

考古受热石英释光发光光谱性质及其 测年研究

汪椿鑫^{1,2} 范安川^{1,2} 李波³ 闫子晗^{1,2} 张小雷⁴

1(中国科学技术大学 科技考古实验室 合肥 230026)

2(中国科学技术大学 科技史与科技考古系 合肥 230026)

3(澳大利亚伍伦贡大学考古科学中心 伍伦贡 NSW 2522)

4(安徽省文物考古研究所 合肥 230601)

摘要 释光测年技术在解决考古低温受热材料的年代问题中已趋于成熟,而在考古高温受热材料的释光测年研究中仍颇具挑战。以凌家滩遗址出土陶器中提取的考古高温受热石英(约 950 °C)为例,探究此类石英的释光发光光谱特征与释光性质,旨在探讨不同波段的热释光信号在释光测年中的可行性。基于 Risø DA-20 型释光测年仪器联用 Andor 光谱仪、电荷耦合器件(Charge-Coupled Device, CCD)相机的释光发光光谱平台,结合对不同波段敏感的光电倍增管与自定义滤光片组合,对比了热释光(Thermoluminescence, TL)、等温热释光(Isothermal Thermoluminescence, ITL)、光释光(Optically Stimulated Luminescence, OSL)测年方法在此类考古高温受热材料中的应用。光谱结果表明:考古高温受热石英具有显著的 620 nm 左右的红光热释光发光(Red TL),与 375 °C TL 峰紧密相关,且 375 °C Red TL 具有光不敏感特征。多波段热释光、多波段等温热释光、常规光释光测年结果均与已知的碳-14 年龄在误差范围内一致,表明利用不同波段的释光信号开展考古高温受热材料年代学研究具有潜在的可行性。

关键词 考古, 陶器, 热释光, 光谱, 年代学

中图分类号 TL84

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2024.hjs.47.010003

Luminescence spectrum characteristics and dating studies of archaeologically heated quartz

WANG Chunxin^{1,2} FAN Anchuan^{1,2} LI Bo³ YAN Zihan^{1,2} ZHANG Xiaolei⁴

1(USTC Archaeometry Laboratory, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

2(Department for the History of Science and Scientific Archaeology, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

3(Centre for Archaeological Science, School of Earth, Atmospheric and Life Sciences, University of Wollongong, Wollongong NSW 2522, Australia)

4(Anhui Provincial Institute of Cultural Relics and Archaeology, Hefei 230601, China)

Abstract [Background] Luminescence dating technology has made significant advancements in determining the chronology of archaeological materials subjected to low firing temperatures. However, the luminescence dating of

国家重点研发计划课题(No.2022YFF0903703)、中国科学技术大学探索类项目(No.YD2110002027)、中国科学技术大学学术领军人才培养计划(No.KY2110000020)资助

第一作者: 汪椿鑫, 男, 1996 年出生, 2018 年毕业于西北大学, 现为博士研究生, 研究领域为考古受热材料释光测年

通信作者: 范安川, E-mail: anchuan@ustc.edu.cn; 李波, E-mail: bli@uow.edu.au

收稿日期: 2023-09-29, 修回日期: 2023-11-28

Supported by the National Key Research and Development Program of China (No.2022YFF0903703), the Exploratory Project of the University of Science and Technology of China (No.YD2110002027), the Academic Leadership Talent Training Program of University of Science and Technology of China (No.KY2110000020)

First author: WANG Chunxin, male, born in 1996, graduated from Northwest University in 2018, doctoral student, focusing on luminescence dating of archaeologically heated materials

Corresponding author: FAN Anchuan, E-mail: anchuan@ustc.edu.cn; LI Bo, E-mail: bli@uow.edu.au

Received date: 2023-09-29, revised date: 2023-11-28

archaeological materials subjected to high firing temperatures remains challenging. **[Purpose]** This study aims to explore the luminescence emission spectrum characteristics and luminescence properties of high-firing temperature quartz to verify the feasibility of thermoluminescence (TL) signals from different bands in luminescence dating. **[Methods]** Firstly, the high-firing temperature (about 950 °C) quartz extracted from pottery unearthed at the Lingjiatan archaeological site was taken as a case study, spectral measurement platform was established using a Risø DA-20 luminescence dating instrument coupled with an Andor spectrometer and a charge-coupled device camera to analyze the luminescence spectral properties of archaeological quartz with high firing temperatures. Then, five filter combinations and two photomultiplier tubes (PMTs) were used to compare the TL and isothermal thermoluminescence (ITL) sensitivities of blue and red emissions. Kinetic parameters for Blue TL and Red TL were determined by deconvolving the glow curves with the general-order equation. Finally, exposure experiments were conducted on the Blue and Red TL using a solar simulator. The single aliquot regenerative dose (SAR) protocol was implemented to assess the applicability of the Blue TL-SAR, Blue ITL-SAR, Red TL-SAR, Red ITL-SAR, and optically stimulated luminescence (OSL) -SAR methods for dating archaeological quartz exposed to high temperatures during production or use. **[Conclusions]** The spectral analysis reveals that the archaeological quartz subjected to high firing temperature exhibits significant Red TL emissions at approximately 620 nm, which is correlated with the TL peak at 375 °C. This Red TL at 375 °C exhibits a marked insensitivity to light. The multi-wavelength TL, multiwavelength ITL, and conventional OSL dating results are consistent with the known radiocarbon age within the error range. This study demonstrates the potential feasibility of using luminescence signals of different wavelengths for chronological studies of archaeological materials subjected to high firing temperatures.

Key words Archaeology, Pottery, Thermoluminescence, Spectrum, Chronology

自20世纪50年代起,释光测年技术已在测定陶瓷器^[1-2]、烧土^[3]、砖^[4-5]、瓦^[6]、窑炉^[7]、灶^[8]、冶炼遗物^[9]等考古受热材料的最后一次受热年代方面获得了广泛应用,为揭示古代人类生产、生活方式提供了诸多重要关键证据。尽管考古低温受热材料的释光测年技术已较为成熟,但考古高温受热材料的释光测年仍面临诸多挑战^[10-11],譬如热释光(Thermoluminescence, TL)灵敏度低、灵敏度变化难以校正,光释光(Optically Stimulated Luminescence, OSL)中、慢组分占比高与显著热转移等问题,限制了该技术在考古测年领域的应用。此前,大部分的考古学者针对考古受热石英进行热释光测年时,多采用紫外-蓝色波段的热释光信号(UV-Blue TL)进行测年,然而,相关研究表明,部分考古受热石英的热释光发光光谱多集中于橘-红色波段(Orange-Red TL),其中考古高温受热材料尤为显著,例如冶炼遗物、建筑砖块^[12-15]。但主要受制于缺乏光谱测量与释光测年联用的仪器,利用橘-红色波段热释光信号对考古高温受热材料的定年研究仍鲜有报道。地质学研究中,火山材料的释光性质与考古高温受热材料尤为相似,近年来,已有多项针对火山石英与火山玻璃不同波段的热释光信号进行性质与测年的对比研究^[16-18],通过配置合适的光电倍增管与滤光片,在克服高温区域的炽热发光(黑体辐射)对热释光信号

的干扰方面取得良好成效,这为开展考古高温受热材料的释光发光光谱及测年研究提供了重要的指导意义。

所谓释光发光光谱是指在光照或加热条件下,电子逃离陷阱与发光中心结合后,以光的形式释放出来的能量可以按照波长划分为不同的波段。根据已有的研究,石英的释光发光光谱可以划分为三类^[19](图1): (I)近紫外-紫色发光(UV-Violet, 360~420 nm):通常与低温热释光峰有关,也是石英光释光的主体; (II)蓝色发光(Blue, 420~490 nm):常见于沉积物石英的高温热释光峰(325 °C、375 °C)及少量的石英光释光成分; (III)橘-红色发光(Orange-Red, 590~650 nm):常见于火山来源石英的热释光发光,此波段未曾观测到有光释光发光。本研究旨在搭建一套便捷、精准的释光发光光谱与测年为一体的测试平台,并尝试探究其不同发光波段的释光性质及测年应用,为后续此类材料的释光测年研究提供有价值的参考。

1 实验方法

1.1 考古受热石英样品制备

凌家滩考古遗址位于安徽省马鞍山市含山县,是一处距今5 300~5 800年的大型新石器时代聚落

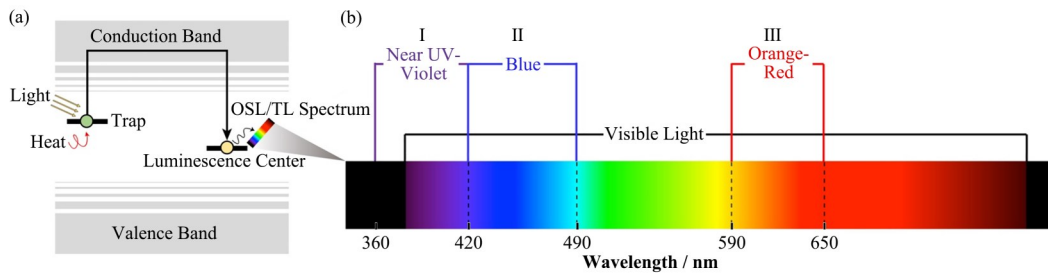


图1 (a) 释光能带模型示意图, (b) 石英的释光发光光谱波长分布示意图
Fig.1 (a) Illustration of luminescence energy band model, (b) illustration of wavelength distribution of luminescence spectrum of quartz

遗址。本研究选取了2020~2022年由安徽省文物考古研究所发掘出土的凌家滩遗址陶器,作为考古高温受热材料释光发光光谱研究与释光测年的代表性样品,其烧成温度经测定约为950 °C^[20],并采用150~250 μm Risø batch 200标准放射源校正石英作为对比。

为避免曝光对年代的影响,使用金刚砂钻头将陶器样品的外层2~3 mm去除,并将未曝光部分使用铁质研棒压碎,并初步过筛。过筛后的样品先后经10% HCl 1 h浸泡、40% HF 1 h刻蚀、10% HCl 1 h浸泡,2.62 g·cm⁻³的多钨酸钠重液分离,清洗烘干后再次过筛以提取出150~250 μm的纯净粗颗粒石英,提取出的石英样品经X射线衍射仪(X-ray Diffractometer, XRD)与红外释光(Infrared Stimulated Luminescence, IRSL)检测,确保了杂矿物已被去除。

1.2 释光发光光谱设备搭建、校正与测试

为满足释光发光光谱探测及多波段释光信号的测年需求,本研究利用丹麦DTU Physics公司生产的Risø DA-20型热释光/光释光测年仪作为基础平台,配备对不同波段敏感的光电倍增管(Photomultiplier Tube, PMT),以及由英国牛津仪器公司生产的Andor Kymera 193i型光谱仪和iKon-M型电荷耦合器件(Charge-Coupled Device, CCD)相机,构成了Risø测年仪器与Andor光谱仪的联用平台(图2)。该释光发光光谱测试平台同时配备了3种可自动切换的探测器,分别为:蓝光/紫外敏感的光电倍增管(Blue/UV PMT,型号PDM9107Q-APTTL-03),有效探测波段为160~630 nm;红光敏感的光电倍增管(Red PMT,型号Hamamatsu H7421-40),有效探测波段为300~730 nm;由导光器经光纤连接的Andor光谱仪(Spectrometer),其搭载的双光栅有效探测波段分别为300~700 nm(150 lines·mm⁻¹)和300~850 nm(300 lines·mm⁻¹),双光栅的作用为扩展和优化探测波段的范围和灵敏

度,用户可根据探测目标中心波长自主切换。

该释光发光光谱平台在投入使用前,需经历一系列的校正步骤,包括:(i)将Risø仪器绿光设置能量强度为1%,调整光纤与光谱仪安装的角度,使得狭缝与相机CCD芯片对齐,通过Solis软件调整对焦棱镜参数获得狭缝的清晰且垂直的成像;(ii)调整导光器与Risø仪器连接处的深浅,以获取光谱仪最大灵敏度;(iii)通过Solis软件设置“像素合并”参数去除双峰,同时提高释光发光光谱灵敏度;(iv)利用单颗粒附件的入射口,添加汞灯(Mercury lamp)作为标准光源,通过调整Solis软件中光栅偏移量,对光谱仪的双光栅进行波长偏移校正;(v)使用Sequence editor编写测试程序,获取样品光谱数据;(vi)利用Risø仪器石英窗,添加Bentham CL2型光谱辐照度校准仪作为校正光源,对滤光片、光纤、光谱仪等物理因素造成的光谱形状失真进行校正,构建当前仪器适用的校正因子数据库,校正公式为 $S_{corrected} = S_{uncorrected} \times S_{calibration} / S_{reference}$,其中 $S_{uncorrected}$ 表示未经校正的样品光谱信号, $S_{calibration}$ 表示辐照度校准仪出厂光谱信号, $S_{reference}$ 表示在当前滤光片组合下的辐照度校准仪参考光谱信号, $S_{corrected}$ 为经过失真校正的样品光谱信号,且 $S_{uncorrected}$ 与 $S_{reference}$ 均经过了背景信号的测定与扣除;(vii)编写R语言数据处理程序,对样品信号进行背景扣除、降噪、失真校正。

由于石英的释光信号对于光谱仪而言是极弱光,因此需要进行参数设定的优化,才能获得信噪比和分辨率满足基本要求的热释光发光光谱。热释光发光光谱测定参数设定如下:将样品热释光信号经500 °C清空,并辐照约300 Gy剂量,并经过160 °C预热10 s去除110 °C TL峰的干扰,选择150 lines·mm⁻¹光栅,中心波长设定为600 nm,曝光时长2 s,开启2倍像素合并和4倍前置增益,无滤光片,将样品以2 °C·s⁻¹加热速率升温至450 °C,获取样品释光信号。同一样品立刻采用相同参数进行二次测试,获取光谱背景信号。

该释光发光光谱平台配备图2(d)所示的8种滤

光片,其中 Hoya U340 5 mm、Hoya U340 2.5 mm、Blue Filter Pack (Schott BG39、Schott BG3) 为 Risø 仪器内置滤光片,而 Edmund optics 生产的 SP525、SP650 短波通滤光片、Schott 生产的 OG570 长波通滤光片和 Schott 生产的 KG3 吸热玻璃为本研究新增滤光片。图 4(a) 显示了 5 种滤光片组合的透射率,包括 U340(5 mm & 2.5 mm)、Blue Filter Pack (BG39 & BG3)、SP525、Red Filter Pack (OG570 & SP650) 和 Red Filter Pack & KG3。其中 U340、Blue Filter Pack、SP525 配合 Blue PMT 用于测定 UV/Blue TL 信号,Red Filter Pack 与 Red Filter Pack & KG3 配合 Red PMT 用于测定 Red TL 信号。

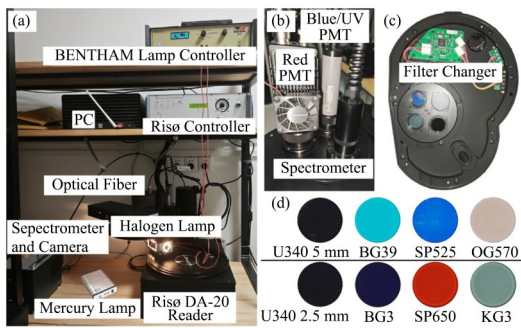


图 2 (a) Risø DA-20 型释光测年仪器搭载 Andor 光谱仪配置图, (b) 三种不同规格的探测器, (c) 滤光片自动切换器, (d) 探测器滤光片

Fig.2 (a) Configuration of Risø DA-20 luminescence dating instrument with Andor spectrometer, (b) three different types of detection modules, (c) automated detection filter changer, (d) detection filters

1.3 多种释光测年方法应用

本研究将 5 种释光测年方法应用于同一考古受热石英样品,以探究热释光发光光谱对于释光年龄

的影响,其中包括蓝光热释光(Blue TL)、红光热释光(Red TL)、蓝光等温热释光(Blue ITL)、红光等温热释光(Red ITL)、光释光法(OSL),具体程序参数见表 1。其中等温热释光(Isothermal Thermoluminescence, ITL)是指在恒定温度下长时间贮存时产生的热释光信号。由于等温热释光能以相对较低的温度观测来自于高温热释光峰的信号,因此等温热释光测年具有如下优势:1)更小的释光灵敏度变化;2)更低的黑体辐射干扰;3)更易于区分来自不同陷阱的信号^[21]。此前研究表明,在 310 °C 和 330 °C 下测量的石英 ITL 信号分别来自于 325 °C 和 375 °C 热释光陷阱^[21-23],参考火山玻璃的 Blue TL 和 Red TL 测年研究^[16],本研究中的 Blue ITL-SAR 和 Red ITL-SAR 测量温度分别为 310 °C 和 330 °C,加热速率均为 2 °C·s⁻¹。

所有释光测年方法均属于单片再生法(Single Aliquot Regenerative protocol, SAR)^[24-25]或与之相似,在自然或再生剂量 D_i 辐照后,需要经过不同的温度进行预热,以去除不稳定信号,随后再按照不同的方式进行激发,获取自然或再生信号 L_x ,再经过试验剂量 D_t 对应的试验信号 T_x 的灵敏度校正,采用单饱和和指数或二次方程建立剂量响应曲线,获取等效剂量(Equivalent dose, D_e)。所有的数据均需要经过满足一定的筛选标准^[26],包括:循环比(Recycling ratio)介于 0.9~1.1 之间、回授率或热转移效应(Recuperation)介于 ±5% 之间、自然信号对应的试验剂量 T_n 的信号大于 3σ 背景值,且相对误差小于 10% 等。此外,还需一系列条件实验验证测试方法的有效性,如:坪实验(光释光为预热坪,热释光为加热坪和 D_e 坪)、剂量恢复实验等。

表 1 释光测年方法
Table 1 Luminescence dating methods

步骤 Step	蓝光或红光热释光单片再生法 Blue/Red TL-SAR	蓝光或红光等温热释光单片再生法 Blue/Red ITL-SAR	光释光单片再生法 OSL-SAR	信号 Signal
1	自然/再生剂量, D_i Natural/regenerative dose, D_i	自然/再生剂量, D_i Natural/regenerative dose, D_i	自然/再生剂量, D_i Natural/regenerative dose, D_i	
2	160 °C 预热 10 s Preheat at 160 °C for 10 s	$T+10$ °C 预热 Cut-heat at $T+10$ °C for 0 s	240 °C 预热 10 s Preheat at 240 °C for 10 s	
3	热释光激发至 450 °C (2 °C·s ⁻¹) TL stimulated to 450 °C (2 °C·s ⁻¹)	T °C 等温热释光激发 ITL stimulated at T °C	125 °C 光释光激发 OSL stimulated at 125 °C	L_x
4	试验剂量, D_t Test dose, D_t	试验剂量, D_t Test dose, D_t	试验剂量, D_t Test dose, D_t	
5	160 °C 预热 10 s Preheat at 160 °C for 10 s	$T+10$ °C 预热 Cut-heat at $T+10$ °C for 0 s	200 °C 预热 0 s Cut-heat at 200 °C for 0 s	
6	热释光激发至 450 °C (2 °C·s ⁻¹) TL stimulated to 450 °C (2 °C·s ⁻¹)	T °C 等温热释光激发 ITL stimulated at T °C	125 °C 光释光激发 OSL stimulated at 125 °C	T_x
7	循环步骤 1~6 Repeat step 1~6	循环步骤 1~6 Repeat step 1~6	循环步骤 1~6 Repeat step 1~6	

2 结果与讨论

2.1 热释光性质

2.1.1 热释光发光光谱

图3(a)和(b)分别显示了Risø标准放射源校正石英和凌家滩高温陶器石英的热释光发光光谱的2D图像,其中,横轴表示温度,纵轴表示波长,而色阶(图例)表示经过背景扣除与失真校正的热释光信号强度。结果表明,Risø Batch 200标准放射源校正石英的热释光信号主要以470 nm为中心波长的蓝光发光为主,对应325 °C和375 °C TL峰,也存在部分的橘-红光发光;而凌家滩陶器石英的热释光信号主要以620 nm为中心波长的橘-红光发光为主,以210 °C和375 °C TL峰为主,蓝光发光因2D图像对比度问题显示出的发光强度相对较弱,但仍旧可以观测到这部分的发光。

产生石英热释光发光波段差异的原因较为复杂^[27],可能的影响因素包括:石英的来源^[28];成矿温度^[29];成矿后的热、晒退、辐照历史^[30]。Hashimoto等^[31-32]研究表明, α 石英和 β 石英的热释光信号波段分别为蓝色和红色,高温(600~1 000 °C)梯度热退火实验表明,Red TL与Blue TL的强度比值会随退火温度的升高而增长^[33],这表明石英的相组成是影响其热释光发光波段的重要因素之一。其他研究表明,光谱差异可能源自于更为复杂的杂质中心的不同^[31,34]。

考古学者Haustein等^[15]对金属冶炼渣中包裹的石英颗粒进行的光谱实验表明,其热释光信号源自于少量的紫外(>380 nm UV)发光和大量的橘-红色发光(550~650 nm)。随后地质学者Song等^[18]报道了火山石英的热释光信号集中于中心波长约640 nm的红光发光。而笔者此前针对本研究中的凌家滩遗址出土陶器进行的热膨胀测温实验表明其烧成温度约950 °C^[20],由此可以推测高温烧制是产生显著红光热释光发光的关键因素。而Risø标准放射源校正石英在生产过程中虽然经历了1 h 700 °C的高温热退火来提升释光灵敏度^[35],但其温度和加热时长通常低于金属冶炼、高温陶器烧制过程以及火山活动,使得校正石英的相转变并不充分,由此也能解释虽然校正石英的热释光信号以蓝光发光为主,但也包含少量的橘-红光发光这一现象。

2.1.2 热释光灵敏度

为测试在5种滤光片组合下,考古受热石英样品的热释光与等温热释光信号灵敏度的差异,本研究对样品进行了500 °C热清空,并辐照相同人工剂量约20 Gy,经预热(表1)、背景信号扣除、质量归

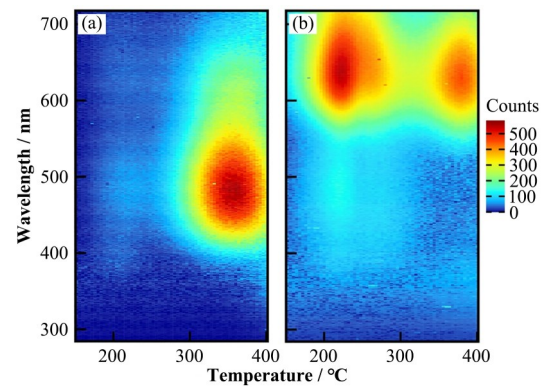


图3 (a) Risø标准放射源校正石英热释光发光光谱,(b)凌家滩陶器石英热释光发光光谱(彩图见网络版)

Fig.3 (a) Thermoluminescence spectrum of Risø calibration quartz, (b) thermoluminescence spectrum of Lingjiatan pottery quartz (color online)

一,得到相应的归一化之后的净TL与ITL信号曲线分别如图4(b)和(c)所示。通常热释光信号只有在深陷阱具有足够的热稳定性来满足测年需求,因此本研究的热释光灵敏度特指高温部分的热释光信号(>250 °C)。通过灵敏度对比,TL和ITL灵敏度可大致排序为:U340<Blue Filter Pack<Red Filter Pack & KG3<Red Filter Pack<SP525。在搭载U340滤光片时,难以从背景中区分出TL和ITL信号,因此并不适用于本研究中的考古高温受热石英测年研究,这也与此前光谱观测的波长分布结果一致。在搭载其余4种滤光片组合时,均能从背景中分离出TL和ITL信号,但在Red Filter Pack滤光片组合下的TL曲线在高温部分(>400 °C)存在显著的炽热发光信号(黑体辐射)干扰,而添加KG3吸热玻璃后(Red Filter Pack & KG3)的TL曲线的杂信号得到一定程度的抑制。图4(b)中,Blue TL和Red TL呈现出不同的高温峰,其热释光峰参数将在后续进一步分析。图4(c)中,因为Red ITL的测试温度高于Blue ITL,受炽热发光的影响更为显著,使得Red ITL的背景信号均高于Blue ITL,但所有的ITL信号依然能从背景中分离出来。综合考虑释光信号灵敏度和信噪比,本研究确定了观测Blue TL/ITL信号的最佳滤光片为SP525,观测Red TL/ITL信号的最佳滤光片组合为Red Filter Pack & KG3,并将其作为后续实验的滤光片配置。

2.1.3 热释光信号解卷积运算

计算机化热释光解卷积运算是将复杂的热释光曲线分解为多个热释光组分,并计算各个组分的电子陷阱动力学参数的一种数据分析方法。开源R语言包“tgcd”内置集成了一阶、二阶、一般阶、混合阶等多种动力学模型,为热释光信号的解卷积运算提

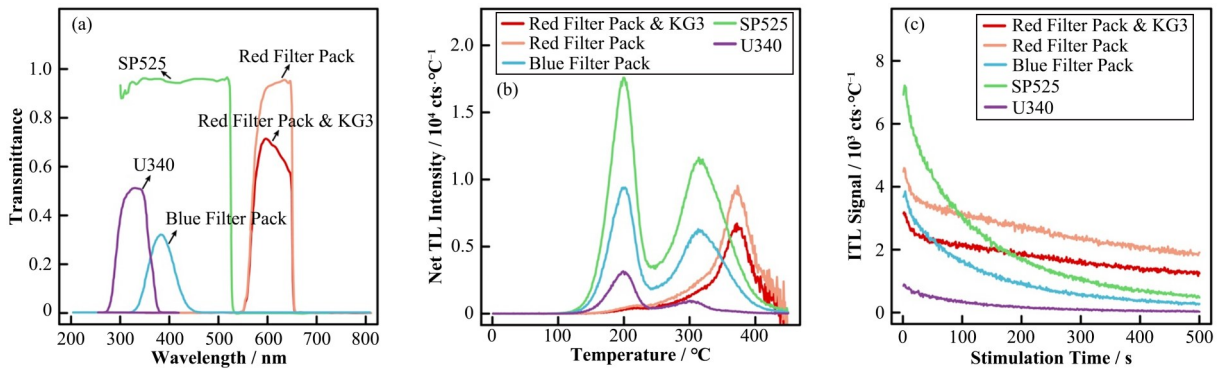


图4 (a) 不同滤光片组合的透射率与不同光电倍增管的量子效率,(b) 不同滤光片与光电倍增管组合的考古陶器石英热释光灵敏度信号,(c) 不同滤光片与光电倍增管组合的考古陶器石英等温热释光灵敏度信号

Fig.4 (a) Transmittance of different filter combinations and quantum efficiencies of different PMTs, (b) sensitivity signal of archaeological pottery quartz thermoluminescence for different filter and PMT combinations, (c) isothermal thermoluminescence sensitivity signal of archaeological pottery quartz with different filter and PMT combinations

供了一种便捷的途径^[36]。本研究利用“tgcd”内置的一般阶经验公式(1)^[36-37],分析了考古高温受热石英 Blue TL 和 Red TL 的热释光组分及相关动力学参数。

$$I(T) = I_m b^{\frac{b}{b-1}} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) \left[(b-1) \left(1 - \frac{2kT}{E}\right) \frac{T^2}{T_m^2} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) + 1 + \frac{2kT_m(b-1)}{E} \right]^{-\frac{b}{b-1}} \quad (1)$$

式中: I 是热释光信号强度; T 是温度, K ; E 是活化能, eV ; k 是玻耳兹曼常数, $eV \cdot K^{-1}$; T_m 是热释光强度最大时的温度, K ; I_m 是热释光信号最大强度; b 是动力学阶数。

与释光灵敏度测试条件一样,获得的考古高温

受热石英样品的 Blue TL 和 Red TL 散点数据分别如图 5(a)和(b)所示,经过解卷积运算,两类热释光曲线均可以分解为 210 °C、325 °C、375 °C 峰,图 5 中的皮尔逊相关系数的平方(R^2)趋近于 1,表明曲线拟合度较好。通过式(1)进行解卷积运算得到的动力学参数如表 2 所示,结果表明,Blue TL 的主峰为 325 °C,表明该样品的蓝光发光主要源自于相对较浅的陷阱;而 Red TL 的主峰为 375 °C,表明该样品的红光发光主要源自于相对较深的陷阱。表 2 中的分辨率 R 是表示相邻两个峰的重叠程度参数, $R > 1$ 表示两峰独立或弱重叠, $0.5 < R < 1$ 表示强重叠, $0.25 < R < 0.5$ 表示极强重叠, $0 < R < 0.25$ 表示两峰具有单峰形状, R 趋于 0 表示解卷积方法无效。本研究中的分辨率 R 除 0.97 外均大于 1,表明分解得到的热释光峰可靠程度较高^[36,38]。

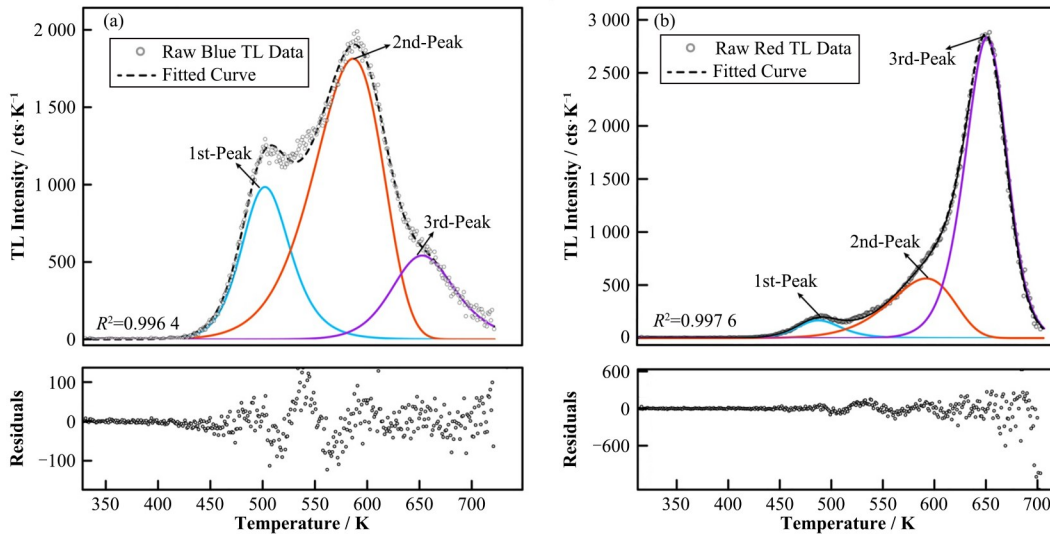


图5 经过一般阶方程拟合的 Blue TL (a)和 Red TL (b)的热释光曲线及热释光峰

Fig.5 Thermoluminescence curves and peaks for Blue TL (a) and Red TL (b), fitted using a general-order empirical expression

表2 使用一般阶公式解卷积获得的Blue TL和Red TL的动力学参数
Table 2 Kinetic parameters determined by deconvolving Blue TL and Red TL using general-order empirical expression

动力学参数 Parameters	热释光峰1 TL peak1		热释光峰2 TL peak2		热释光峰3 TL peak3	
	蓝光热释光 Blue TL	红光热释光 Red TL	蓝光热释光 Blue TL	红光热释光 Red TL	蓝光热释光 Blue TL	红光热释光 Red TL
	Blue TL	Red TL	Blue TL	Red TL	Blue TL	Red TL
T_m / K	502.64	485.98	586.34	590.60	652.74	647.96
I_m / cts	980.87	665.20	1 812.26	2 297.90	543.23	11 294.48
E / eV	1.33	1.35	0.86	0.92	1.70	2.24
b	2.00	2.00	1.00	1.00	2.00	1.53
s / s^{-1}	2.82×10^{12}	1.16×10^{13}	1.35×10^6	4.74×10^6	2.12×10^{12}	2.72×10^{16}
R	1.16	1.52	0.97	1.01	—	—

2.1.4 热释光信号的光可晒退性

为探究光照对Blue TL和Red TL的影响,本研究采用德国Dr. Hönle生产的SOL 500 RF2型太阳光模拟器进行光晒退实验。光晒退时间分别为0 min、1 min、2 min、4 min、8 min、16 min、32 min、64 min、128 min,每组晒退时间设置1个测片,测试条件与释光灵敏度实验一致,得到图6插图所示TL曲线。根据此前的解卷积运算得到的动力学参数,Blue TL和Red TL都采用290~325 °C(T_1)和340~375 °C(T_2)两种积分区间进行TL信号的积分,以对比不同发光波段下的浅陷阱与深陷阱的光晒退性。测试得到的热释光信号经过各自的初始信号归一化得到残余TL信号随光晒退时间的变化趋势图。图6散点图表

明,Blue TL的325 °C主峰和375 °C次峰随光晒退时间增加均呈现显著衰减,但因375 °C峰对应的陷阱比325 °C深,致使375 °C峰光晒退速率小于325 °C,最终经过128 min光晒退, T_1 和 T_2 积分区间的Blue TL可分别晒退至初始值的约7%和12%;Red TL的325 °C次峰在1 min光晒退后发生快速衰减,随后的衰退速率减缓,最终经过128 min光晒退, T_1 积分区间的Red TL可晒退至初始值的约58%,而375 °C主峰在 T_2 积分区间不会随光晒退时间增加而发生显著变化。Blue TL与Red TL的375 °C峰呈现出不同的光晒退性,表明二者可能源自于不同的陷阱-发光中心组合。

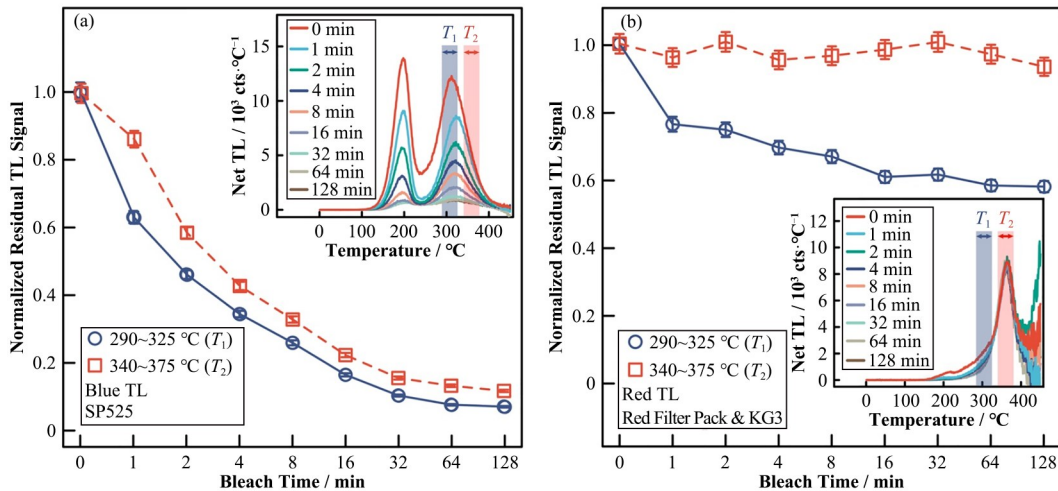


图6 (a) Blue TL曲线及290~325 °C TL信号积分随曝光时间的变化趋势,(b) Red TL曲线及340~375 °C TL信号积分随曝光时间的变化趋势

Fig.6 (a) The Blue TL curve and the trend of 290~325 °C TL signal integral with exposure time, (b) the Red TL curve and the trend of 340~375 °C TL signal integral with exposure time

2.2 释光测年

2.2.1 坪测试

常规的光释光测年首先需要进行预热坪测试,以确定预热温度等测试条件,获取稳定光释光信号,

与此不同的是,热释光测年是直接运行 D_0 测量程序,再根据坪测试的结果选择合适的热释光信号积分区间。热释光测年中常见的坪测试包括两种:一是加热坪,即自然信号与再生剂量信号的比值^[11,39];

二是 D_e 坪, 即 D_e 随积分温度的变化。综合两种坪测试的结果确定得到了热释光 D_e 的积分区间, 如图 7 所示, Blue TL 的积分温度为 290~325 °C, Red TL 的

积分温度为 340~375 °C, 且两种方法的剂量响应曲线均采用二次方程拟合, 并通过内插法计算得到 D_e 。

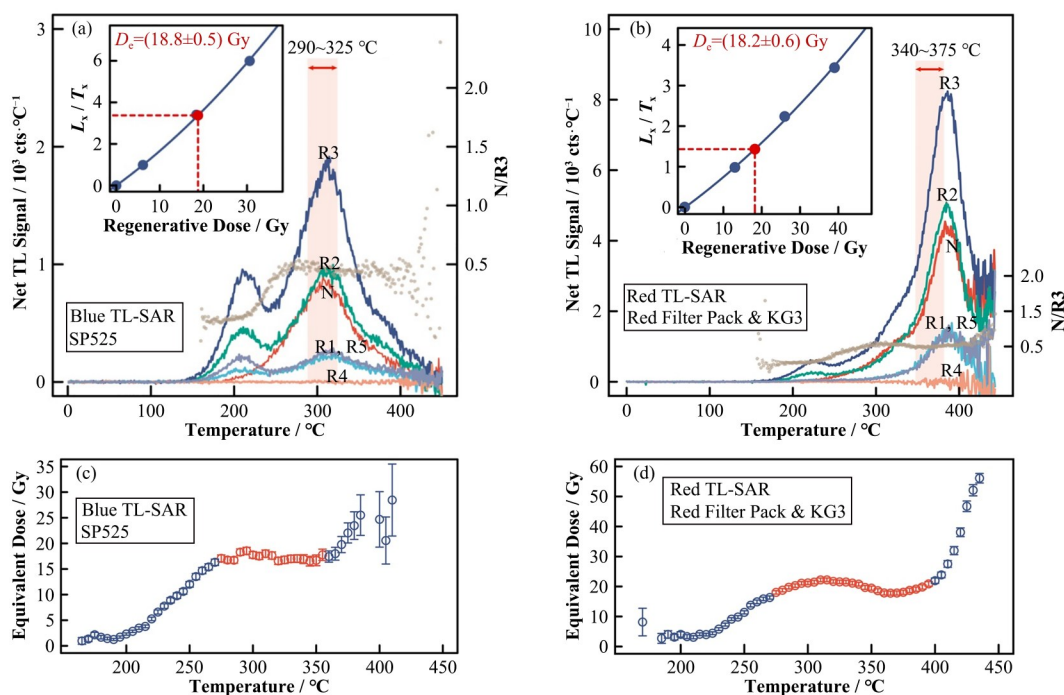


图 7 (a、c) Blue TL-SAR 的加热坪与 D_e 坪实验, 并确定 Blue TL-SAR 的积分区间为 290~325 °C, (b、d) Red TL-SAR 的加热坪与 D_e 坪实验, 并确定 Red TL-SAR 的积分区间为 340~375 °C

Fig. 7 (a, c) The heated plateau and D_e plateau test results for Blue TL-SAR, respectively, establishing the integration interval of 290~325 °C for Blue TL-SAR. In contrast, (b, d) the heated plateau and D_e plateau test results for Red TL-SAR, determining the interval at 340~375 °C for Red TL-SAR

2.2.2 剂量恢复实验

为进一步探究在不同滤光片及测年方法组合下的剂量恢复情况, 进行了多种滤光片搭配的剂量恢复实验。图 8 仅展示了其中 4 种组合的结果, 包括: Blue TL/ITL-SAR (滤光片为 SP525)、Red TL/ITL-SAR (滤光片为 Red Filter Pack & KG3)。剂量恢复实验结果表明, 所有组合的剂量恢复比值 (给定的人工剂量与测定的 D_e 之比, 简称 M/G) 都介于 0.9~1.1 之间, 表明了实验条件的有效性。此外在尝试使用滤光片组合 OG570 & KG3 时, 因缺少对近红外炽热发光 (黑体辐射) 的抑制, 使得其 TL 曲线在高温部分存在显著的杂信号干扰, 剂量响应曲线的拟合程度较低, 而在此基础上添加短波通滤光片 SP650, 即构成 Red Filter Pack & KG3 滤光片组合之后, 这部分炽热发光的影响显著降低, 从而提高了其剂量响应曲线的拟合程度 (图中未给出)。结合此前灵敏度测试的结果, 可进一步确认滤光片 SP525 是进行 Blue TL/ITL 测年, 滤光片组合 Red Filter Pack & KG3 是进行 Red TL/ITL 测年的最佳选择。

2.2.3 等效剂量测定

采用表 1 中列举的 5 种释光测年方法, 对同一考古受热石英样品进行了 D_e 测量, 图 9 仅展示了本研究所重点关注的 4 种 TL/ITL 方法的辐射图 (Radial plot)。4 种 TL/ITL-SAR 方法的过度分散值 (Overdispersion, OD) 较小, 介于 4.7%~13.8% 之间, 而 OSL-SAR 的 OD 为 18.5%。

2.2.4 年代对比

考古埋藏环境下的陶器的剂量率主要由以下几个部分构成: 一是陶器本身的 U、Th、K 元素产生的 α 与 β 剂量率, 可采用放射性元素含量转换计算获得; 二是来自于埋藏环境土壤的 U、Th、K 元素贡献的 γ 剂量率 (以及少量陶器内部贡献的 γ 剂量率); 三是来自于宇宙射线的剂量率, 可通过经纬度、海拔、埋藏深度计算获得。本研究中的 U、Th 元素通过电感耦合等离子体质谱仪 (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer, ICP-MS) 测试获得, 而 K 元素则为电感耦合等离子体发射光谱仪 (Inductively Coupled Plasma Optic Emission Spectrometer, ICP-OES) 测算获得。经测算, 陶器本体的 U、Th、K 元素

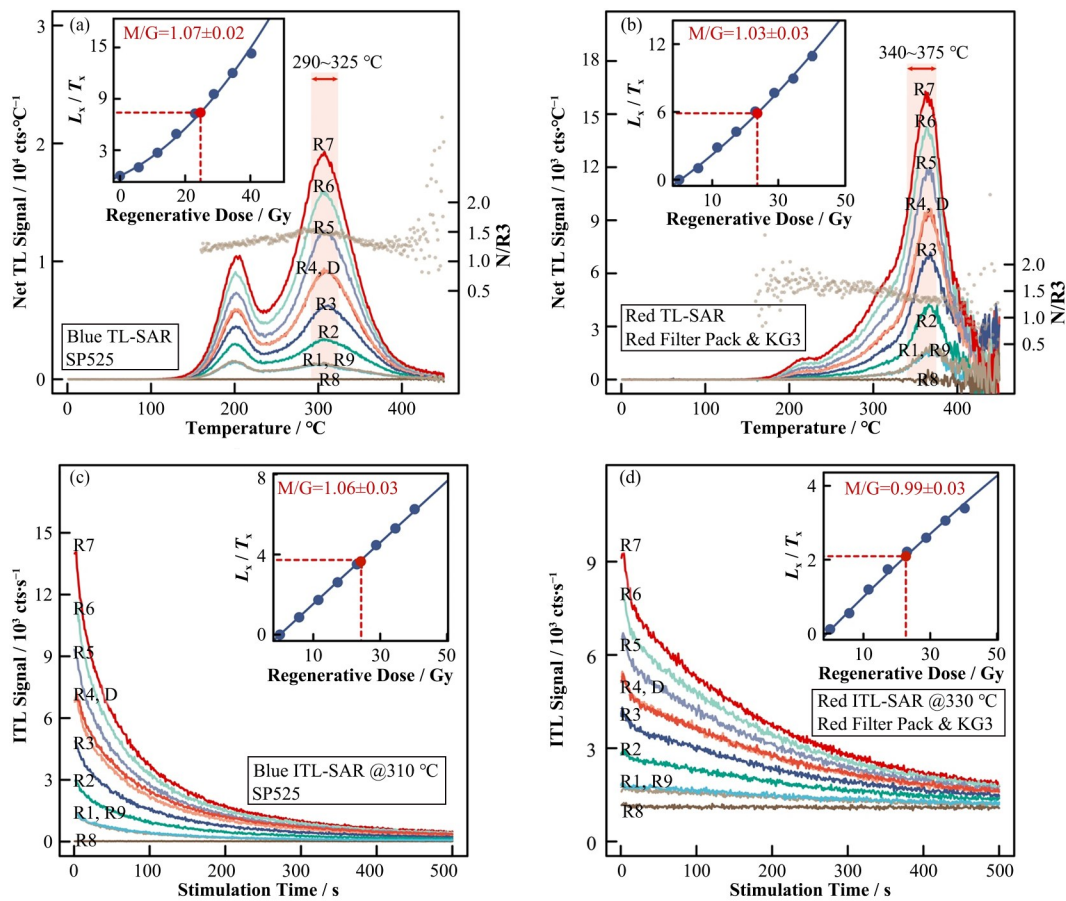


图8 Blue TL-SAR (a)、Red TL-SAR (b)、Blue ITL-SAR (c)、Red ITL-SAR (d)的剂量恢复实验

Fig.8 The dose recovery test results for Blue TL-SAR (a), Red TL-SAR (b), Blue ITL-SAR (c), and Red ITL-SAR (d), respectively

含量为 4×10^{-6} 、 11×10^{-6} 、2.12%，陶器周围土壤的U、Th、K元素含量为 3×10^{-6} 、 12×10^{-6} 、1.75%。经纬度采用 $31^{\circ}29' N$ ， $118^{\circ}02' E$ ，埋藏深度为1.5 m，海拔取5 m，陶器与土壤含水率为实测值分别为4.5%与14.8%，最终通过剂量率和年代计算器(Dose Rate and Age Calculator, DRAC)^[40]计算得到的该样品剂量率为 $(3.50 \pm 0.15) \text{ Gy} \cdot \text{ka}^{-1}$ ，并通过“numOSL”R语言拓展包进行释光统计数据分^[41-43]，计算得到所有释光年代结果见表3。

通常石英的OSL-SAR方法是利用快组分进行测年，这部分信号来自于 325°C TL陷阱^[21]，结合本研究的TL光谱数据中蓝光发光波段强烈的 325°C

峰，可进一步推测OSL-SAR的信号来源为 325°C Blue TL陷阱，因此OSL测年结果更为接近Blue TL/ITL-SAR。而此前研究尚不明确Red TL陷阱与OSL的对应关系，且本研究中的光晒退实验表明，Blue TL 325°C 主峰具有光可晒退性，Red TL 375°C 主峰则几乎不可晒退，这表明Red TL/ITL-SAR和Blue TL/ITL-SAR方法利用了不同光敏感性的陷阱-发光中心组，两类方法的测年结果略有偏差。但通过对比5种释光测年方法及凌家滩遗址已公布的碳-14年龄(距今5 300~5 800年)，结果表明，Blue TL/ITL与Red TL/ITL均与光释光、碳-14年龄在误差范围内一致。

表3 不同释光方法测定年代对比
Table 3 Comparison of ages of different luminescence dating methods

方法 Method	等效剂量 Equivalent dose D_e / Gy	过度分散值 Overdispersion OD / %	年代 Age / ka
Blue TL-SAR	19.6 ± 0.2	4.7 ± 1.0	5.6 ± 0.3
Blue ITL-SAR	19.4 ± 0.5	12.6 ± 2.0	5.5 ± 0.3
Red TL-SAR	18.5 ± 0.4	13.8 ± 1.7	5.3 ± 0.3
Red ITL-SAR	18.8 ± 0.5	10.5 ± 2.2	5.4 ± 0.3
OSL-SAR	19.4 ± 0.9	18.5 ± 3.4	5.5 ± 0.4

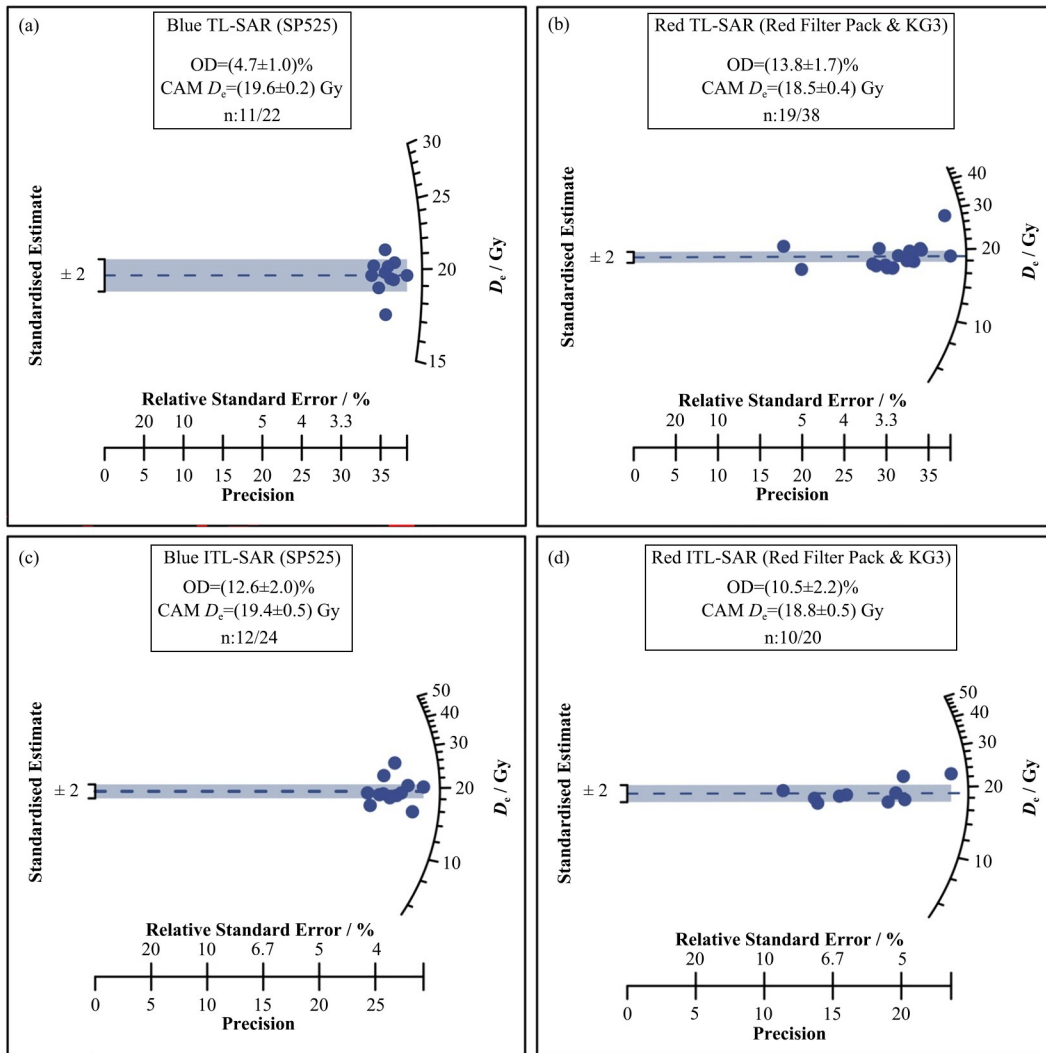


图9 Blue TL-SAR (a)、Red TL-SAR (b)、Blue ITL-SAR (c)、Red ITL-SAR (d)方法的 D_e 辐射图
 Fig.9 D_e radial plots of Blue TL-SAR (a), Red TL-SAR (b), Blue ITL-SAR (c), and Red ITL-SAR (d), respectively

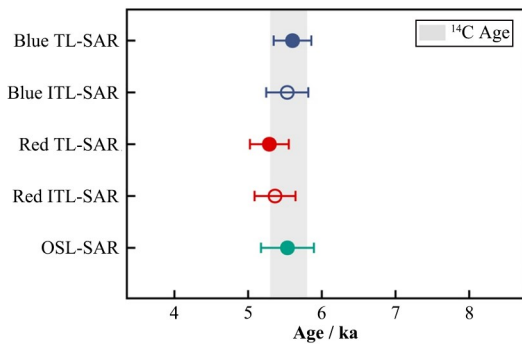


图10 释光与碳-14年代对比
 Fig.10 Comparison of luminescence and radiocarbon ages

3 结语

本研究成功地将 Andor 光谱仪、CCD 相机与 Risø DA-20 型释光测年仪器进行了联用,经过一系列的调试、校正,测量得到了 Risø batch 200 标准校

正石英的热释光发光光谱主要由 470 nm 左右的蓝光发光为主,而凌家滩考古遗址出土的高温陶器中受热石英的热释光发光光谱则以 620 nm 左右的红光发光为主。结合光谱结果,配置了蓝光敏感和红光敏感的两种光电倍增管,设计了 5 种滤光片组合,通过灵敏度测试,归纳总结得到了短波通 SP525 滤光片是进行 Blue TL/ITL 测试的最佳滤光片,而由长波通 OG570 与短波通 SP650 滤光片构成的 Red Filter Pack,再增添 KG3 吸热玻璃是进行 Red TL/ITL 测试的最佳滤光片组合。通过对考古高温受热石英热释光信号的解卷积计算与光晒退实验,结果表明,Blue TL 以 325 °C 峰为主,具有显著的光可晒退性,而 Red TL 以 375 °C 峰为主,几乎不受光照影响而发生衰减,表明 Red TL/ITL 在解决意外曝光的考古受热材料释光测年方面具有潜在意义。最终,本研究对比了包括 Blue TL/ITL、Red TL/ITL、OSL-SAR 在

内的5种方法在考古高温受热石英释光测年中的应用,结果表明:进行坪测试、剂量恢复实验等条件实验的基础上,通过多波段热释光、多波段等温热释光、光释光方法获得的年代结果与碳-14年龄具有良好的一致性;同时通过对比多种不同陷阱来源的释光测年方法,有效进行了释光测年结果的内部校验,从而提高了对释光测定结果准确性的信心。

作者贡献声明 汪椿鑫负责样品采集、实验方案设计、数据分析、数据处理、论文撰写;范安川和李波负责提供理论指导与论文修改意见;闫子晗协助数据处理;张小雷领队授权本研究的陶器样品。

参考文献

- Anderson S L, Feathers J K. Applying luminescence dating of ceramics to the problem of dating Arctic archaeological sites[J]. *Journal of Archaeological Science*, 2019, **112**: 105030. DOI: [10.1016/j.jas.2019.105030](https://doi.org/10.1016/j.jas.2019.105030).
- Wang C X, Ji X, Wu Y J, *et al.* Quartz OSL and TL dating of pottery, burnt clay, and sediment from Beicun archaeological site, China[J]. *Quaternary Geochronology*, 2022, **70**: 101281. DOI: [10.1016/j.quageo.2022.101281](https://doi.org/10.1016/j.quageo.2022.101281).
- Fu X, Zhang J F, Mo D W, *et al.* Luminescence dating of baked earth and sediments from the Qujialing archaeological site, China[J]. *Quaternary Geochronology*, 2010, **5**(2 - 3): 353 - 359. DOI: [10.1016/j.quageo.2009.06.006](https://doi.org/10.1016/j.quageo.2009.06.006).
- 吴婧玮, 龚玉武, 夏君定. 中国海南省中和镇古城墙砖的热释光测年研究[J]. *文物保护与考古科学*, 2014, **26**(4): 8 - 13. DOI: [10.16334/j.cnki.cn31-1652/k.2014.04.002](https://doi.org/10.16334/j.cnki.cn31-1652/k.2014.04.002).
WU Jingwei, GONG Yuwu, XIA Junding. Thermoluminescence dating research of ancient wall bricks from Zhonghe Town, Hainan, China[J]. *Sciences of Conservation and Archaeology*, 2014, **26**(4): 8 - 13. DOI: [10.16334/j.cnki.cn31-1652/k.2014.04.002](https://doi.org/10.16334/j.cnki.cn31-1652/k.2014.04.002).
- Bailiff I K. Methodological developments in the luminescence dating of brick from English late-medieval and post-medieval buildings[J]. *Archaeometry*, 2007, **49**(4): 827 - 851. DOI: [10.1111/j.1475-4754.2007.00338.x](https://doi.org/10.1111/j.1475-4754.2007.00338.x).
- 吴婧玮, 熊樱菲, 龚玉武, 等. 上海青龙镇遗址出土瓷器和砖瓦样品热释光特性研究[J]. *文物保护与考古科学*, 2018, **30**(5): 36 - 49. DOI: [10.16334/j.cnki.cn31-1652/k.2018.05.006](https://doi.org/10.16334/j.cnki.cn31-1652/k.2018.05.006).
WU Jingwei, XIONG Yingfei, GONG Yuwu, *et al.* Research on the thermoluminescent characteristics of porcelain and brick samples unearthed from Qinglong Town in Shanghai[J]. *Sciences of Conservation and Archaeology*, 2018, **30**(5): 36 - 49. DOI: [10.16334/j.cnki.cn31-1652/k.2018.05.006](https://doi.org/10.16334/j.cnki.cn31-1652/k.2018.05.006).
- Karimi Moayed N, Vandenberghe D A G, Deforce K, *et al.* Bypassing the Suess-effect: age determination of charcoal kiln remains using OSL dating[J]. *Journal of Archaeological Science*, 2020, **120**: 105176. DOI: [10.1016/j.jas.2020.105176](https://doi.org/10.1016/j.jas.2020.105176).
- Armitage S J, Krishna A, Parker L E, *et al.* Optically stimulated luminescence dating of heat retainer hearths from the Sahara: insights into signal accumulation and measurement[J]. *Quaternary Geochronology*, 2019, **49**: 249 - 253. DOI: [10.1016/j.quageo.2018.03.004](https://doi.org/10.1016/j.quageo.2018.03.004).
- Godfrey-Smith D I, Casey J L. Direct thermoluminescence chronology for Early Iron Age smelting technology on the Gambaga Escarpment, Ghana [J]. *Journal of Archaeological Science*, 2003, **30**(8): 1037 - 1050. DOI: [10.1016/S0305-4403\(02\)00292-3](https://doi.org/10.1016/S0305-4403(02)00292-3).
- Wintle A G. Fifty years of luminescence dating[J]. *Archaeometry*, 2008, **50**(2): 276 - 312. DOI: [10.1111/j.1475-4754.2008.00392.x](https://doi.org/10.1111/j.1475-4754.2008.00392.x).
- Aitken M J. Thermoluminescence dating[M]. U. S. Ed. London: Academic Press, 1985.
- Solongo S, Tengis S, Wagner G A, *et al.* CW-OSL, LM-OSL and TL dating of bricks from Karakorum, Mongolia: insights from TL spectra[J]. *Geochronometria*, 2020, **48**: 402 - 414. DOI: [10.2478/geochr-2020-0003](https://doi.org/10.2478/geochr-2020-0003).
- Haustein M, Roewer G, Krbetschek M R, *et al.* Dating archaeometallurgical slags using thermoluminescence[J]. *Archaeometry*, 2003, **45**(3): 519 - 530. DOI: [10.1111/1475-4754.00125](https://doi.org/10.1111/1475-4754.00125).
- Hashimoto T. An overview of red-thermoluminescence (RTL) studies on heated quartz and RTL application to dosimetry and dating[J]. *Geochronometria*, 2008, **30**(1): 9 - 16. DOI: [10.2478/v10003-008-0011-z](https://doi.org/10.2478/v10003-008-0011-z).
- Haustein M, Krbetschek M R, Trautmann T, *et al.* A luminescence study for dating archaeometallurgical slagspaper[J]. *Quaternary Science Reviews*, 2001, **20**(5 - 9): 981 - 985. DOI: [10.1016/S0277-3791\(00\)00038-x](https://doi.org/10.1016/S0277-3791(00)00038-x).
- Rodrigues K, Huot S, Keen-Zebert A. Exploring the application of blue and red thermoluminescence for dating volcanic glasses[J]. *Radiation Measurements*, 2022, **153**: 106731. DOI: [10.1016/j.radmeas.2022.106731](https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2022.106731).
- Ganzawa Y, Furukawa H, Hashimoto T, *et al.* Single grains dating of volcanic quartz from pyroclastic flows using Red TL[J]. *Radiation Measurements*, 2005, **39**(5):

- 479 - 487. DOI: [10.1016/j.radmeas.2004.10.012](https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2004.10.012).
- 18 Song K W, Yun K K, Hong D G. Radiation response of thermoluminescence glow peaks separated using a glow curve fitting method for red emission from quartz[J]. *Radiation Measurements*, 2009, **44**(5 - 6): 611 - 614. DOI: [10.1016/j.radmeas.2009.03.034](https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2009.03.034).
- 19 Bøtter-Jensen L, McKeever S W S, Wintle A G. Passive optically stimulated luminescence dosimetry[M]. *Optically Stimulated Luminescence Dosimetry*. Amsterdam: Elsevier, 2003: 101 - 118. DOI: [10.1016/b978-044450684-9/50091-x](https://doi.org/10.1016/b978-044450684-9/50091-x).
- 20 Wang C X, Zhang X L, Zhang Y Y, *et al.* Luminescence dating of heated quartz extracted from burnt clay and pottery excavated from the Lingjiatan archaeological site, China[J]. *Frontiers in Earth Science*, 2022, **10**: 933342. DOI: [10.3389/feart.2022.933342](https://doi.org/10.3389/feart.2022.933342).
- 21 Murray A S, Wintle A G. Application of the single-aliquot regenerative-dose protocol to the 375 °C quartz TL signal [J]. *Radiation Measurements*, 2000, **32**(5 - 6): 579 - 583. DOI: [10.1016/S1350-4487\(00\)00089-5](https://doi.org/10.1016/S1350-4487(00)00089-5).
- 22 Jain M, Bøtter-Jensen L, Murray A S, *et al.* Revisiting TL: dose measurement beyond the OSL range using SAR[J]. *Ancient TL*, 2005, **23**: 9 - 24.
- 23 Rahimzadeh N, Zhang J J, Tsukamoto S, *et al.* Characteristics of the quartz isothermal thermoluminescence (ITL) signal from the 375 °C peak and its potential for extending the age limit of quartz dating[J]. *Radiation Measurements*, 2023, **161**: 106899. DOI: [10.1016/j.radmeas.2022.106899](https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2022.106899).
- 24 Murray A, Arnold L J, Buylaert J P, *et al.* Optically stimulated luminescence dating using quartz[J]. *Nature Reviews Methods Primers*, 2021, **1**(1): 72. DOI: [10.1038/s43586-021-00068-5](https://doi.org/10.1038/s43586-021-00068-5).
- 25 Murray A S, Wintle A G. Luminescence dating of quartz using an improved single-aliquot regenerative-dose protocol[J]. *Radiation Measurements*, 2000, **32**(1): 57 - 73. DOI: [10.1016/S1350-4487\(99\)00253-X](https://doi.org/10.1016/S1350-4487(99)00253-X).
- 26 Chen R, Pagonis V. *Advances in physics and applications of optically and thermally stimulated luminescence*[M]. Europe: World Scientific, 2019. DOI: [10.1142/q0172](https://doi.org/10.1142/q0172).
- 27 Westaway K, Prescott J. Investigating signal evolution: a comparison of red and UV/blue TL, and UV OSL emissions from the same quartz sample[J]. *Radiation Measurements*, 2012, **47**(9): 909 - 915. DOI: [10.1016/j.radmeas.2012.01.001](https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2012.01.001).
- 28 Tan K X, Liu Z H, Zeng S, *et al.* Three-dimensional thermoluminescence spectra of different origin quartz from Altay Orogenic belt, Xinjiang, China[J]. *Radiation Measurements*, 2009, **44**(5 - 6): 529 - 533. DOI: [10.1016/j.radmeas.2009.06.004](https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2009.06.004).
- 29 Götze J. Chemistry, textures and physical properties of quartz—geological interpretation and technical application [J]. *Mineralogical Magazine*, 2009, **73**(4): 645 - 671. DOI: [10.1180/minmag.2009.073.4.645](https://doi.org/10.1180/minmag.2009.073.4.645).
- 30 Hashimoto T, Notoya S, Arimura T, *et al.* Changes in luminescence colour images from quartz slices with thermal annealing treatments[J]. *Radiation Measurements*, 1996, **26**(2): 233 - 242. DOI: [10.1016/1350-4487\(95\)00300-2](https://doi.org/10.1016/1350-4487(95)00300-2).
- 31 Hashimoto T, Hayashi Y, Koyanagi A, *et al.* Red and blue colouration of thermoluminescence from natural quartz sands[J]. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation Part D Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 1986, **11**(4 - 5): 229 - 235. DOI: [10.1016/1359-0189\(86\)90039-7](https://doi.org/10.1016/1359-0189(86)90039-7).
- 32 Hashimoto T, Koyanagi A, Yokosaka K, *et al.* Thermoluminescence color images from quartzs of beach sands[J]. *Geochemical Journal*, 1986, **20**(3): 111 - 118. DOI: [10.2343/geochemj.20.111](https://doi.org/10.2343/geochemj.20.111).
- 33 Hashimoto T, Sakaue S, Aoki H, *et al.* Dependence of TL-property changes of natural quartzes on aluminium contents accompanied by thermal annealing treatment[J]. *Radiation Measurements*, 1994, **23**(2 - 3): 293 - 299. DOI: [10.1016/1350-4487\(94\)90055-8](https://doi.org/10.1016/1350-4487(94)90055-8).
- 34 Krbetschek M R, Götze J, Dietrich A, *et al.* Spectral information from minerals relevant for luminescence dating[J]. *Radiation Measurements*, 1997, **27**(5 - 6): 695 - 748. DOI: [10.1016/S1350-4487\(97\)00223-0](https://doi.org/10.1016/S1350-4487(97)00223-0).
- 35 Hansen V, Murray A, Buylaert J P, *et al.* A new irradiated quartz for beta source calibration[J]. *Radiation Measurements*, 2015, **81**: 123 - 127. DOI: [10.1016/j.radmeas.2015.02.017](https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2015.02.017).
- 36 Peng J, Kitis G, Sadek A M, *et al.* Thermoluminescence glow-curve deconvolution using analytical expressions: a unified presentation[J]. *Applied Radiation and Isotopes*, 2021, **168**: 109440. DOI: [10.1016/j.apradiso.2020.109440](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2020.109440).
- 37 Kitis G, Gomez-Ros J M, Tuyn J W N. Thermoluminescence glow-curve deconvolution functions for first, second and general orders of kinetics[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 1998, **31**(19): 2636 - 2641. DOI: [10.1088/0022-3727/31/19/037](https://doi.org/10.1088/0022-3727/31/19/037).
- 38 Kitis G, Pagonis V. On the resolution of overlapping

- peaks in complex thermoluminescence glow curves[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2019, **913**: 78 - 84. DOI: [10.1016/j.nima.2018.10.056](https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.10.056).
- 39 Richter D, Krbetschek M. A new thermoluminescence dating technique for heated flint[J]. Archaeometry, 2006, **48**(4): 695 - 705. DOI: [10.1111/j.1475-4754.2006.00281.x](https://doi.org/10.1111/j.1475-4754.2006.00281.x).
- 40 Durcan J A, King G E, Duller G A T. DRAC: dose rate and age calculator for trapped charge dating[J]. Quaternary Geochronology, 2015, **28**: 54 - 61. DOI: [10.1016/j.quageo.2015.03.012](https://doi.org/10.1016/j.quageo.2015.03.012).
- 41 Peng J, Dong Z, Han F Q, *et al.* R package numOSL: numeric routines for optically stimulated luminescence dating[J]. Ancient TL, 2013, **31**: 8.
- 42 Peng J J, Li B. Single-aliquot regenerative-dose (SAR) and standardised growth curve (SGC) equivalent dose determination in a batch model using the R package 'numOSL'[J]. Ancient TL, 2017, **35**(2): 22.
- 43 R Core Team. R: a language and environment for statistical computing[CP]. Vienna, Austria: R Foundation for Statistical Computing, 2013.