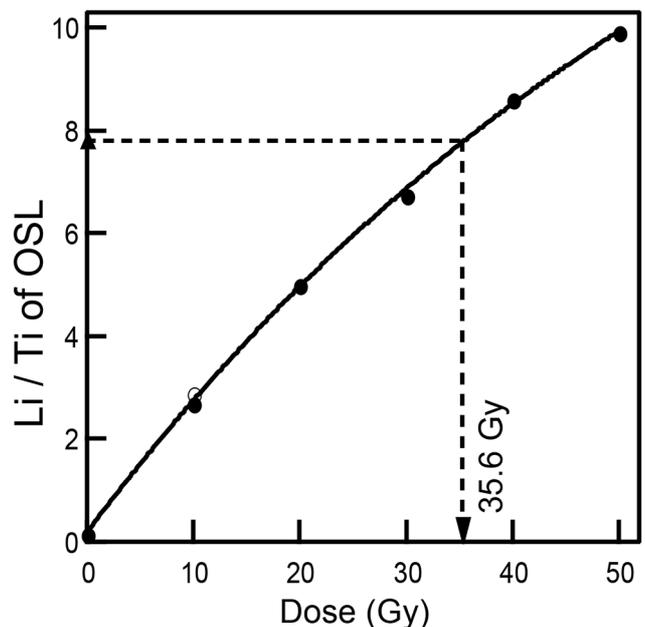


図4 SAR法で求めた生長曲線

Fig.4 Growth curve of an aliquot using SAR protocol.

従来は、試料を複数の aliquot（試料皿）に分画して行う multiple aliquot 法が主流であったが、single aliquot regenerative-dose (SAR) 法（Murray and Wintle : 2000）が開発されてからは、1つの aliquot（試料皿）で放射線照射とルミネッセンス測定を繰り返す方法が主に用いられている。SAR法によるOSL測定手順について、表3に示す。繰り返し測定の場合、測定前の加熱処理（プレヒート）や測定時の加熱などによる感度変化（照射量に対する発光量の変化）が生じるため、感度変化の補正が必要である。そこで、毎回測定後に一定量の放射線量（テストドーズ）を照射して測定する。そして、ルミネッセンス強度（ L_i ）をテストドーズのルミネッセンス強度（ T_i ）で規格化（ L_i/T_i ）して生長曲線にプロットする（図4）。なお、プレヒートやカットヒートの温度条件はテ

ストを行い事前に設定する。また、繰り返し測定による感度変化やルミネッセンス信号の回復現象の有無を調べるテストを行い、精度良く測定されているか試料皿ごとに確認する。

OSL 測定では、測定対象とする鉱物によって励起光源の波長を選択する。一般に、石英では青色光を用い、長石では赤外光を利用する。単に OSL 年代測定と記述されている場合は石英を用いた測定の場合が多く、長石の場合は、IRSL 年代測定と記述される。

近年では、post-IR IRSL 測定 (Buylaert et al.: 2009) が考案された。これは、通常常温で行われる IRSL 測定後に、測定温度を上げて再度 IRSL 測定することで得られた IRSL 信号を用いて線量応答曲線を作成して蓄積線量を求める方法である。post-IR IRSL 法を用いると、長石のルミネッセンス測定の多くで蓄積線量の過小評価の原因になると考えられている、熱的には十分に安定であるはずのルミネッセンス信号が短時間に消滅する異常減衰 (anomalous fading) 現象 (Wintle: 1973) を抑えることができるので、より多くの長石試料にも適応可能になると現在脚光を浴びている。しかし、必ずしも異常減衰現象を完全に抑えることもできないという結果も得られており、すぐには実用化できないだろう。

3.3.2 年間線量評価

年間線量評価には、TLD 素子や NaI シンチレーションカウンターを用いて遺跡現場で直接的に放射線量率を測定する方法 (直接測定法) と、研究室で半導体検出器や放射化分析、ICP-MS などを用いた化学分析によって放射性元素濃度を求め、換算式を用いて年間線量を算出する方法 (間接測定法) の 2 種類が挙げられる。本稿では、直接測定法の TLD 素子を用いた方法と、間接測定法の半導体検出器を用いた方法について記述する。

① 直接測定法

TLD 素子を用いた直接測定法では、年間 β 線量と年間 γ 線量および年間宇宙線量を別々に測定して評価する。

年間 β 線量では、まず採取した試料を乾燥させ、タングステンカーバイド製乳鉢で 50~75 μm 程度に粉砕する。次に、粉砕した試料を直径 50 mm、厚さ 5 mm のア

ルミニウムリングにプレス機を用いてプレス成型する。これを 2 枚作成し、 α 線の影響を避けるために厚さ 3.5 mg/cm^2 のポリエチレンシートを介して、350 $^{\circ}\text{C}$ で 15 分間のアニール (加熱) 処理をした TLD 素子を薄く一層に広げて挟み込む。これを 1 辺 150 mm の鉛箱の中に数週間程度おいた後、取り出して TLD 素子の TL 強度を測定し、校正した TL 強度と比較して年間 β 線量を求める。

年間 γ 線量および年間宇宙線量は、前述の長友・山本 (1986) の方法である。長さ 500 mm、直径 10 mm、厚さ 1 mm の銅パイプ内の先端に 350 $^{\circ}\text{C}$ で 15 分間のアニール処理をした TLD 素子カプセルをセットし、測定を行う地層にそのパイプを直接打ち込む。この方法では、年間 γ 線量とともに年間宇宙線量を同時に測定することができる。埋設してから約 3 ヶ月後に取り出して TLD 素子カプセルの TL 強度を測定し、年間 γ 線量および年間宇宙線量を求める。

② 間接測定法

土壌試料の場合、乾燥しないようにポリチャック袋に採取して持ち帰る。なお、このときの試料は、光に当たっていても大丈夫である。試料は乾燥前後の重量を測定して、試料の含水比を求める。乾燥した試料は定量して密閉できる容器に封入し、低バックグラウンド鉛と無酸素銅で遮蔽した高純度ゲルマニウム (Ge) 半導体検出器を用いて試料から放出される γ 線を計測する。計測した γ 線スペクトルから求めた U, Th, ^{40}K の濃度から換算式 (Adamiec and Aitken: 1998) を用いて α 線、 β 線、 γ 線の各年間線量に換算する。また、含水比補正 (Zimmerman: 1971) を行う。

4. 研究の進展状況

2000 年以降に日本文化財科学会で発表された話題や会誌『考古学と自然科学』掲載論文を中心に、測定装置、年代測定、真贋 (新旧) 判定、被熱温度推定、その他の項目に分けて、日本における研究動向をまとめる。なお、下岡・山田・奥野 (2013) によって、2000 年以降 10 年間におけるルミネッセンスおよび ESR 研究法の進展がまとめられている。

4.1 測定装置

2000年以降の日本におけるルミネッセンス年代測定研究では、前述した理由で測定装置の開発が行われてきた。橋本ほか(2001)や中川ほか(2002)は、赤色熱ルミネッセンスを効率良く検出できる装置の開発を行った。そして、赤色領域に高感度なマルチアルカリ光電面の光電子増倍管(PMT)を採用した。ノイズ減少のため、PMTを -20°C の冷却槽の中に設置し、より検出効率を高めるためにガラス製ライトガイドを光電面前に設置した。さらに、放射線照射を放射性元素による線源に替えて小型のX線発生装置を採用した。なお、『考古学と自然科学』第55号に上梓された「熱および光励起ルミネッセンス観測による焼成考古遺物の蓄積放射線線量評価と石英からの赤色熱ルミネッセンス年代測定の重要性」(橋本:2007)は橋本の研究成果がまとめられている。

長友ほか(2001a)は、OSL測定において捕獲された電子の光エネルギーによる励起の際、熱エネルギーによるアシスト効果を抑えることを目的に、 -150°C まで冷却可能な試料台を兼ね備えた測定装置を製作した。また、 ^{90}Sr - ^{90}Y β 線源を装置に装着したことで、繰り返し測定を可能にし、少量の試料でも線量評価を可能にした(長友ほか:2007a)。

以上に挙げた日本における測定装置の大きな利点は、①小型X線発生装置を線源として利用することで、装置の扱いが簡便になった。②SAR法など繰り返し測定は、試料皿ごとのばらつきを少なくすることに着目しているが、出土遺物など貴重な文化財を対象とすることから、測定試料の量を少なくすることができた。笹田ほか(2007, 2008)は、縄文時代草創期の土器片を用いたTL測定を行い、土器の小片から年代情報の抽出に成功した。

長友ほか(2007b)は、蓄積線量評価に適した放射線量依存性を観察するために、4本のPMTで同時に4つの検出波長領域のデータを取得する装置を開発した。そして、石英と長石の鉱物標本を用いてTLの線量依存性を確認した後、旧石器遺跡に関連した火山灰(テフラ)の蓄積線量を波長別に評価を行い、TL発光色と放射線量依存性について議論している。

4.2 年代測定

4.2.1 TL年代測定

TL年代測定では、様々な試料に適用されている。

長友ほか(2001b)は、カンボジアのブレアンコール期およびアンコール期の塔の建造年代推定のために、構成するレンガの年代測定を行い、8世紀後半の結果を求めた。長友・西村(2004)は、年間線量が変化していることを考慮して唐招提寺金堂基壇の磚の年代を推定した。磚は敷石直下より検出されたことから、修理の時に敷石が置かれた時を境として磚周囲の幾何学的な配置が変化しており、それに伴う年間線量の変化を計算した。そして、文献に挙がる修理の年代と磚が敷かれた年代の関係が説明できる結果を導いた。同様の手法を用いて、青木ほか(2011)は新薬師寺旧境内出土瓦片について、年代推定を行った。その際、屋根に拭かれていた時と土中に埋蔵後では年間線量が変化することを考慮する必要があると述べている。

青木ほか(2005)は、法蔵寺鳴滝乾山窯址出土窯道具と窯壁の年代測定を行った。その結果、美術史で考えられている操業時期と整合する結果を得た。また、青木ほか(2010a)は、唐三彩陶片のTL年代測定も試み、考古学的操業年代観と良く整合する結果を得た。

伊庭・橋本(2006)は、新潟現明嶽遺跡の縄文土器片、焼石、炉跡焼土の赤色TL年代測定を行った。結果は、土器形式が想定する年代に合う年代も得られているが、それよりも若い年代になった土器片もあった。伊庭・橋本(2006)は、測定回数を増やすことにより真の年代値に近づくのではないかと考察しているが、縄文土器など蓄積線量が比較的小さい試料の赤色TL測定ではバックグラウンドとなる黒体放射の影響が大きく、赤色TL測定の難しさを表しているのではないかと考える。

寺院の瓦片の赤色TL年代測定は、新薬師寺や西隆寺からとされる瓦片を用いて行われた(橋本ほか:2003, 中田・橋本:2005, 橋本・玉城:2006)。しかし、新薬師寺旧境内では、2008年に創建当時の基壇跡とされる遺構が見つかった(金原ほか:2012)ことから、上記対象試料の出自履歴は不明確であり、今後の検証が必要である。西村ほか(2006)は、大安寺西塔基壇跡の発掘調査において出土した瓦片についてTL測定を行い、火災に

よる罹災年代の検討を行った。

4.2.2 OSL 年代測定

OSL 法および IRSL 法では、考古遺跡に関連したテフラや遺跡堆積物を対象とした年代測定が行われている（下岡ほか：2003）。テフラでは、遺跡の鍵層となる試料に対して、IRSL 法と TL 法を併用して堆積状況による年代推定の違いについての言及（下岡・長友：2011, 長友ほか：2005a）や、 ^{14}C 年代との比較がなされた（下岡ほか：2007, 2009）。遺跡堆積物では、熊本県大野 E 遺跡、宮崎県後牟田遺跡について、検出されたテフラ層や遺物包含層を測定した（長友ほか：2002a）。長友ほか（2004b）は、中国の河北省泥河湾地域において、後期旧石器時代から新石器時代までの遺跡堆積物について年代測定した。韓国では、臨津江・漢灘江流域溶岩台地上に立地する旧石器遺跡について年代測定を行い、遺跡形成過程を検証した（長友ほか：2005b）。その他、インダス文明に関連したインド北西部に位置するガッガル川流域砂丘砂の SAR 法による OSL 年代結果が報告され、文明衰退の要因と考えられてきた砂丘の拡大が、インダス文明成立以前に現在と同じ規模ですでに存在していたことが証明された（下岡ほか，2011, Shitaoka et al.：2012）。

蓄積線量の評価法では、OSL データと比較できる Total bleach（残存 TL 差し引き）法について、長友ほか（2008a）と下岡ほか（2008）はその有効性を改めて確認した。multiple aliquot 法と single aliquot 法による蓄積線量評価の比較では、遺跡堆積物を用いて試みられ、レス（黄土）試料のようによく露光されている試料では、符合する結果が得られた。また、関東ロームを試料とした場合は、その比較により生物擾乱などの影響が確認できたことから、堆積物の続成作用などを評価するためにも有効な手段であるとしている（長友ほか：2008b）。

4.3 真贋（新旧）判定

TL 法による陶磁器の真贋判定法は、近現代に作られた贋作もしくは模倣品か、古物かの新旧を評価する方法である。市川・長友（1981）以来、陶磁器など美術品の年代測定や真贋判定は、鋳型の范への適応例（長友ほか：1999）などあるが、手法として大きな進展は見られなかつ

た。特に、真贋の判定基準は、TL 発光強度の大きさと蓄積線量の評価によるところが大きく、年間線量は推定値を用いることが一般的であった。これは、年間線量を評価できるだけの試料量の採取が難しいことが大きな要因である。そこで、長友・青木（2002b）と青木・長友（2003）は、軟シリコン樹脂を使って小型の陶磁器と同じ型を作成し、Ge 検出器を用いた γ 線測定の際に試料と標準試料を同じ幾何学的測定条件にすることで、陶磁器を破損することなく年間線量評価することを可能にした。美術品が置かれてきた環境由来の被ばく履歴の評価は難しいものの、この方法により小型の陶磁器など美術品からの年間線量をある程度評価できるようになったことで、判定の信頼性が向上し、模倣品など後世に作られた作品などの判定も可能になった。

真贋判定用の蓄積線量評価には、光に当たっている陶磁器表面を除去後、削り出す試料量は 200~600 mg 程度必要とされる（青木・長友：2010b）。この際、鑑賞や研究で重要な部位からの採取を極力避けた状態で行われる。今後、SAR 法による TL 測定や OSL 測定が可能になると、より採取する試料量を減らすことが期待される。

4.4 被熱温度推定

長友ほか（2003）は TL と ESR を用いて、遺跡内で焼失したと推定される竪穴住居跡から出土した弥生土器の被熱温度推定を行った。この弥生土器は、住居跡が焼失した際に再度被熱したことにより変形したと考えられたものであった。TL による結果では、高温側と低温側における TL ピーク強度の加熱温度によって変化することに着目し、ESR ではチタン（Ti）センターの波形変化に着目した分析を行った。さらに、TL 法と ESR 法を用いた被熱温度推定法の手順を整理したことは、煩雑な手法を理解する手助けとなっている。

これまで考案されてきた TL 法と ESR 法を用いた被熱温度推定では、光に当たっている試料の表面は除去しなければならなかった。しかし、西村ほか（2007）は、被熱による IRSL 信号の感度変化に着目し、光に当たっている試料であっても温度推定が可能であることを示した。弥生土器の表面部分から採取した試料を用いて段階加熱を行い、焼成された温度までは IRSL 強度がほとん

ど変化しなかったことから、IRSL 強度変化が起こる温度が被熱温度であると突き止めた。この方法では、発掘終了後の遺物整理段階において実施が可能になることから、今後の適応例の増加が期待される（例えば、小畑・下岡（2015）や下岡（2016a）など）。

4.5 その他の試み

橋本ほか（2000）は、放射線を照射直後の燐光（アフターグロー）の発光色を利用して、須恵器胎土などの産地情報の抽出を行っている。しかし、産地推定法として実際に応用できるまでは膨大なデータの蓄積が必要なことから、実用化には至っていない。

遺跡と自然災害の関係では、前述したテフラの年代測定のほか、遺跡分布に影響を及ぼしたとされる津波堆積物の OSL 年代測定例（下岡ほか：2012）などが報告されている。

5. 最近の課題と議論，将来の展望

5.1 測定方法の進歩と課題

日本文化財科学会 20 年誌までは、ほぼ確立した石英粗粒子による TL 法と、長石を用いた IRSL 法が主に用いられてきた（長友ほか：2004c）。その後、遺跡堆積物から抽出した微細石英（10 μm 程度）の OSL 法が利用可能になった。

長石を用いた TL や IRSL では、多くの場合、異常減衰現象が起こるため、蓄積線量の過小評価の原因と考えられている。しかし、関口ほか（2011）と下岡ほか（2013）では、複数のテフラ試料で層序や較正 ^{14}C 年代と符合するルミネッセンス年代結果も得られている。異常減衰の有無を調べるフェーディングテストを継続するなど、年代測定の可否がどのようなメカニズム（物性）に起因し、どのようなときに測定可能であるか、今後の検討も必要である。これと併行して、異常減衰を抑えることができるとされる post-IR IRSL 測定を検討しながら試みることも必要だろう。

また、single aliquot 法が利用できる装置の開発も進み、最小で数 mg の微量でも年代測定可能になってきた。今後は、単一粒子（シングルグレイン）による測定にも期待したい。しかし、複雑化する測定手順を追求するよ

りも、文化財研究における年代測定として、信頼性のある年代データの蓄積が最優先と考える。

5.2 将来への展望

文化財研究における年代測定としては、ほかの年代測定法とのクロスチェックも重要である。筆者は、TL 法と OSL 法の相互比較を試みているが、将来的には ^{14}C 法や古地磁気法、FT 法、ESR 法などとプロジェクトのような、より密接した比較研究の実施が必要と考えている。これは、理化学的年代測定自体の信頼性をより高めるためにも、必須であろう。その上で、考古学に始まる人文系学問との協働研究を今後も継続していくことが、文化財科学における年代測定の責務である。陶磁器の真贋判定や被熱温度推定も精度が高くなり、信頼度も向上している。今後は、データを系統的に蓄積していくことが、文化財科学研究に寄与する上で重要であろう。

ルミネッセンス法における最重要課題としては、当該手法を用いた文化財科学研究を担う研究者の養成と就職口の確保が急務である。市川や東村に続く世代の研究者として牽引した長友と橋本が大学退職後、文化財科学に関するルミネッセンス年代測定を主で行っている研究室は減り、地質試料を主で扱う研究施設が増えつつある。そのため、日本文化財科学会における最近の発表数は、口頭発表とポスター発表を合わせて年に 1 ないし 2 件程度である。

ESR 法においては、被熱温度推定などで潜在能力は有するものの、文化財関係を専門にした年代測定を実施している日本のラボは皆無に近いのが現状である。

これら議題は、日本文化財科学会 20 年誌で、就職口の確保と学問の継続性について提言が挙がっている（長友ほか：2004c）ものの、解決の糸口が見つかっていない。次世代研究者の活躍できる場の確保は、今後この研究分野の盛衰を決めるといっても過言ではないだろう。

謝 辞

本稿作成にあたって、奈良教育大学の長友恒人名誉教授と、「考古学と自然科学」編集委員長の名古屋大学の中村俊夫教授（現在、名誉教授）からは、多くのご教示、ご指摘をいただいた。ESR 関連の情報は、大阪大学の山

中千博准教授および岡山理科大学の豊田 新教授よりご提供いただいた。(株)古環境研究所(現所属:(株)蒜山地質年代学研究所)の小畑直也氏には、粗稿の修正を手伝っていただいた。末筆ながら、感謝申し上げます。なお、2章の一部は、筆者が奈良大学へ提出した博士論文

の一部に加筆修正したものである。(追記:本稿は2013年4月に投稿し、「考古学と自然科学」編集委員会から2017年3月に指摘された査読コメントにより改善され、2017年3月に修正原稿を改めて投稿した。)

参考文献

- 青木智史・長友恒人 2003「軟シリコン樹脂型を用いた年間線量評価法の陶磁器真贋判定に関する有効性の検証」日本文化財科学会第20回大会研究発表要旨集 pp.204-205
- 青木智史・長友恒人・木立雅朗 2005「TL法による法蔵寺鳴滝乾山窯址の年代推定」日本文化財科学会第22回大会研究発表要旨集 pp.140-141
- 青木智史・出川哲朗・長友恒人 2010a「熱ルミネッセンス法による黄冶窯跡出土陶片の年代測定」日本文化財科学会第27回大会研究発表要旨集 pp.140-141
- 青木智史・長友恒人 2010b「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 26 pp.247-257
- 青木智史・網真奈美・川端靖子 2011「新薬師寺旧境内遺跡出土瓦の熱ルミネッセンス年代測定」日本文化財科学会第27回大会研究発表要旨集 pp.100-101
- 池谷元伺・鶴久森正毅 1979「レーザー励起発光年代測定」考古学と自然科学 12 pp.23-27
- 池谷元伺 1987『ESR(電子スピン共鳴)年代測定』アイオニクス 210p
- 市川米太 1968「熱ルミネッセンスによる土器の年代測定」考古学と自然科学 1 pp.10-19
- 市川米太・仲川公一郎 1973「熱ルミネッセンス法による橋川内土器の年代測定」古文化財教育研究報告 2 pp.1-7
- 市川米太・長友恒人・正司富輝子 1974「熱ルミネッセンス法による布留遺跡並びに服部遺跡出土土器の年代測定」古文化財教育研究報告 3 pp.1-6
- 市川米太・萩原直樹 1976「熱ルミネッセンス法による荒屋敷出土土器の年代測定」『千葉市荒屋敷貝塚一貝塚外縁部遺構確認調査報告—』 pp.53-55
- 市川米太・松田明彦・寺前 充・中嶋秀起 1978「大矢たたら炉跡遺跡の熱ルミネッセンス年代測定」古文化財教育研究報告 7 pp.1-6
- 市川米太・萩原直樹 1978「熱ルミネッセンス法による焼土・焼石の年代測定」考古学と自然科学 11 pp.1-7
- 市川米太・平岡隆彦・寺井善貴 1979「熱ルミネッセンス法による土器の焼成温度の推定」古文化財教育研究報告 8 pp.19-23
- 市川米太 1981「鈴木遺跡の礫群中の砂岩による熱ルミネッセンス年代測定」『鈴木遺跡』 pp.344-348
- 市川米太・長友恒人 1981「熱ルミネッセンス法による陶器の真贋判定」考古学と自然科学 14 pp.103-110
- 市川米太 1982「熱ルミネッセンス法による縄文創草期土器の年代測定—花見山遺跡の隆線文土器と二日市遺跡の無文・条痕文土器について—」古文化財教育研究報告 11 pp.27-31
- 市川米太 1985a「石神製鉄遺跡の熱ルミネッセンス年代測定」『石神製鉄遺跡』 pp.25-26
- 市川米太 1985b「礫群構成礫による熱ルミネッセンス年代」『静岡県豊田町広野北遺跡発掘調査報告書』 pp.708-709
- 市川米太 1985c「堂地西遺跡の集石の熱ルミネッセンス年代」『浦田遺跡・入料遺跡・堂地西遺跡・平畑遺

- 跡・堂地東遺跡・熊野原遺跡 宮崎学園都市遺跡発掘調査報告集第2集』宮崎県教育委員会 pp.313-314
- 市川米太 1987「アメリカ南西部の先史時代土器の熱ルミネッセンス年代」古文化財教育研究報告 16 pp.5-11
- 市川米太 1988「奈良市歌姫町長谷遺跡の焼土の TL 年代測定」『奈良市埋蔵文化財調査概要報告書 昭和62年度』 pp.10-11
- 伊藤晴明・時枝克安 1985「石神製鉄遺跡の自然残留磁気測定」『石神製鉄遺跡』 pp.27-29
- 伊庭 毅・橋本哲夫 2006「新潟県阿賀町現明嶽遺跡出土試料の RTL 年代測定」日本文化財科学会第23回大会研究発表要旨集 pp.78-79
- 今井 登・下川浩一 1999「電子スピン共鳴法」『考古学と年代測定学・地球科学（松浦秀治・上杉 陽・藁科哲男 編）』同成社 pp.99-109
- 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
- 奥山誠義・長友恒人 1998「OSL・TL・ESR 法による焼石・焼土の被熱温度の推定」日本文化財科学会第15回大会研究発表要旨集 pp.210-211
- 奥山誠義・長友恒人 1999「OSL・TL・ESR 法による焼石・焼土の被熱温度の推定（2）～TL 法・OSL 法による被熱温度推定の基礎的研究～」日本文化財科学会第16回大会研究発表要旨集 pp.198-199
- 小畑直也・下岡順直 2015「ルミネッセンス法による被熱履歴推定の概要」地質技術 5 pp.29-35
- 小畑直也・豊田 新・Biswas, R.H. 2015「TL/OSL 測定装置 nanoGray TP-5000 の紹介」ESR 応用計測 32 pp.41
- 金原正明・青木智史・鶴 真美・島軒 満・西村匡広 2012『新薬師寺旧境内—奈良教育大学構内遺跡の埋蔵文化財発掘調査報告書—』132p
- 坂口 一 1990「榛名山二ツ岳テフラの降下年代」『火山噴火と黒井峯むらのくらし』 pp.51-54
- 笹田幸佑・長友恒人・谷 和隆 2007「野尻湖遺跡群出土縄文時代草創期土器の TL 年代測定」日本文化財科学会第24回大会 pp.140-142
- 笹田幸佑・長友恒人・小林謙一 2008「ルミネッセンス法を用いた縄文草創期土器の年代測定」日本文化財科学会第25回大会研究発表要旨集 pp.58-59
- 下岡順直・長友恒人 2001「石英・長石を試料とした光励起ルミネッセンス年代測定法の基礎研究」Radioisotopes50 pp.381-389
- 下岡順直・長友恒人・國木田大 2003「赤外光ルミネッセンス（IRSL）法による旧石器・新石器時代の遺跡堆積物層の年代測定」日本文化財科学会第20回大会研究発表要旨集 pp.8-9
- 下岡順直・長友恒人 2006「歯のルミネッセンス特性と線量測定への応用の可能性」奈良教育大学紀要 55 pp.1-7
- 下岡順直・福岡 孝・長友恒人・長谷川歩・草野高志 2007「旧石器遺跡形成史解明のための三瓶起源テフラの年代測定」日本文化財科学会第24回大会 pp.142-143
- 下岡順直・長友恒人・小畑直也 2008「残存 TL を評価した TL 年代測定法の改良とそれを利用したレス堆積物の TL 年代と OSL 年代の比較」奈良教育大学紀要 57 pp.49-54
- 下岡順直・長友恒人・長谷川歩・川端靖子・福岡 孝 2009「旧石器遺跡に関連した三瓶山起源テフラの年代測定と蛍光 X 線分析」日本文化財科学会第26回大会研究発表要旨集 pp.140-141

- 下岡順直・長友恒人 2011「ルミネッセンス法による旧石器遺跡の鍵層となるテフラの年代推定—宮城県南部を例として—」考古学と自然科学 62 pp.73-84
- 下岡順直・前杵英明・長友恒人・青木智史 2011「ガッガル川流域砂丘の OSL 年代測定とインダス文明衰退の因果関係」日本文化財科学会第 27 回大会研究発表要旨集 pp.90-91
- 下岡順直・七山 太・長友恒人 2012「北海道根室沿岸低地における先史・歴史時代の津波堆積物の OSL 年代測定の試み」日本文化財科学会第 28 回大会研究発表要旨集 pp.422-423
- 下岡順直・竹村恵二・長友恒人 2013「日本列島における第四紀後期指標テフラの熱ルミネッセンス年代測定」第四紀研究 52 pp.139-150
- 下岡順直・山田和芳・奥野 充 編 2013『第四紀研究における年代測定法の新展開；最近 10 年間の進展—(II) 放射線損傷年代・放射年代—』月刊地球号外 62 pp.10-92
- 下岡順直・波多野智・田邊和明・森美比古・青木智史・阪江 修 2015「OSL/TL 自動測定装置 NRL-99-OSTL2-KU の設計製作と X 線管球の線量率校正」地球環境研究 17 pp.107-110
- 下岡順直 2016a「福井洞窟 12・13 層炉跡の OSL を用いた赤色化土壌の被熱温度推定」『史跡福井洞窟発掘調査報告書 佐世保市文化財調査報告書第 14 集』佐世保市教育委員会 pp.288-290
- 下岡順直 2016b「旧石器時代研究のためのルミネッセンス年代測定の基礎と現状」旧石器研究 12 pp.13-21
- 関口博幸・早田 勉・下岡順直 2011「群馬の旧石器編年のための基礎的研究—関東地方北西部における石器群の出土層位，テフラ層序，数値年代の整理と検討—」財団法人群馬県埋蔵文化財調査事業団研究紀要 29 pp.1-20
- (株)大和地質研究所 2000「上ノ台遺跡発掘調査にかかる科学分析」『上ノ台遺跡』いわき市埋蔵文化財調査報告第 67 冊 pp.399-411
- 塚本すみ子 1995「電子スピン共鳴 (ESR) 年代測定法の現状と問題点」第四紀研究 34 pp.239-248
- 塚本すみ子 1999「第 4 章 電子スピン共鳴法」『考古学のための年代測定学入門 (長友恒人編)』古今書院 pp.77-88
- 中川貴博・薄田隼人・八幡 崇・橋本哲夫 2002「焼成考古遺物研究のためのルミネッセンス (OSL/TL) 自動測定システムの開発と性能」日本文化財科学会第 19 回大会研究発表要旨集 pp.188-189
- 中田裕子・橋本哲夫 2005「焼成考古遺物の放射線誘起ルミネッセンス年代測定」日本文化財科学会第 22 回大会研究発表要旨集 pp.40-41
- 長友恒人・山本健司 1986「熱ルミネッセンス年代測定法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—」古文化財教育研究報告 15 pp.31-39
- 長友恒人・中川照久・辻本堅二・小池 寛 1987「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—」奈良教育大学紀要 36 pp.9-17
- 長友恒人 1991a「米屋山遺跡炭窯跡の熱ルミネッセンス年代測定」『堀田上・今佐屋山・米屋山遺跡の調査主要地方道浜田八重可部線特殊改良工事に伴う埋蔵文化財発掘調査報告書』島根県教育委員会 pp.122-125
- 長友恒人 1991b「TL および ESR 年代測定のための年間線量率の測定」月刊地球 13 pp.249-253
- 長友恒人 1992a「今佐屋山遺跡製鉄遺構 (II 区) 熱ルミネッセンス年代測定報告」『今佐屋山遺跡・小才遺跡 中国横断自動車道広島浜田線建設予定地内埋蔵文化財発掘調査報告書 IV』IV 島根県教育委員会 pp.174-176
- 長友恒人 1992b「重富遺跡瓦窯跡の熱ルミネッセンス年代測定」『重富遺跡・やつおもて古墳群・柳ヶ谷遺

- 跡 中国横断自動車道広島浜田線建設予定地内埋蔵文化財発掘調査報告書Ⅳ』Ⅳ島根県教育委員会 pp.176-178
- 長友恒人 1992c 「沢田遺跡窯跡の熱ルミネッセンス年代測定」『常陸那珂港関係埋蔵文化財発掘調査報告書 2—沢田遺跡 茨城県教育財団文化財調査報告第 77 集』 pp.565-572
- 長友恒人 1993 「中ノ原遺跡製鉄遺構の熱ルミネッセンス年代測定報告」『一般県道市木井原線道路改良工事に伴う埋蔵文化財発掘調査報告書』Ⅱ pp.10-11
- 長友恒人 1996 「光ルミネッセンス (OSL) 年代測定の基礎研究—遺跡文化層の年代測定—」日本文化財科学会第 13 回大会研究発表要旨集 pp.56-57
- 長友恒人 1997 「杉山瓦窯の熱ルミネッセンス年代測定」『史跡大安寺旧境内』Ⅰ pp.334-336
- 長友恒人・小野左詠子・小松久美・寺坂さと江・塚本すみ子・福沢仁之 1997 「OSL (光ルミネッセンス) 年代測定法の基礎的研究 (その 2)」日本文化財科学会第 14 回大会研究発表要旨集 pp.58-59
- 長友恒人・小松久美・梶原 洋・鎌田俊昭・藤村新一・横山裕平・柳田俊雄 1998 「OSL (光ルミネッセンス) 年代測定法の基礎的研究 (3)—旧石器遺跡年代測定への適用—」日本文化財科学会第 15 回大会発表要旨集 pp.70-71
- 長友恒人 1999 「3 章 ルミネッセンス法」『考古学のための年代測定学入門 (長友恒人編)』古今書院 pp.59-76
- 長友恒人・横山 勝・外山 潔 1999 「范の熱ルミネッセンス真贋判定と X 線回折法による成分分析」泉屋博古館紀要 16 pp.32-48
- 長友恒人・下岡順直・梶原 洋・藤村新一・鎌田俊昭・横山祐平 2000 「OSL (光ルミネッセンス) 年代測定法の基礎的研究 (4)」日本文化財科学会第 17 回大会研究発表要旨集 pp.80-81
- 長友恒人・下岡順直・波多野智 2001a 「低温 OSL/TL 測定装置の開発と年代測定への応用」日本文化財科学会第 18 回大会研究発表要旨集 pp.8-9
- 長友恒人・藤本将宏・北代陽子・中川 武・土屋 武 2001b 「Sambor Prei Kuk および Prasat Sour Prat (カンボジア) のレンガ・瓦・堆積土を試料とする TL/OSL 年代」日本文化財科学会第 18 回大会研究発表要旨集 pp.72-73
- 長友恒人 2002 「焼石の熱ルミネッセンス年代測定」『下屋敷遺跡—東九州自動車道建設 (西都～清武間) に伴う埋蔵文化財発掘調査報告書 XⅡ 宮崎県埋蔵文化財センター発掘調査報告書第 56 集』 XⅡ宮崎県埋蔵文化財センター pp.47-49
- 長友恒人・下岡順直・森 文幸・津川理絵・疋田麻理江・佐藤宏之・人吉市教育委員会 2002a 「旧石器遺跡文化層のルミネッセンス (TL および OSL) 年代測定」日本文化財科学会第 19 回大会研究発表要旨集 pp.94-95
- 長友恒人・青木智史 2002b 「年間線量評価の改良による陶磁器真贋判定法の高精度化」日本文化財科学会第 19 回大会研究発表要旨集 pp.30-31
- 長友恒人・西村誠治・柴田昌兎 2003 「TL/ESR 測定による被熱変形した弥生土器の被熱温度推定」日本文化財科学会第 20 回大会研究発表要旨集 pp.74-75
- 長友恒人・西村誠治 2004 「唐招提寺金堂基壇の塼の TL 年代測定」日本文化財科学会第 21 回大会研究発表要旨集 pp.6-7
- 長友恒人・西村誠治・(株)古環境研究所 2004a 「岩手県早坂平遺跡出土焼石の熱ルミネッセンス年代測定」『早坂平遺跡発掘調査報告書 岩手県文化振興事業団埋蔵文化財調査報告書第 437 集』 pp.584-586

- 長友恒人・波岡久恵・下岡順直・衛 奇・佐川正敏 2004b「中国泥河湾地域旧／新石器遺跡の光ルミネッセンス年代測定」日本文化財科学会第 21 回大会研究発表要旨集 pp.210-211
- 長友恒人・鈴木正男・中村俊夫・広岡公夫・松浦秀治・光谷拓実・森岡秀人・和田晴吾 2004c「【年代測定】ワーキンググループ座談会」考古学と自然科学 48・49 pp.61-104
- 長友恒人・西村誠治・下岡順直 2005a「給源テフラの年代を考慮した金取遺跡遺物出土層の年代推定」日本文化財科学会第 22 回大会研究発表要旨集 pp.136-137
- 長友恒人・下岡順直・大西香葉・李 鮮鰭 2005b「韓国臨津江・漢灘江流域溶岩台地のルミネッセンス年代測定と旧石器遺跡の形成史復原の試み」日本文化財科学会第 22 回大会研究発表要旨集 pp.42-43
- 長友恒人・下岡順直・國木田大 2007a「ロシア沿海州新石器遺跡堆積物の赤外光ルミネッセンス (IRSL) 年代測定」奈良教育大学紀要 56 pp.1-6
- 長友恒人・下岡順直・小畑直也 2007b「波長四分割 TL/OSL 自動測定装置を用いたルミネッセンス年代測定—蓄積線量評価の改善—」日本文化財科学会第 24 回大会研究発表要旨集 pp.56-57
- 長友恒人・下岡順直・小畑直也 2008a「考古遺跡遺物の残存 TL を考慮した熱ルミネッセンス (TL) 法による年代測定の有効性—光ルミネッセンス (OSL) 法との比較—」日本文化財科学会第 25 回大会研究発表要旨集 pp.56-57
- 長友恒人・下岡順直・小畑直也 2008b「考古遺跡を形成する堆積物の光ルミネッセンス (OSL) 年代測定—多試料法と単試料法による蓄積線量評価の比較—」日本文化財科学会第 25 回大会研究発表要旨集 pp.132-133
- 西村誠治・長友恒人・奈良市教育委員会 2006「奈良市大安寺西塔関連試料の年代測定」日本文化財科学会第 23 回大会研究発表要旨集 pp.82-83
- 西村誠治・長友恒人・鐘ヶ江賢二・長友朋子 2007「IRSL 法による弥生土器の被熱温度推定」日本文化財科学会第 24 回大会研究発表要旨集 pp.36-37
- 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 pp.11-22
- 橋本哲夫 1999「ルミネッセンス法」『考古学と年代測定学・地球科学 (松浦秀治・上杉 陽・藁科哲男 編)』同成社 pp.84-98
- 橋本哲夫・西山笑子・洪 徳均・橋本博文・三辻利一 2000「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」考古学と自然科学 39 pp.1-14
- 橋本哲夫・中川貴博・柳川裕次・高野雅人 2001「焼成考古遺物から抽出の単分画鉱物粒子を用いた光励起・熱ルミネッセンス自動測定システム開発と年代クロスチェックへの利用」日本文化財科学会第 18 回大会研究発表要旨集 pp.6-7
- 橋本哲夫・中川貴博・野村幸子 2003「瓦片から抽出した石英粒子の光励起・赤色熱ルミネッセンス (OSL・RTL) 測定に基づく天然蓄積線量比較と年代評価」日本文化財科学会第 20 回大会研究発表要旨集 pp.6-7
- 橋本哲夫・玉城美津穂 2006「平城京跡から発掘された瓦片試料の赤色熱ルミネッセンス (RTL) 年代測定」日本文化財科学会第 23 回大会研究発表要旨集 pp.80-81
- 橋本哲夫 2007「熱および光励起ルミネッセンス観測による焼成考古遺物の蓄積放射線線量評価と石英からの赤色熱ルミネッセンス年代測定の重要性」考古学と自然科学 55 pp.31-44
- 東村武信 1970「ESR (電子スピン共鳴) の利用—産地分析と年代測定への可能性—」考古学と自然科学 3

- pp.59-64
- 東村武信 1990 「熱ルミネッセンス」『考古学と物理化学』 学生社 pp.53-66
- 東村武信・長友恒人 1991 「市川米太先生のご逝去を悼んで」 日本文化財科学会会報 21 pp.40-43
- 平賀章三・長友恒人・石井克己 1992 「群馬県黒井峯遺跡の TL 年代測定」 日本文化財科学会第 9 回大会発表要旨集 pp.68-69
- 山田 治・小橋川明 1985 「石神製鉄遺跡の液体シンチレーション¹⁴C 年代測定」『石神製鉄遺跡』 pp.30-31
- 山田哲也・塚本敏夫・小田寛貴・中村俊夫 2001 「製鉄遺跡の¹⁴C 年代測定」 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書 X II pp.103-112
- 渡辺直経 1961 「人類が来た道のりを測る (11) —新しい年代学—」 自然 9 pp.72-78
- 藁科哲男 1981 「ESR による土器の焼成温度の推定」 月刊地球 3 pp.517-523
- Adamiec, G. and Aitken, M.J.1998 “Dose-rate conversion factors: update” *Ancient TL* 16 pp.37-50
- Aitken, M.J., Tite, M.S. and Reid, J.1963 “Thermoluminescent dating :progress report” *Archaeometry* 6 pp.65-75
- Aitken, M.J.1985 “Thermoluminescence dating” Academic Press 359p
- Aitken, M.J.1998 “An introduction to optical dating” Oxford University Press 267p
- Bortolot, V. J.2000 “A new modular high capacity OSL reader system” *Radiation Measurements* 32 pp.751-757
- Buylaert, J.P., Murray, A.S., Thomsen, K.J. and Jain, M.2009 “Testing the potential of an elevated temperature IRSL signal from K-feldspar” *Radiation Measurements* 44 pp.560-565
- Dornich, K., Krbetschek, M., Richter, A. and Richter, D.2012 “A new measurement system for luminescence dating-Lexsyg” Abstract of 3rd Asia-Pacific Conference on Luminescence and ESR dating including non-dating applications pp.23
- Fleming, S.J.1970 “Thermoluminescent dating: refinement of the quartz inclusion method” *Archaeometry* 12 pp.133-145
- Godfrey-Smith, D.I., Huntley, D.J. and Chen, W.H.1988 “Optical dating studies of quartz and feldspar sediment extracts” *Quaternary Science Reviews* 7 pp.373-380
- Guerin, G. and Valladas, G.1980 “Thermoluminescence dating of volcanic plagioclase” *Nature* 286 pp.697-699
- Henshilwood, C., d'Errico, F., Vanhaeren, M., Karen van Niekerk and Jacobs, Z.2004 “Middle stone age shell beads from south Africa” *Science* 304 pp.404
- Higashimura, T., Ichikawa, Y, and Sidei, T.1963 “Dosimetry of Atomic Bomb Radiation in Hiroshima by Thermoluminescence of Roof Tiles” *Science* 139 pp.1284-1285
- Hong, D.G., Kim, M.J., Yawata, T. and Hashimoto, T.2005 “Optimum aluminum absorber thickness of a small X-ray irradiator for equivalent dose determination” *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 265 pp.495-498
- Huntley, D.J., Godfrey-Smith, D.I. and Thewalt, M.L.W.1985 “Optical dating of sediments” *Nature* 313 pp.105-107
- Hütt, G., Jaek, I. and Tchonka, J.1988 “Optical dating: K-feldspars optical response stimulation spectra” *Quaternary science reviews* 7 pp.381-385

- Ichikawa, Y.1965 "Dating of Ancient ceramics by Thermoluminescence" Bulletin of the institute for chemical research, Kyoto University 43 pp.1-6
- Ichikawa, Y. and Nagatomo, T.1978 "Thermoluminescence dating of burnt sandstones from Senpukuji cave" PACT (Journal of the European Study Group on Physical, Chemical and Mathematical Techniques Applied to Archaeology) 2 pp.174-179
- Ichikawa, Y., Nagatomo, T. and Hagihara, N.1978 "Thermoluminescent dating of Jomon pattern pottery from Taishaku valley" Archaeometry 20 pp.171-176
- Ichikawa, Y., Hagihara, N. and Nagatomo, T.1982 "Dating of pyroclastic flow deposits by means of the quartz inclusion method" PACT (Journal of the European Study Group on Physical, Chemical and Mathematical Techniques Applied to Archaeology) 6 pp.409-416
- Ikeya M.1975 "Dating a stalactite by electron paramagnetic resonance" Nature 225 pp.48-50
- Jacobs, Z., Duller, G.A.T., Wintle, A.G. and Henshilwood, C.S.2006 "Extending the chronology of deposits at Blombos Cave, South Africa, back to 140 ka using optical dating of single and multiple grains of quartz" Journal of Human Evolution 51 pp.255-273
- Kennedy, G.C. and Knopff, L.1960 "Dating by thermoluminescence" Archaeology 13 pp.147-148
- Lang, A. and Wagner, G.A.1996 "Infrared stimulated luminescence dating of archaeosediments" Archaeometry 38 pp.129-141
- Murray, A.S. and Wintle, A.G.2000 "Luminescence dating of quartz using an improved single-aliquot regenerative-dose protocol" Radiation Measurements 32 pp.57-73
- Porat, N. and Ronen, A.2002 "Luminescence and ESR age determinations of the Lower Paleolithic site Evron quarry, Israel" Advances in ESR Applications 18 pp.123-130
- Richter, D., Richter, A. and Dornich, K. 2013 "Lexsyg - A new system for luminescence research" Geochronometria 40 pp.220-228
- Shitaoka, Y., Maemoku, H. and Nagatomo, T.2012 "Quartz OSL dating of sand dunes in Ghaggar basin, northwestern India" Geochronometria 39 pp.221-226
- Tite, M.S.1966 "Thermoluminescent dating of ancient ceramics : A reassessment" Archaeometry 9 pp.155-169
- Toyoda, S. and Ikeya, M.1993 "The use of electron spin resonance (ESR) for the determination of prehistoric lithic heat treatment" Applied Radiation and Isotopes 44 pp.227-231
- Warashina, T.1992 "Allocation of jasper archaeological implements by means of ESR and XRF" Journal of Archaeological Science 19 pp.357-373
- Wintle, A.G.1973 "Anomalous fading of thermo-luminescence in mineral samples" Nature 245 pp.143-144
- Zeller, E.J.1968 "Use of electron spin resonance for measurement of natural radiation damage" In thermoluminescence of Geological Materials Academic press pp.271-279
- Zimmerman, D.W.1971 "Thermoluminescent dating using fine grains from pottery" Archaeometry 13 pp.29-52

(2013年4月30日受付, 2017年3月30日受理)

Archaeological Science Studies Using Thermoluminescence, Optically Stimulated Luminescence, and Electron Spin Resonance Dating Methods

Yorinao Shitaoka¹⁾ · ^{*}

¹⁾ Institute for Geothermal Sciences, Kyoto University, 3088-176 Noguchibaru, Beppu 874-0903, Japan

^{*} Present affiliation is Department of Environment Systems, Faculty of Geo-environmental Science, Rissho University, 1700 Magechi, Kumagaya 360-0194, Japan

Thermoluminescence (TL), optically stimulated luminescence (OSL), and electron spin resonance (ESR) dating methods have played important roles in providing a chronology in archaeological science studies. These methods have been used for dating, authenticity testing of art ceramics, and assessment of firing temperatures. This article gives an overview of recent developments in TL, OSL, and ESR dating methods that have contributed to archaeological science studies and discusses the prospects for these dating studies.