

# 非破壊 $\gamma$ 法による年代測定

小村和久

## 1. はじめに

天然の $^{238}\text{U}$ -系列(以下U系列) $^{235}\text{U}$ 系列には半減期が数10年から数10万年にわたる比較的寿命の長い核種が多く存在する。これらの核種間の放射非平衡\*を時計とする各種の年代測定は古くから試みられ、地球化学や考古学的に興味深いさまざまな化石試料や、堆積物、鉱物等の年代が求められている。放射非平衡を利用する年代測定は、少なくとも次の仮定が成立することを前提としている。

(1) 化学的挙動の違いや、生物によるとり込まれ易さの違いなどにより、対象とする系(試料)が生成あるいは生長する過程で、親核種と娘核種または娘核種間に分別がおこった。

(2) とりこまれた核種は、その系内にとどまりそれぞれの物理的半減期により生長または減衰する。

細かい議論をすれば、このほかにもさまざまな仮定が必要条件として加わってくるが、いま、年代測定を行おうとしている試料は、これらの条件を満たしているものとして話をすすめることにしたい。

なお本誌の1号および5号で阪上によりフィッシュントラック法とU系列非平衡による年代測定を化石骨その他考古学的な遺跡に応用した例について紹介<sup>1,2)</sup>があるので参照していただきたい。

ここで紹介する非破壊法は、これまで $\alpha$ 測定によって求めていたU系列の非平衡を $\gamma$ 測定によりできるだけ簡単な方法で求めようとするもので、化石サンゴおよび化石骨への適用例を中心に述べる。

## 2. $\gamma$ 測定の特長

Table 1はU系列核種をその半減期の長さによって $^{238}\text{U}$ 、 $^{234}\text{U}$ 、 $^{230}\text{Th}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、および $^{210}\text{Pb}$ の5つのグループに分けて、半減期、壊変様式、 $\gamma$ 線エネルギー、 $\gamma$ 線放出率の値を示したものである。この表からU系列の比較的寿命の長い核種は $^{210}\text{Pb}$ をのぞいてすべて $\alpha$ 壊変していることが

---

金沢大理学部附属低レベル放射能実験施設：石川県能登郡辰口町和気

\* 半減期の長い親核種と半減期の短い娘核種の放射能比は、娘の半減期の10倍もたつと1になる。放射非平衡はこの比が1にない状態をさす。

表1. U系列核種から放出されるγ線

Table 1. Gamma-rays from U-series nuclides

Group	Nuclide	Half-life	Decay mode	Energy (keV)	Gamma-ray Abundance (%)			
					(a)	(b)	(c)	(d)
1	U-238	4.47x10 <sup>9</sup> y	α	49.6	-	0.32	0.075	-
	Th-234	24.1 d	β <sup>-</sup>	63.3	5.69	3.8	5.7	3.827
				92.4	3.15	3.8	3.2	2.725
				92.8	3.55	2.7	3.6	2.688
				1001.4	0.828	0.59	0.59	0.590
Pa-234m	1.17 m	β <sup>-</sup> ,IT	1001.4	0.828	0.59	0.59	0.590	
2	U-234	2.45x10 <sup>5</sup> y	α	53.3	0.118	0.119	0.681	-
				120.9	0.0413	0.040	0.233	-
3	Th-230	7.52x10 <sup>4</sup> y	α	67.8	0.381	0.37	0.40	0.38
4	Ra-226	1600 y	α	186.0	3.90	3.3	4.00	3.28
	Rn-222	3.824 d	α	510.0	0.10	0.07	0.07	-
	Po-218	3.05 m	α	-	-	-	-	-
	Pb-214	26.8 m	β <sup>-</sup>	241.9	7.60	7.60	7.60	7.46
				295.2	18.9	18.9	18.9	-
				351.9	36.3	36.7	36.0	37.06
				609.3	42.8	46.1	41.2	41.2
	Bi-214	19.7 m	β <sup>-</sup>	1120.3	15.0	15.0	13.6	15.0
				1764.5	16.7	15.8	15.8	15.9
				800	-	0.010	0.014	-
Po-214	1.63x10 <sup>-4</sup> s	α	800	-	0.010	0.014	-	
5	Pb-210	22.3 y	β <sup>-</sup>	46.5	4.10	4.05	4.00	4.05
	Bi-210	5.01 d	β <sup>-</sup>	-	-	-	-	
	Po-210	138.4 d	α	803	0.0011	0.0012	0.0011	-

(a) A.R.Smith and H.A.Wollenberg

(b) Table of Isotope

(c) Kernforschungsanlage Jülich

(d) Quick List of Nuclear Decay Data, EG&G ORTEC

わかるであろう。これまでU系列核種による年代測定ではα線測定が主として行われていたのはこのため、それぞれのグループの親核種である<sup>238</sup>U, <sup>234</sup>U, <sup>230</sup>Thを直接定量し、これらの比から年代を算出するものである。これに対し、これから述べようとする非破壊法では表に掲げた各グループの核種間には放射平衡が成立しているものとして、各グループの中でγ線放出率の多い娘核種のγ線を測ることにより間接的に親核種の濃度を求め、親核種間の放射能比から年代を算出するものである。

Table 1に示したようにγ線の放出率(1壊変あたり放出されるγ線の割合)は<sup>214</sup>Pbと<sup>214</sup>Bi以外の核種はたかだか数%しかない。また検出器に入射するγ線の検出効率是一般にα測定に比べ

て低く、測定のさいのバックグラウンドも無視できないなど $\gamma$ 測定には不利な点もいくつかある。

非破壊 $\gamma$ 測定\*の最大の利点は溶解や化学分離をしないで測定できることである。 $\gamma$ 線検出器として環境放射能の測定などで最近ひろく用いられるようになったエネルギー分解能の優れたGe-半導体検出器を用いれば、天然の放射性核種から放出されるさまざまなエネルギーの $\gamma$ 線は化学分離をあらかじめ行わなくても $\gamma$ 線のエネルギースペクトルの測定で十分分離できる。また $\gamma$ 線は透過力が強いので $\alpha$ 測定と違って数10gの試料では試料内での $\gamma$ 線の自己吸収による減衰にそれほど気を使わなくてよく、数100gまでの大きな試料をそのまま測定できる。検出効率や $\gamma$ 線放出率が低いなどの不利な点は試料の量を多くとったり、測定時間を長くすればかなりカバーできる。

また化学処理を何ら行っていないので $\gamma$ 測定ののち他の測定にそのまま用いることができ、必要なら再測定もできる。化学処理のように化学収率を高め、きれいな測定線源を作成するために習熟しなくても測定器さえ安定ならば再現性よく測ることができるのも有利である。

非破壊 $\gamma$ 法は化石サンゴについては、非常に有効なことが確かめられている。2,3の化石骨にこの方法を適用した限りでは試料中にウランがとり込まれるメカニズムや、その時期について研究すべき課題が残されているものの、保存状態の良い試料では非破壊 $\gamma$ 法による年代測定も可能なように思われる。非破壊 $\gamma$ 法で年代を求めるには不適当な試料でも、試料中のU系列核種の非平衡やTh系列核種、 $^{40}\text{K}$ の濃度は、試料が存在していた環境やその変遷を知る手懸りを与えるばかりでなく、他の年代測定法、たとえばTLD法やESR法による年代算出に不可欠な照射線量が得られるので貴重である。

以下、筆者らが研究している非破壊 $\gamma$ 測定による年代測定法について紹介しよう。

なお、Ge-検出器を用いる非破壊 $\gamma$ 測定による化石サンゴその他への適用は筆者ら<sup>3)</sup>とほぼ時を同じくしてYokoyamaら<sup>4)</sup>やHennig<sup>5)</sup>が発表している。筆者らの方法の特長は $^{238}\text{U}$ の定量に比較的面積の大きいGe-LEPS検出器を用いたことと、20~50gの小量の試料で年代を求め得たことである。

### 3. $\gamma$ 測定が可能なU系列核種

Table 1にみられるようにU系列核種は $\alpha$ 壊変する核種でもわずかながら $\gamma$ 線を放出するので原理的にはほとんどの核種が $\gamma$ 測定で定量できそうに見える。しかし $\gamma$ 線放出率が数%以上なければ実際には定量はほとんど不可能であり、目的核種からの放出率の低い $\gamma$ 線を直接測定するよりも、

---

\* 試料に全く手を加えない文字通りの非破壊ではなく、試料の粉碎や線源作成のためのプレス成形はここでは破壊の中に入れない。もちろん隕石や文化財など貴重な試料では文字通りの非破壊測定を行う必要がある。

各グループの中でγ線放出率の大きい娘核種からのγ線による間接測定がずっと有効である。例えば<sup>238</sup>Uの定量は<sup>234</sup>Thの63 keVまたは92 keV γ線、<sup>226</sup>Raは<sup>214</sup>Pbの295 keV ないし 352 keV γ線および<sup>214</sup>Bi 609 keV γ線を測定する。<sup>234</sup>Uと<sup>230</sup>Thはγ線放出率が小さく実用にはならない。したがって、非破壊γ測定では<sup>238</sup>U (<sup>234</sup>Th)と<sup>226</sup>Ra (<sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi)と<sup>210</sup>Pbの3核種しか実用上は定量できない。

#### 4. U系列核種による年代測定の原理

さて、これらの核種から年代を算出するには少し面倒くさい計算が必要になる。最初、試料にはU同位体が優先的に取りこまれ、Th同位体やRa同位体はほとんど取りこまれなかったとしよう。試料は閉鎖系に保たれ、親のUやUから成長する<sup>230</sup>Th、<sup>226</sup>Raは系外に出て行かないで蓄積するものとすれば、t年後のU系列核種の放射能比は次式であらわされる。

$$\begin{aligned} {}^{234}\text{U} / {}^{238}\text{U} &= r \\ &= 1 + (r_0 - 1) \exp(-\lambda_4 t) \end{aligned} \quad (1)$$

$$\begin{aligned} {}^{230}\text{Th} / {}^{238}\text{U} &= \{ 1 - \exp(-\lambda_0 t) \} + (r_0 - 1) \{ \exp(-\lambda_4 t) - \exp(-\lambda_0 t) \} \\ &\quad \times \lambda_0 / (\lambda_0 - \lambda_4) + A_0 \exp(-\lambda_0 t) \end{aligned} \quad (2)$$

<sup>226</sup>Raグループの場合、もっと複雑になるが4成分の和として表わされる。

$$\begin{aligned} {}^{226}\text{Ra} / {}^{238}\text{U} &= a + b + c + d \quad (3) \\ a &= 1 - \exp(-\lambda_6 t) - \{ \exp(-\lambda_0 t) - \exp(-\lambda_6 t) \} \lambda_6 / (\lambda_6 - \lambda_4) \\ b &= (r_0 - 1) \left[ \{ \exp(-\lambda_4 t) - \exp(-\lambda_6 t) \} / (\lambda_6 - \lambda_4) \right. \\ &\quad \left. - \{ \exp(-\lambda_0 t) - \exp(-\lambda_6 t) \} / (\lambda_6 - \lambda_0) \right] \lambda_6 \lambda_0 / (\lambda_6 - \lambda_4) \\ c &= A \cdot \{ \exp(-\lambda_0 t) - \exp(-\lambda_6 t) \} \lambda_6 / (\lambda_6 - \lambda_0) \\ d &= B \cdot \exp(-\lambda_6 t) \end{aligned}$$

で表わされる。ここで $\lambda_4$ ,  $\lambda_0$ ,  $\lambda_6$ はそれぞれ<sup>234</sup>U, <sup>230</sup>Th, <sup>226</sup>Raの壊変定数、 $r_0$ , A, Bは $t=0$ における ${}^{234}\text{U} / {}^{238}\text{U}$ ,  ${}^{230}\text{Th} / {}^{238}\text{U}$ および ${}^{226}\text{Ra} / {}^{238}\text{U}$ 放射能比である。(2)式の第1項は<sup>238</sup>Uにきさえられた<sup>234</sup>U (supported <sup>234</sup>U)から生長する<sup>230</sup>Th, 第2項は<sup>238</sup>Uに支えられていない<sup>234</sup>U (excess <sup>234</sup>Uまたはdeficient <sup>234</sup>U)から生長する<sup>230</sup>Thの寄与をあらわしている。同様に(3)式のa, bはsupported <sup>234</sup>Uおよびexcess <sup>234</sup>Uから生長する<sup>226</sup>Raの寄与、cおよびdは $t=0$ において試料中に存在していた<sup>230</sup>Th, <sup>226</sup>Raの寄与に対応する。 $r_0=1$ ,  $A=B=0$ の場合すなわち試料には $t=0$ の時放射平衡にあるU同位体だけが存在していたという理想的な場合には(1)~(3)式は第1項しか残らない。便宜上<sup>210</sup>Pbグループを分けて表わしたが数100年以上の古い試料では<sup>210</sup>Pbは<sup>226</sup>Raと放射平衡と考えてよいので<sup>210</sup>Pbグループと<sup>226</sup>Raグループは同一グループとして扱えばよい。

$r_0$ を1.15としA, Bの値を変えて計算した $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ および $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比の時間変化をFig. 1に示す。AおよびBが0でない場合の影響がそれぞれ $\sim 10^5$ 年および $\sim 10^4$ 年の間は無視できないこと、 $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 比と $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比は $10^5$ 年を超えてはじめてほぼ同一となることなどが読みとれる。(3)式を感覚的にわかりやすく示せば測定で得られる $^{226}\text{Ra}$ の全放射能に占

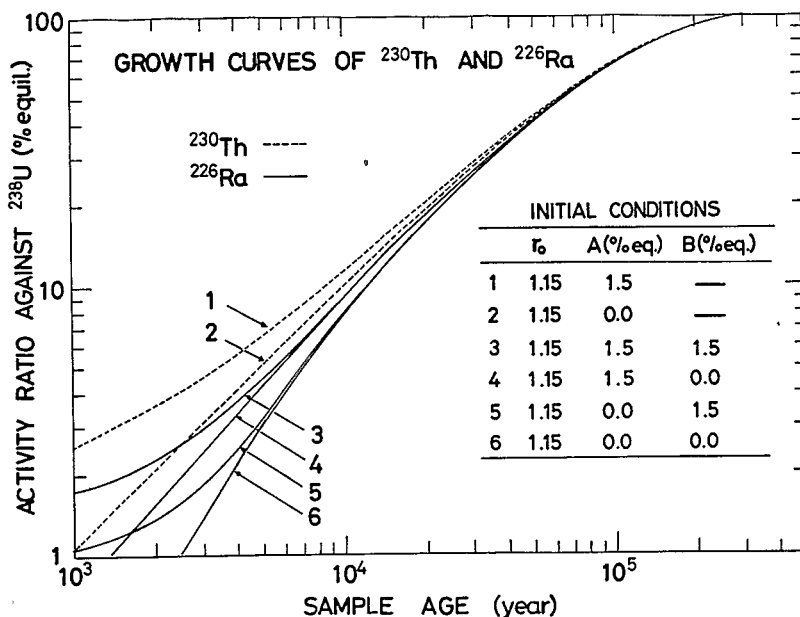


図1 いろいろな $r_0$ , A, B初期値の場合の $^{230}\text{Th}$ と $^{226}\text{Ra}$ の生長曲線

Fig. 1 Growth curves of  $^{230}\text{Th}$  and  $^{226}\text{Ra}$  for various initial values of  $r_0$ , A and B.

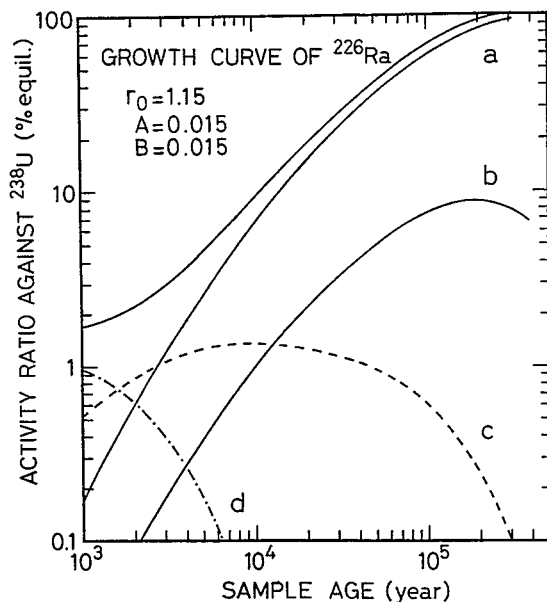


図2  $^{226}\text{Ra}$ の生長曲線と(3)式の(a),(b), (c),(d)各項の寄与

Fig. 2 Growth curves of  $^{226}\text{Ra}$  and the contributions of each terms in Eq.(4).

める(3)式の a, b, c, d の各成分の寄与の時間変化は Fig. 2 のように表わすことができる。

## 5. $\gamma$ 線測定装置

非破壊 $\gamma$ 測定に用いる測定器としては、検出効率の高いGe検出器が望ましい。 $^{214}\text{Pb}$ や $^{214}\text{Bi}$ から放出される $\gamma$ 線は、エネルギーがそれ程低くないので、有効体積の大きい同軸型のGe(Li)検出器または高純度Ge検出器で測定するのが有効である。一方 $^{234}\text{Th}$ と $^{210}\text{Pb}$ からの $\gamma$ 線はエネルギーが低いので通常のGe検出器で測定するよりも、LEPS (Low Energy Photon Spectrometer) と呼ばれる低エネルギー $\gamma$ 線検出器を用いる方が精度よく $^{238}\text{U}$ や $^{210}\text{Pb}$ 含有量を求めることができる。これらの検出器は周辺からの $\gamma$ 線が検出器に入射するのを防ぐため、鉛10cm厚相当あるいは鉄20cm厚相当の遮蔽を施してバックグラウンドを十分下げて使用する。<sup>6)</sup>

検出器からの信号はリニアアンプを通して増巾し1Kないし4Kチャンネルの波高分析器に入力してエネルギースペクトルとり、目的とするピークの計数率から核種濃度を算出する。

筆者らの測定システムのブロックダイアグラムをFig. 3に、また非破壊 $\gamma$ 測定によるU系核種の検出限界(試料50g,  $10^4$ 分測定)の例をTable 2に示す。

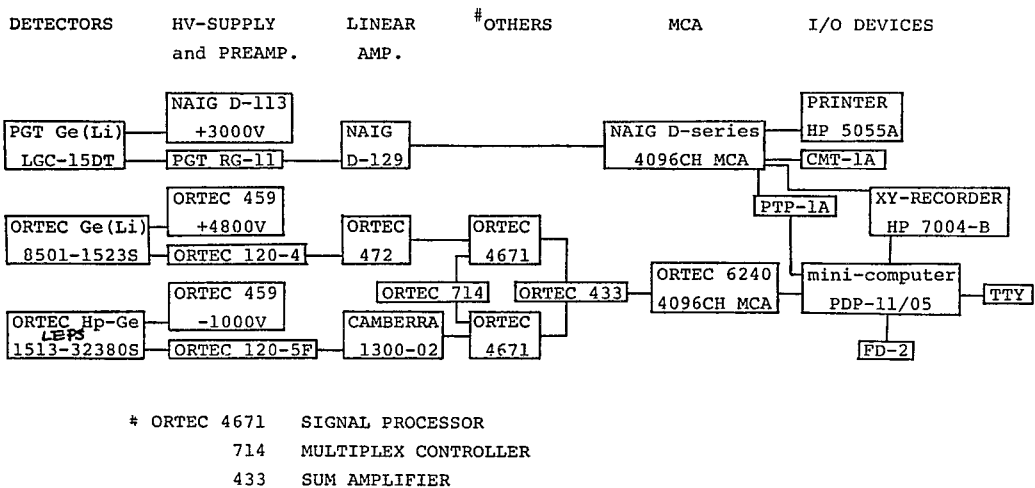


図3  $\gamma$ -スペクトロメトリシステムのブロックダイアグラム

Fig. 3 Block diagram of  $\gamma$ -spectrometry system

表2 非破壊γ-線測定によるU-系列核種の検出限界

Table 2. Detection limit of U-series nuclides by non-destructive  
γ-ray measurement

Nuclide	Energy (keV)	Gamma-ray Abundance (%)	Background (cpm)	Detection Efficiency (%)*	Detection Limit by 10 <sup>4</sup> min meas. (cpm) (dpm/sample) (dpm/g)		
[ Detector : Ge-LEPS 32mmφ x 10mm <sup>t</sup> ]							
Pb-210	46.5	4.05	0.01~0.02	6.3	~ 0.005	~ 2	~ 0.04
Th-234	63.3	3.83	0.02~0.03	7.3	~ 0.01	~ 4	~ 0.08
	93	5.41	0.03~0.04	7.3	~ 0.01	~ 4	~ 0.08
[ Detector : Coaxial type Ge(Li) 50mmφ x 37.5mm <sup>t</sup> , Rel. Eff 15 % ]							
Pb-214	295.2	18.9	0.014	5.6	~ 0.005	~ 0.5	~ 0.01
	351.9	36.3	0.018	4.8	~ 0.005	~ 0.3	~ 0.006
	609.3	42.8	0.017	2.4	~ 0.005	~ 0.5	~ 0.01

\* Counting Source : 50mmφ x 13mm<sup>t</sup>, 50 g

## 6. 測定線源の作成

さきにγ測定はα測定に比べて検出効率が低いと述べた。しかし、Table 2に示したように50gの試料を10<sup>4</sup>分(1週間)γ測定する場合、感度の悪い<sup>234</sup>Thでも0.08 dpm/g (Uに換算して~0.1ppm)までは検出可能である。しかし年代測定を目的とする場合には少なくともこの10倍、1ppm以上のUを含む試料でなければ必要な精度が得られない。

サンゴは約3ppmのUを含むので20g程度の試料があれば年代測定が十分可能である。また化石骨は、一般に数10から数100 ppmのUを含むといわれているが<sup>7)</sup>筆者らの経験では1 ppm以下しかUを含まぬ場合もあるので、測定用線源作成の前に試料中のU含有量の目安を知るため予備測定を行うとよい。測定する線源中に少なくとも数10 μg以上のUを含むだけの試料が年代測定には望ましい。

精度よく測定するため、形が一定で密度の高い測定線源を作る必要がある。そのため前処理として

- (1) 砂粒や土壌その他。夾雑物をピンセット、ブラシなどを用いて取り除いたあと、
- (2) 保存状態の良い大きい試料片を必要量だけとり出し、
- (3) 小さなハンマーで砂粒大まで砕いて、
- (4) メノウ乳鉢で100~200メッシュ程度の粉末とする。

こうしてできた均一な粉末試料のうち一定量(通常~50g)をとり油圧式のプレスで直径5cmの円盤状の線源を作成する。試料の量が10gあるいはそれ以下の場合にはもっと直径の小さい線源の方がγ線を効率よく測定できる。出来た線源の重量を秤り汚染の防止と<sup>222</sup>Rnの損失を防ぐため、

サランラップで包み、さらにポリエチレン袋に封入して保存する。

## 7. $\gamma$ 線 測 定

測定用の線源ができれば次はいよいよ $\gamma$ 線測定段階に入る。 $^{226}\text{Ra}$ は娘核種 $^{214}\text{Pb}$ または $^{214}\text{Bi}$ の $\gamma$ 線により定量するが、 $^{226}\text{Ra}$ と $^{214}\text{Pb}$ の間には半減期3.8日の気体の放射性核種 $^{222}\text{Rn}$ が存在するので試料の粉碎やプレス過程で損失したかも知れない $^{222}\text{Rn}$ と $^{226}\text{Ra}$ 間の放射平衡が保証されるよう1ヶ月程保存した後に測定するのがよい。しかし、これは表向きの言い方であって筆者らの経験やYokoyamaら<sup>43</sup>が述べているようにサンゴの場合は粉碎しても $^{222}\text{Rn}$ の損失はほとんど起らないようである。化石骨の場合も $^{222}\text{Rn}$ の損失をそれ程気にしなくてよいが念のため1週間程度保存した方が安全であろう。一方 $^{234}\text{Th}$  ( $^{238}\text{U}$ )と $^{210}\text{Pb}$ にはこのような心配がないので線源ができれば早速測定をはじめてもよい。

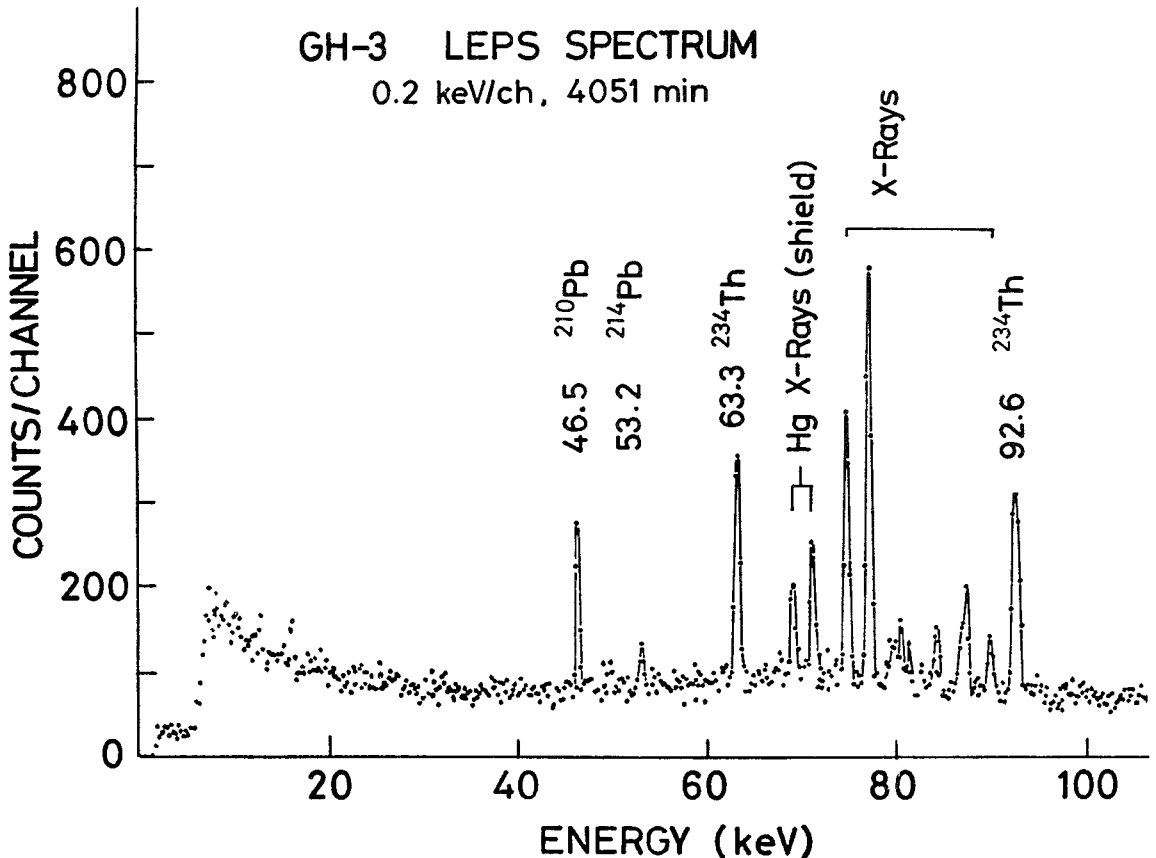


図4 サンゴ試料GH-3のGe-LEPSスペクトル

Fig. 4 Ge-LEPS spectrum of coral sample GH-3



LEPS-測定, Ge-測定ともできるだけ高い検出効率が得られるように, 測定試料を検出器のエンドキャップに密着させて測定する。測定時間は長い程よいが, 10万年程度の年代をもつ50gの化石サンゴの場合, それぞれ2~3日測定すれば  $^{238}\text{U}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  は土5%以内,  $^{226}\text{Ra}$  は土1~2%の計数誤差で定量できる。しかし試料が少量の場合やU含有量が低いか若い場合には1週間程度

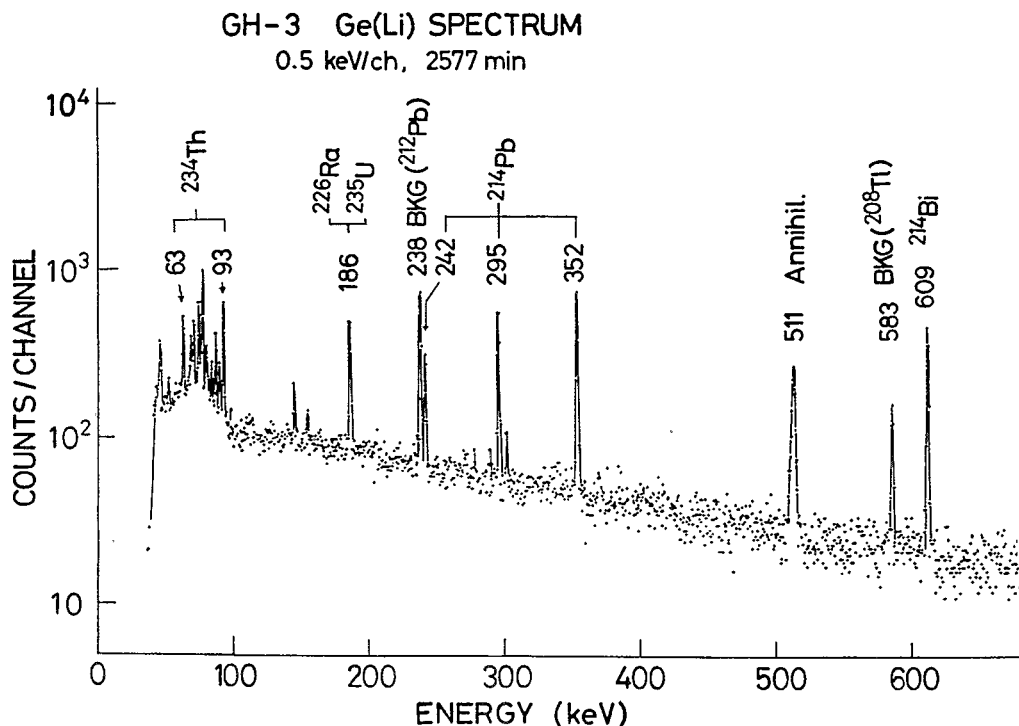


図5 サンゴ試料GH-3のGe(Li) スペクトル

Fig. 5 Ge(Li)-spectrum of coral sample GH-3

測定しても計数の統計誤差を5%以下にすることが難しいことがある。Fig. 4,5に化石サンゴ試料のLEPSおよびGe(Li)スペクトルの例を示した。Fig. 4からわかるようにLEPS測定では, 目的とする $^{234}\text{Th}$ と $^{210}\text{Pb}$ のピークが分解能よく検出されている。70~90 keVにかけての複雑なピークはPbとBiのKX線であり, 検出器の遮蔽に水銀を使ったので水銀の蛍光X線もみられる。LEPSのエネルギー分解能がよいのでこれらは妨害にはならない。一方Ge(Li)検出器で測定した高エネルギー側のスペクトルには $^{214}\text{Pb}$ の242, 295, 352 keV,  $^{214}\text{Bi}$ の609 keV  $\gamma$ 線が顕著なピークとして検出されている。その他U系列では $^{235}\text{U}$ と $^{226}\text{Ra}$ の寄与している186 keV  $\gamma$ 線,

$^{234}\text{Th}$  からの 63,93 keV  $\gamma$ 線も検出されているが、50～100 keV 領域は L E P S スペクトルに比べ非常に複雑で定量には向かないことがわかる。583 keV と 238 keV のピークは Ge(Li) 検出器の構成材に含まれている Th 系列核種のバックグラウンド<sup>8)</sup>である。

## 8. 核種濃度および年代の算出

$\gamma$ 線測定で得られたスペクトルを解析し目的とするピークの計数率を計算しただけでは核種濃度が得られない。試料中の核種濃度を求めるには、ピークの検出効率( $\epsilon$ )をあらかじめ知っておかねばならない。検出効率は検出器と試料の幾何学的な配置(試料の直径と厚さ)に強く依存するが、密度や化学組成の違いによる自己吸収の違いも無視できない。したがって、既知濃度の放射能を含む標準線源を用いて検出効率を求める場合でも大きさや重量ばかりでなく測定する試料に近い化学組成をもつ模擬線源を作成することが必要である。例えばサンゴや貝殻( $\text{CaCO}_3$ )に対しては大理石の粉末、骨に対してはリン酸カルシウムなどと一定量のウランを混合して重さの異なる一連の標準線源を作るのが望ましい。

測定した試料に対応するピーク検出効率の値が得られたら、Table 1 に示した 1 壊変あたりの  $\gamma$ 線放出率(BR:Branching Ratio)を使って試料中の核種濃度 [ $\text{dpm/g}$ ] を次式で求めることができる。

$$[\text{dpm/g}] = [\text{cpm/g}] / (\epsilon \cdot \text{BR}) \quad (4)$$

$$[\text{cpm/g}] : \text{試料 1 g あたりのピーク計数率 (cpm)}.$$

検出効率や  $\gamma$ 線放出率の値を知らなくても U 系列の放射平衡が保証された \* 標準模擬線源が用意できれば、標準線源のピーク計数率と測定試料のピーク計数率の比から核種濃度を容易に求めることができる。この方法ではさらによいことに  $\gamma$ 線放出率の値の不確かさ (Table 1) に起因する誤差を避けることができる。

こうして  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  の濃度を計算し  $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$ ,  $^{210}\text{Pb} / ^{238}\text{U}$  \*\* 比から試料の年代を求めるわけである。これには、前述の計算式をコンピュータに入れて作成した年代の換算表や Fig. 1 のような図を利用すれば簡単である。

ここに 1 つ困った問題がある。それは  $\gamma$ 測定だけでは  $^{234}\text{U}$  量を正確に定量出来ないので  $^{234}\text{U} /$

---

\* このような標準試料としては NBL (New Brunswick Laboratory) が売出している U および Th の標準試料がある。最近では核原料物質としての規制により購入の手続が面倒でありまたかなり高価なので入手しにくくなっている。

\*\*  $^{210}\text{Pb}$  の値は  $^{226}\text{Ra}$  に比べ測定の精度が悪く、 $^{210}\text{Pb} / ^{238}\text{U}$  比から年代を求めると誤差が大きくなるので、実際には  $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$  比のみを使っている。

$^{238}\text{U}$ 比を何らかの方法で推定するか $\alpha$ 測定の助けを借りて求めねばならないことである。幸いなことに海産の貝やサンゴなどに含まれるUは海水中のUを取り込んだものと考えられるので現在の海水の $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$ 比を $r_0$ 値として採用しても差つかえない。 $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$ 比は多くの測定があり、沿岸の海水も含めてほとんどの海水で $1.15 \pm 0.02$ の範囲に大体おさまっている。海水中の $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$ 比が過去数10万年の間に大きく変動したとは考えられないので海産生物の化石の $r_0$ 値としては1.15を採用してよいであろう。

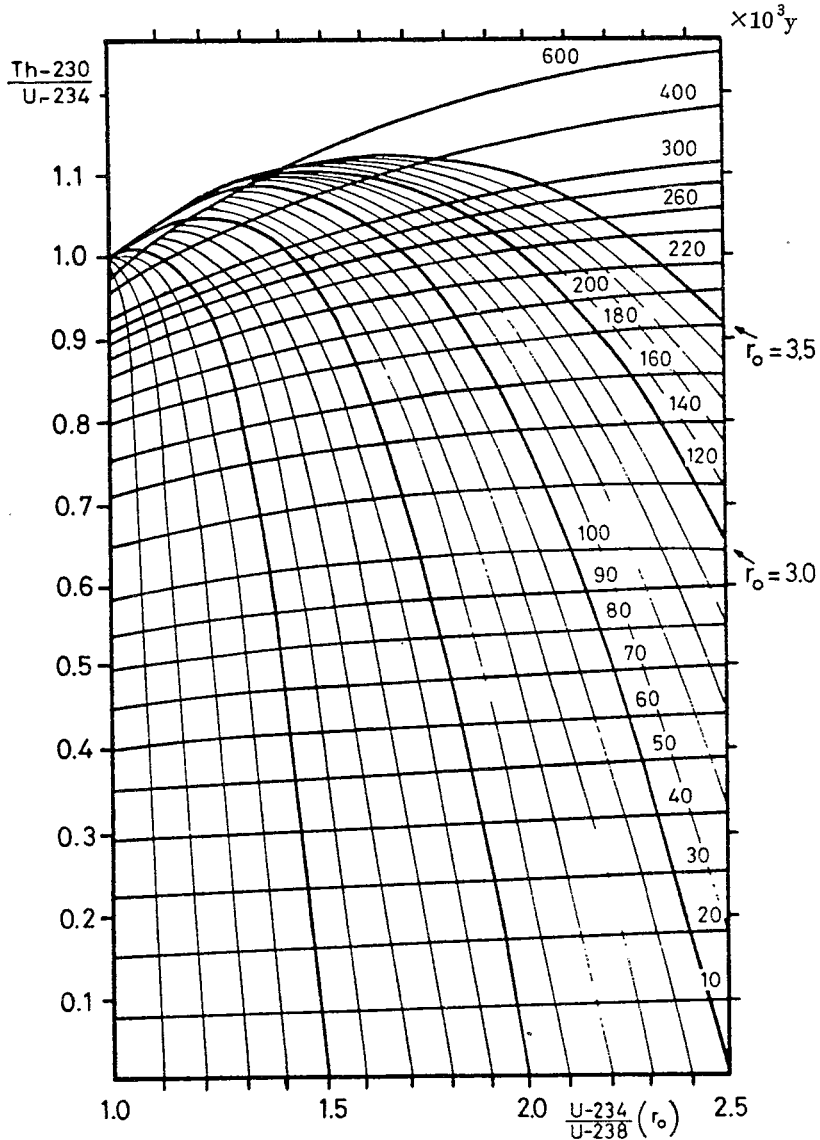


図6 いろいろな $r_0$ 値に対する $^{230}\text{Th} / ^{234}\text{U}$ 比の生長曲線 (Hennig 原図)

Fig. 6 Growth curves of  $^{230}\text{Th} / ^{234}\text{U}$  for various initial values of  $r_0$ .

これに対して化石骨や陸水中で棲息した貝化石などでは、とり込んだUは、その供給源である地下水の $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$ 比を持つと考えるべきであろう。この値は一般に1より大きく高いものでは2以上にもなる。従って $^{230}\text{Th} / ^{238}\text{U}$ 比や $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$ 比の生長曲線もFig. 1とは違ってくる。できれば $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$ 比だけでも $\alpha$ 測定で定量したいところである。Fig. 6 にいろいろな $r_0$ 値について計算した $^{230}\text{Th} / ^{234}\text{U}$ 比の時間変化を示す。<sup>7)</sup>

年代を求めるさいにもう1つ留意しなければならないのは $t=0$ の時に存在した可能性のある $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ の扱いである。これは $\alpha$ 測定による年代測定にも共通していえることなので、後でくわしく述べる。

## 9. 化石サンゴへの適用

### 9.1 非破壊法による化石サンゴの年代

非破壊法によりこれまでに年代測定を行ってきた化石サンゴは約40試料にのぼる。この他 $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$ の初期値Bを求めるため、現世サンゴの年輪の測定や $\alpha$ 法、 $^{14}\text{C}$ 法との比較等も行った。

サンゴ試料は琉球列島を中心に、南西諸島から採取したものである。CK-, YT-, TT-シリーズおよびN 2723は喜界島(28° 20' N, 130° E), GH-シリーズは南大東島(25° 50' N,

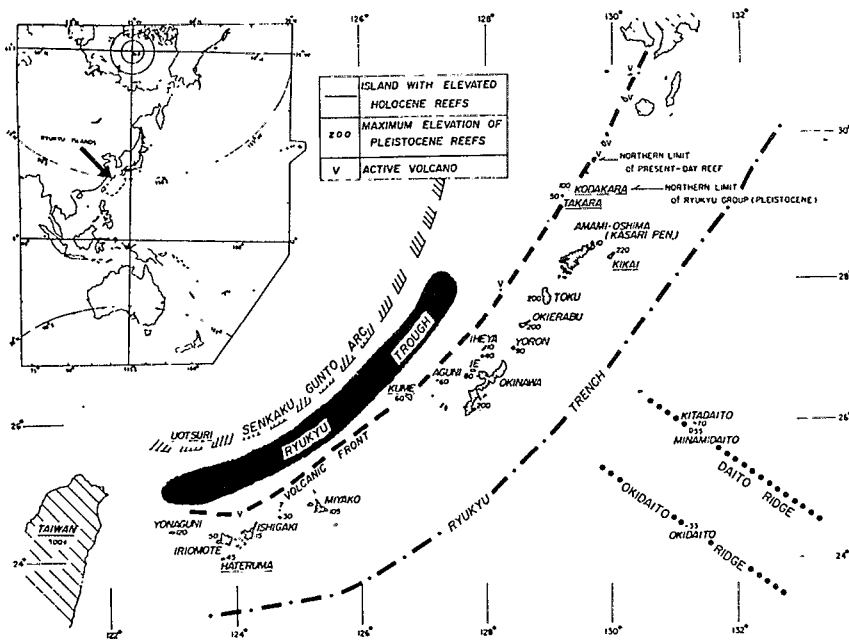


図7 サンゴ試料の採取地点(小西原図)

Fig. 7 Sampling locations of coral samples (by K.Konishi)

131° 15' E), CH-シリーズは波照間島(25° 05' N, 127° 45' E), のさまざまな海拔高度にある石灰岩層から, そして直径1mもある現世サンゴは沖縄島(26° 15' N, 127° 40' E)の

表3 サンゴ試料の非破壊  $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$  年代

Table 3. Non-destructive  $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$  age of Coral samples

Code Name	Suggested Age	Sample Location and Stratigraphic Unit	$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ Age (x 10 <sup>3</sup> y)
CK-M1	Present-day	Kikai, Fore-reef Slope	0
N2723	Late Holocene	" , Raised Coral Reef	4.6+- .9
CK-19	Latest Pleistocene	" , Araki Limestone(L.S.)	53 +- 6
GH-1	Late Pleistocene	Minami-daito, Kaigunbo L.S.	123 + 15/-13
GH-3	"	" "	128 + 24/-19
CH-1	Late Pleistocene	Hateruma, Terrace IV	114 + 16/-13
CH-2	"	" "	125 + 21/-17
CH-2'	"	" "	128 + 19/-14
CH-3	"	" "	109 +-12
YT-1	Late Pleistocene	Kikai, Kamikatetsu L.S.	73 +- 6
YT-2	"	" , Araki L.S.	49 +- 4
YT-3	"	" , Kamikatetsu L.S.	76 +- 6
YT-4	"	" , "	61 +- 5
YT-8	"	" , "	76 +- 9
YT-9	"	" , "	63 +- 6
YT-11	"	" , Araki L.S.	46 +- 3
YT-13	"	" , Unnamed Basement	> 300
YT-14	"	" , Kamikatetsu L.S.	80 +- 6
YT-16	"	" , "	63 +- 6
TT-6A	Early Holocene	Kikai, Coral Reef, Borehole#6	6.3+- .7
TT-8A	"	" , " , Borehole#8	8.0+- .7
TT-9A	"	" , " , Borehole#9	9.8+- .7
TT-10A	"	" , " , Borehole#10	9.3+-1.0
TT-10B	"	" , " , "	13.8+-1.0
CH-4	Late Pleistocene	Hateruma, Terrace	140 + 28/-23
CH-5	Middle Pleistocene	" , Terrace I	> 270
CH-6	"	" , "	209 + 80/-44
CH-7	Late Holocene	" , Sand Dune	< 2.1
CH-8	Middle Pleistocene	" , Terrace II	> 205
CH-9	"	" , "	> 207
CH-10	"	" , "	220 + 50/-30
CH-11	Late Pleistocene	" , Terrace IV	146 + 24/-20
CH-12	"	" , "	133 + 16/-14
CH-13	"	" , "	114 + 12/-11
CH-14	"	" , "	128 + 15/-12
CH-15	Middle Pleistocene	" , Terrace II ?	160 + 20/-17
CH-16	Late Holocene	" , Sand Dune	1.7+- .8

沿海よりそれぞれ採取した。Fig. 7 にサンゴ試料の採取地点を示す。

Table 3 に各試料の採集地点とその地質年代および非破壊 $\gamma$ 法による年代をまとめた。これからわかるように、南西諸島で得られた化石サンゴの年代は 5 千～1 万年, 5～8 万年, 11～14 万年, 20 万年あるいはそれ以上の 4 つのグループに分けられる。サンゴは温暖な気候で生育する生物であり化石サンゴの年代は、かつての氷河期の間氷期の時期を知る時計として極めて重要である。また、サンゴはそれぞれの生育条件に適した水深(～10 m 以内)で生息するので、陸上で採取される化石サンゴの年代からその地域の過去の海水準あるいはその裏返しとして隆起の平均速度を求めることができる。

Table 3 に示した試料には、非破壊法を適用する以前に $^{14}\text{C}$ 法で年代が測定されたものもある。GH-1 と GH-3 は $^{14}\text{C}$ 法では 27,500 年および 33,100 年の値が得られ、地質学的には若すぎるとして問題にされていたものである。非破壊 $\gamma$ 測定による年代は 12.3 万年, および 12.8 万年で非破壊法の値の方が化石サンゴを含む地層について予想される地質年代とよく合っている。測定した化石サンゴは続成変質作用を受けていないアラレ石(Aragonite)の結晶構造\*をもった部分である。非破壊 $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$ 法の立場からすれば $^{14}\text{C}$ 法で 3 万年より古い値が出た場合は、その値に対しては十分吟味が必要であることを示しているものといいたいところである。

## 9.2 非破壊 $\gamma$ 法と $\alpha$ 法の比較

新しく開発された非破壊 $\gamma$ 測定による化石試料の年代の妥当性を調べるため、通常の $\alpha$ 法による年代測定も行っている。非破壊測定を終えた試料の中からいくつかを任意に選び半分(～20 g)を化学分離し $\alpha$ スペクトロメトリーにより $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$ ,  $^{230}\text{Th} / ^{234}\text{U}$ 比を求め年代を算出した。

U および Th のトレーサーには $^{228}\text{Th} / ^{232}\text{U}$ 比が正確に知られている $^{232}\text{U}$ を用いた。化学分離は塩酸による試料の溶解、水酸化鉄による共沈捕集、陰イオン交換による分離、酢酸エチル抽出または陽イオン交換による精製を基本とするFig. 8 に示すスキームに従って行った。

2 つの方法で得られた測定結果をTable 4 に示す。核種濃度(ppm または dpm / g)についてみると、 $\gamma$ 線の放出率が低く、 $\gamma$ 線測定による検出感度があまり高くない $^{238}\text{U}$ は $\alpha$ 測定に比べ精度が低いけれども誤差の範囲ではほぼ一致している。一方、 $\gamma$ 測定で比較的感度よく定量が可能な $^{226}\text{Ra}$ は、 $\alpha$ 法による $^{230}\text{Th}$ と同等の精度で測定され、しかも非常によい一致が得られている。 $\gamma$ 測定による年代測定の誤差は主として $^{238}\text{U}$ 濃度の定量精度に支配されているが、これらの値を用いて得ら

---

\* サンゴはもともとアラレ石構造の炭酸カルシウムを分泌しその骨格を形成するが、変質を受けると結晶構造がより安定な方解石(Calcite)構造に変化する。試料の保存性をチェックするためあらかじめ粉末試料のX線回折を行い Calcite の存否のチェックが行われる。

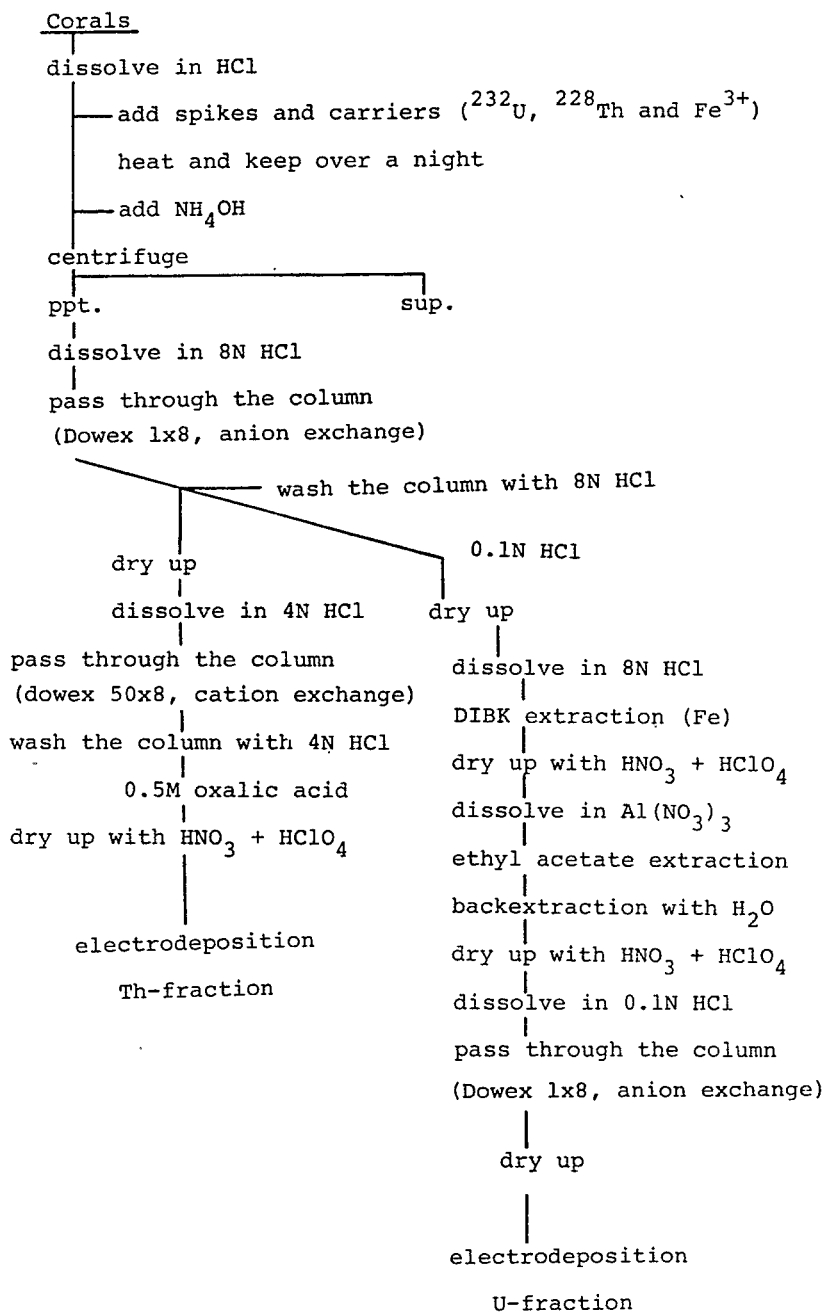


図8 サンゴ試料の化学分離スキーム

Fig. 8 Chemical separation scheme for coral sample

表4 非破壊 $\gamma$ 法と $\alpha$ 法の比較

Table 4. Comparison of non-destructive  $\gamma$ -ray method and  $\alpha$ -ray method

Code Name	Non-destructive $\gamma$ -ray Measurement			$\alpha$ -ray Measurement		
	$^{238}\text{U}$ (ppm)	$^{226}\text{Ra}$ (dpm/g)	Estimated Age ( $\times 10^3\text{y}$ )	$^{238}\text{U}$ (ppm)	$^{230}\text{Th}$ (dpm/g)	Estimated Age ( $\times 10^3\text{y}$ )
CH-1	2.95 $\pm$ .19	1.61 $\pm$ .02	114 + 16/-13	2.61 $\pm$ .12	1.62 $\pm$ .08	150 + 26/-22
CH-3	2.61 $\pm$ .19	1.59 $\pm$ .01	143 + 26/-20	2.45 $\pm$ .14	1.59 $\pm$ .05	167 + 33/-24
GH-1	2.84 $\pm$ .15	1.61 $\pm$ .04	123 + 15/-13	2.75 $\pm$ .11	1.53 $\pm$ .06	119 + 14/-12
GH-3	2.45 $\pm$ .20	1.42 $\pm$ .02	128 + 24/-19	2.63 $\pm$ .07	1.46 $\pm$ .03	116 + 7/-6
YT-9	3.47 $\pm$ .21	1.28 $\pm$ .03	63.0+6.0/-5.5	3.49 $\pm$ .16	1.28 $\pm$ .03	60.5+-4.5
YT-16	2.70 $\pm$ .20	1.03 $\pm$ .03	65.0+7.5/-6.0	2.97 $\pm$ .14	0.95 $\pm$ .04	50.0+-4.0
CH-7	3.39 $\pm$ .19	.046 $\pm$ .010	< 2.1	3.60 $\pm$ .15	.054 $\pm$ .006	0.5+- .3

れた化石サンゴの年代はCH-1, YT-16で一致が悪いものの、全般的に誤差の範囲内でよく合っているとみなすことができよう。

問題とされる $^{238}\text{U}$ の定量の精度は結晶の直径が大きいGe-LEPS\*を用いて効率よく測定すればずっと改善できるので、非破壊 $\gamma$ 法による年代測定は $\alpha$ 法と同程度の精度を得ることもそれ程困難ではない。

### 9.3 現世サンゴの $^{230}\text{Th} / ^{238}\text{U}$ および $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$ 比

測定された $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$ 比から年代を算出するには $t = 0$ の時すでに存在していたかもしれない $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ の寄与を見積って補正する必要がある。この寄与は一般に少いと考えられるので10万年以上の試料では事実上無視して差しつかえないが1万年程度までの試料では、若ければ若い程これらの寄与が相対的に大きいので重要である。

これを見積るには現世サンゴを測定するのが最も確実であろう。 $^{230}\text{Th} / ^{234}\text{U}$ (または $^{230}\text{Th} / ^{238}\text{U}$ )の初期値(A)については $\gamma$ 測定によらねばならないが、筆者ら<sup>9)</sup>は0.014 $\pm$ 0.002の値を、また各地で採取した数10の現世サンゴを測定した大村<sup>10)</sup>は平均値として0.015(0.0026から0.056まで分布)を得ており放射平衡の1.5%程度が妥当な値と考えられる。しかし、この値が試料によって1桁以上違う場合もありうるので、注意が必要である。おそらくサンゴの生育環境の違いを反映しているものであろう。

一方 $^{226}\text{Ra}$ の初期濃度に関しては0.05 dpm/gの値<sup>1)</sup>や筆者らの0.037 dpm/gの測定値<sup>3)</sup>

\*筆者らのGe-LEPSは直径32 mm(8 cm<sup>2</sup>)のものであるが、現在は直径49.5 mm(20 cm<sup>2</sup>)のもので市販されている。



が報告されている。この値は海水中の  $^{226}\text{Ra}$  と  $\text{Ca}$  比をそのままサンゴが取り込み Aragonite 骨格を分泌する場合に期待される値にほぼ近い\*。サンゴの  $\text{U}$  含有量を 3 ppm とすれば  $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$  比は約 0.03 となる。

$^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$  の初期値(B)をさらに検討するため、沖縄那覇港外産の直径約 1 m のハマサンゴ(水深 6 m で採取)の生長年輪に沿って過去約 20 年にまでさかのぼって  $^{226}\text{Ra}$  および  $^{238}\text{U}$  の非破壊測定を行った。Fig. 9 に測定結果を示す。 $^{226}\text{Ra}$  は最外殻(生存)部が 1.5 dpm/g と高かったが、1 年以上経た骨格部ではずっと低く、多少のばらつきがあるものの平均 0.047 dpm/g であった。Fig. 9 からわかるように  $^{238}\text{U}$  濃度は  $^{226}\text{Ra}$  濃度とよい相関があり、 $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$  比は  $0.027 \pm 0.003$

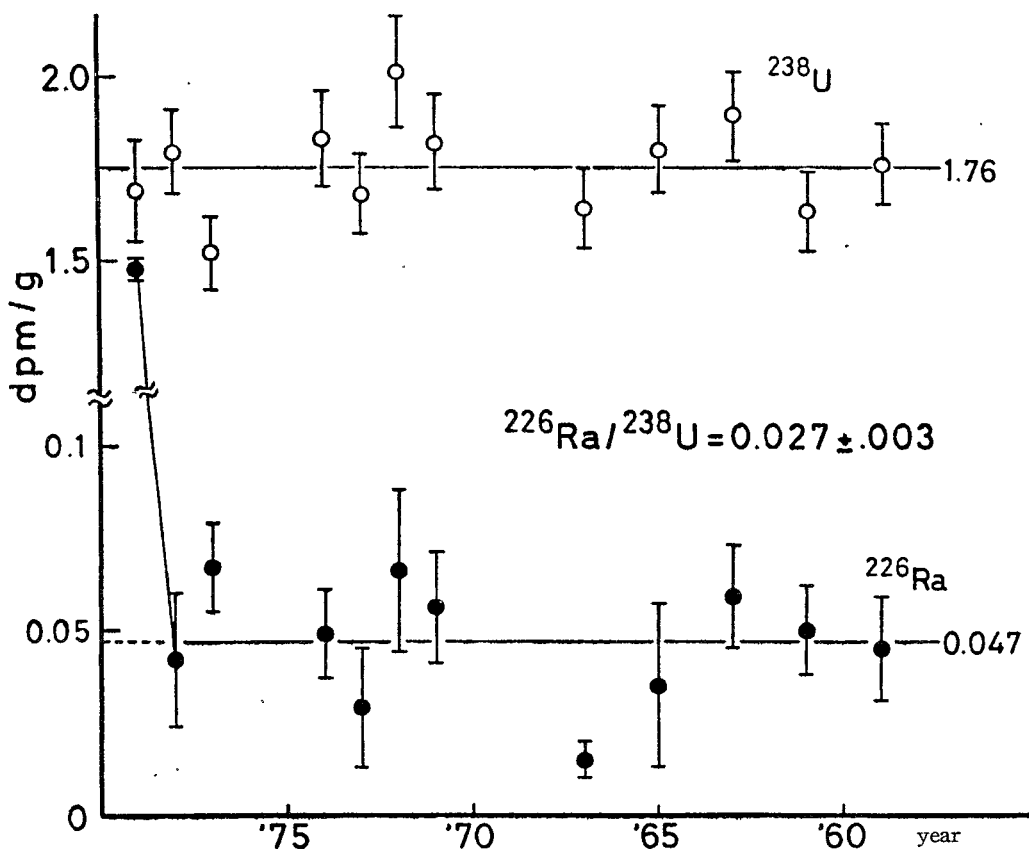


図9 現世サンゴの生長年輪に沿って分析した  $^{226}\text{Ra}$  と  $^{238}\text{U}$  濃度  
Fig. 9  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{238}\text{U}$  concentrations in present-day coral

\*標準海水の  $\text{Ca}$ ,  $\text{Ra}$  濃度は  $\text{Ca} = 0.4 \text{ g/kg}$ ,  $\text{Ra} = 3.0 \times 10^{-11} \text{ mg/l}$  であるから  $\text{Ra}/\text{Ca}$  比は  $7.5 \times 10^{-14}$  となる。したがって 100 g の  $\text{CaCO}_3$  中の  $\text{Ra}$  量は  $7.5 \times 10^{-14} \times \frac{40}{100} = 3 \times 10^{-14} \text{ g}$   $^{226}\text{Ra}$  1 g は  $2.22 \times 10^{12} \text{ dpm}$  に相当するので  $3 \times 10^{-14} \times 2.22 \times 10^{12} \div 100 = 0.07 \text{ dpm/100 g}$  となる。

であった。この値は、予測した 0.03 と一致するが、サンゴの生育環境により多小変動があると考えた方が妥当であろう。

なお、Table 3 および 4 の非破壊法による年代は A および B をそれぞれ 0.015, 0.015 として求めたものである。

#### 9.4 若い試料に対する非破壊法と $^{14}\text{C}$ 法の比較

$^{14}\text{C}$  法で 3 万年より古い値が出た場合は、注意が必要であるとききに述べたが、1 万年程度の若い試料に対しては  $^{14}\text{C}$  法の優位は動かない。そこで喜界島のサンゴ礁をボーリングして採取した化石サンゴ (TT-シリーズ) を試料として非破壊法および  $^{14}\text{C}$  法で年代を求めて<sup>12)</sup> 比較を行った。この測定は前節で述べた  $t = 0$  における初生  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  の寄与を見積るさいにも有効である。Table 5 に測定結果を示す。表中 a 列の値は、さきにのべた A, B をともに 0.015 として求めたも

表 5 非破壊  $\gamma$  法と  $^{14}\text{C}$  法の比較

Table 5. Comparison of non-destructive  $\gamma$ -ray method and  $^{14}\text{C}$  method

Code Name	Weight (g)	$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ Method		$^{14}\text{C}$ Method* (x 10 <sup>3</sup> y)
		(a) (x 10 <sup>3</sup> y)	(b)	
TT-6A	50.73	6.25 <sup>+0.70</sup> <sub>-0.65</sub>	5.20 <sub>-0.80</sub>	3.57 <sup>+0.10</sup> <sub>-0.09</sub>
TT-8A	48.02	7.95 <sub>-0.65</sub>	7.10 <sub>-0.65</sub>	6.88 <sub>-0.11</sub>
TT-9A	50.53	9.80 <sub>-0.65</sub>	8.90 <sub>-0.60</sub>	8.73 <sub>-0.11</sub>
TT-10A	44.93	9.25 <sub>-0.95</sub>	8.40 <sub>-0.85</sub>	8.35 <sub>-0.11</sub>
TT-10B	50.65	13.8 <sub>-1.0</sub>	12.7 <sub>-1.0</sub>	7.62 <sub>-0.11</sub>

\* Calculated with the half-life of 5730 y (by T. Tanaka)  
 (a)  $r_0 = 1.15$ ,  $A = 0.015$ ,  $B = 0.015$  A: initial  $\text{Io}/\text{U}$  ratio  
 (b)  $r_0 = 1.15$ ,  $A = 0.025$ ,  $B = 0.027$  B: initial  $\text{Ra}/\text{U}$  ratio

のであるが、 $^{14}\text{C}$  法に比べ系統的に  $10^3$  年程度高目の値を与えていることがわかる。

この相違は、次のように A, B 値を大きくとれば改善される。 $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$  比として現世サンゴでの測定値 0.027 を採用し、 $^{230}\text{Th} / ^{238}\text{U}$  比を 0.025 とした時の年代 (b 列) は  $^{14}\text{C}$  法にかなり近くなる。

以上のことより、非破壊  $\gamma$  法は、 $^{14}\text{C}$  法に比べれば精度の点では劣っているが、1 万年より若い

試料に対しても適用できるものといえよう。

### 9.5 $^{210}\text{Pb} / ^{238}\text{U}$ 法による年代測定の可能性

$^{210}\text{Pb}$ は $\gamma$ 線の放出率が低いため、 $\gamma$ 線測定による定量の精度は $^{226}\text{Ra}$ に比較してずっと劣っている。しかしLEPS測定だけで $^{210}\text{Pb}$ と $^{238}\text{U}$ が同時に定量できる利点があり、検出器の性能向上によって $^{210}\text{Pb} / ^{238}\text{U}$ 比から直接年代を求めることも今後可能になろう。Fig. 10は化石サンゴの測定で得られた $^{210}\text{Pb} / ^{234}\text{Th}$ 比と $^{214}\text{Bi} / ^{234}\text{Th}$ 比の相関を示すもので、 $^{210}\text{Pb} / ^{234}\text{Th}$ 比は試料の新旧に関して定性的な判定には十分使えそうである。

#### Counting Rate Ratio

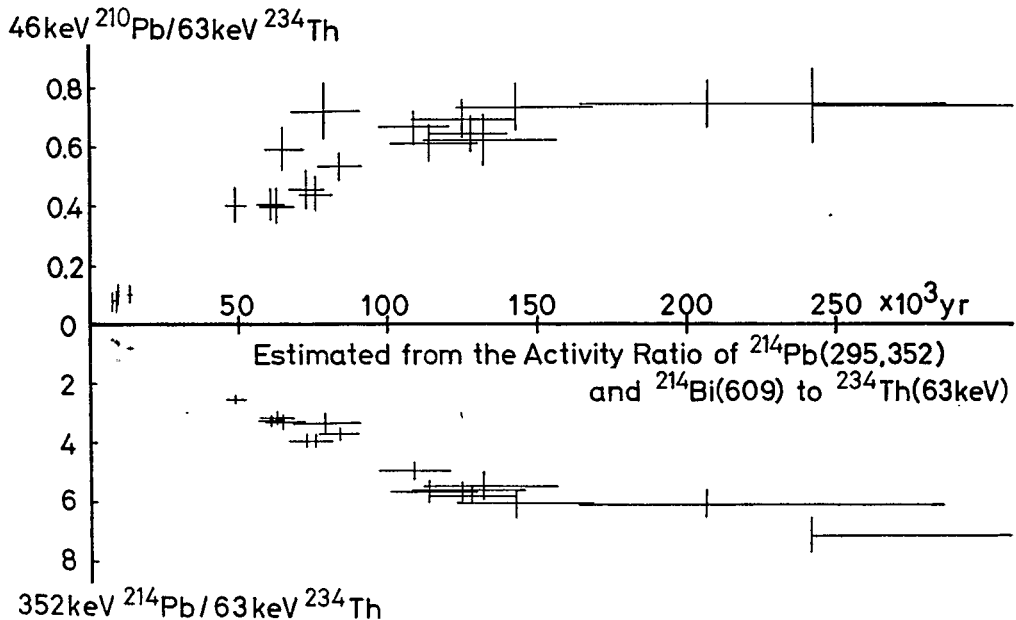


図10  $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$ 比と  $^{210}\text{Pb} / ^{238}\text{U}$ 比の相関

Fig. 10 Correlation of  $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$  and  $^{210}\text{Pb} / ^{238}\text{U}$  ratio

## 10. 化石骨への適用

### 10.1 化石骨の放射能

非破壊 $\gamma$ 法が化石骨の年代測定に利用できれば考古学や人類学に大きく貢献しうることはいうまでもない。化石サンゴに対し有効に適用できた非破壊年代測定法を化石骨にも適用しうかどうかを、すでに $\alpha$ 法で年代測定が試みられているイスラエルAmud 洞窟産の化石骨およびUNESCOから依頼のあったウルグアイ Salto Grande 産の化石骨試料により検討した経験を紹介する。

人骨や獣骨あるいは歯などでは、もともとUの含有量はあまり多くないが、リン酸カルシウムを主成分としているため死後石灰化をとまなう化石化の過程で埋没環境の地下水からUをとり込みウランが富化するものといわれている。Uのとり込みが生物の死後、比較的早い時期に短時間で起り、それ以後、閉鎖系を保ったものとすれば、Uから生長する $^{230}\text{Th}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ の蓄積量は骨試料の化石化した年代(最小年代)を与えることになる。また化石化が長期にわたって連続的に起る場合、あるいはある程度開放系を考慮しなければならない場合でも、モデル設定やデータの解析法次第でU系列核種それぞれの半減期を放射能比から化石化の平均年代その他さまざまな情報を与えてくれる。 $\text{Ku}^{7)}$ によれば化石骨中のU濃度は一般に20~400 ppmと高く、 $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$ 比も1.1~1.5程度であるという。これに対しThの濃度は通常0.0 n ppmと低いので化石骨はU系列核種の非平衡の測定に適した試料といえる。したがってTh系列核種を0.5 ppm以上も含むような試料は土壌その他の汚染があるものとみなさねばならない。

## 10.2 化石骨試料

非破壊法による年代測定を試みたのは次の試料である。

- i) 東大・西アジア調査団により、イスラエルAmud洞窟で採取された獣骨試料[B2-middle up]
- ii) 水力発電所建設で水没することになったためUNESCO、フランスその他の国際共同研究で発掘調査された南米ウルグワイSalto Grande出土の4種の化石骨。

前者はすでに $\alpha$ 測定法により年代測定が試みられたもの<sup>13)</sup>で比較的保存状態の良いものであるが、後者は小さな骨片が多く土壌の混入がかなりみられ黄褐色を呈しているものである。いずれも粉砕処理を行う前にピンセットやスパチュラまたは歯ブラシなどで付着していた土壌を出来るだけとり除き、超音波洗浄も試みた。(超音波洗浄は骨片が破損され泥状になるものもあり適当ではない)こうして得た骨片を乳鉢で粉砕し、5 cmφの円盤状に固めて測定線源としGe(Li)およびLEPS測定を行った。

## 10.3 測定結果

Amud産の化石骨のLEPSおよびGe(Li)スペクトルをFig. 11に示す。非破壊法で測定した5つの試料の結果はTable 6にまとめられている。U含有量はAmud化石骨が7.8 ppmと比較的高かったがSalt Grande試料は最も高いもので1.4 ppm、他は1 ppm以下で、中でも#3は定量限界ぎりぎりの0.1 ppmしかなかった。これらの値はKuらのいう20~400 ppmという一般の化石骨に含まれるU量よりはるかに低いが、おそらく、両試料とも地下水によるUの供給が少ない乾燥した地点に埋没していたためであろう。

Amud化石骨については $^{226}\text{Ra} / ^{238}\text{U}$ 比から年代の推定が可能であったが、この場合でもU含

Fossil Bone  
Amud Cave B-2 Middle-Up  
( 50mm $\phi$  Disk 7.688 g )

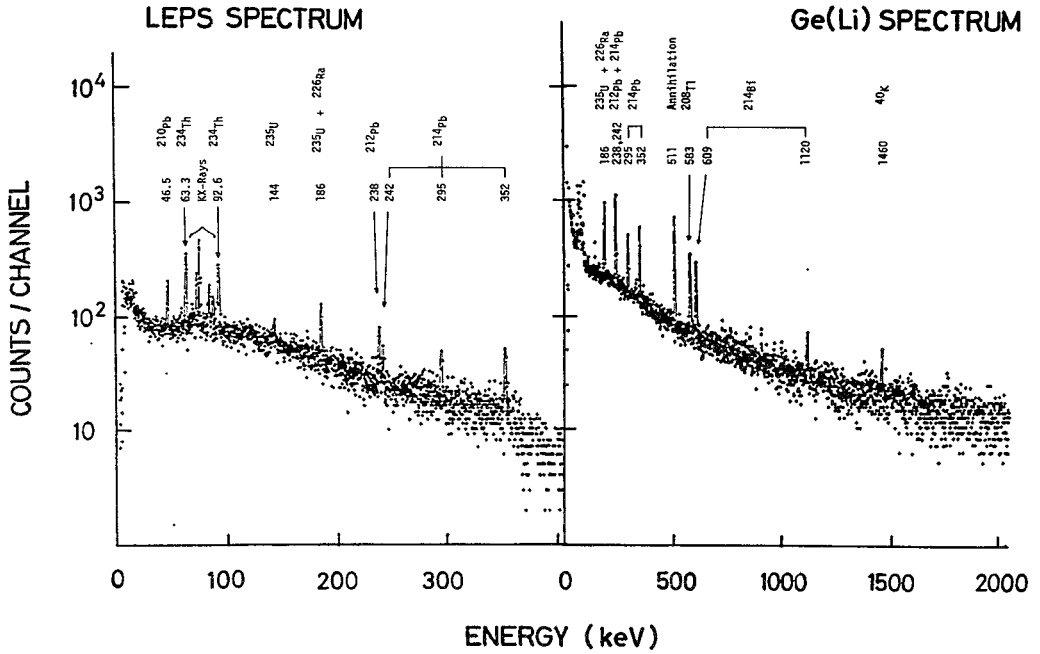


図 11 Amud 産化石骨 ( Amud-B2 Middle up ) の LEPS および Ge (Li) スペクトル

Fig. 11 LEPS and Ge (Li) spectra of fossil bone sample Amud B-2

表 6 化石骨の非破壊 $\gamma$ 測定の結果

Table 6 Results of non-destructive  $\gamma$ -ray measurement of fossil bones

Results of fossil-bone dating							
	$^{238}\text{U}$	$^{226}\text{Ra}$	$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$	Age	$^{210}\text{Pb}$	$^{228}\text{Ra}$	
	ppm	dpm/g	dpm/g	% equil.	$10^4$ y	dpm/g	dpm/g
Amud#1	7.80 $\pm$ .77	5.82 $\pm$ .58	0.95 $\pm$ .07	16.3 $\pm$ 2.0	1.8 $\pm$ .3	—	—
Salto Grande							
#1	0.94 $\pm$ .17	0.70 $\pm$ .13	0.87 $\pm$ .04	124 $\pm$ 24	—	1.08 $\pm$ .13	0.51 $\pm$ .05
#2	0.77 $\pm$ .15	0.57 $\pm$ .12	1.07 $\pm$ .04	188 $\pm$ 41	—	0.75 $\pm$ .11	0.53 $\pm$ .06
#3	$\sim$ 0.1	$\sim$ 0.08	1.07 $\pm$ .04		—	0.47 $\pm$ .13	0.38 $\pm$ .06
#4	1.40 $\pm$ .19	1.04 $\pm$ .14	1.97 $\pm$ .05	189 $\pm$ 26	—	1.36 $\pm$ .20	1.08 $\pm$ .07

有量は $\alpha$ 測定による値とよく一致したにもかかわらず  $^{226}\text{Ra}$ 量は $^{230}\text{Th}$ ( $\alpha$ 法で $1.47 \pm 0.07\text{dpm/g}$ )に比べて少く、 $\alpha$ 法より若い見掛けの年代( $1.8 \times 10^4$ 年)となった。これは $^{226}\text{Ra}$ の逸失の可能性を示唆している。一方 Salto Grande 産化石骨は、 $^{226}\text{Ra}$ が放射平衡以上に存在するうえ土壌の混入を示す Th 系列の $^{228}\text{Ra}$ が相当量存在するので年代の推定はできなかった。半減期の短い $^{210}\text{Pb}$ と親核種の $^{226}\text{Ra}$ の間も放射平衡から著しくずれていること、フィッシュントラック法で測定したUの分布が Fig. 12 に示すように骨の表面付近に偏っていることなどから、この試料がかなり風化や汚染を受けていて、年代測定には不適当な試料であると結論される。

### Distribution pattern of uranium Salto Grande No.1

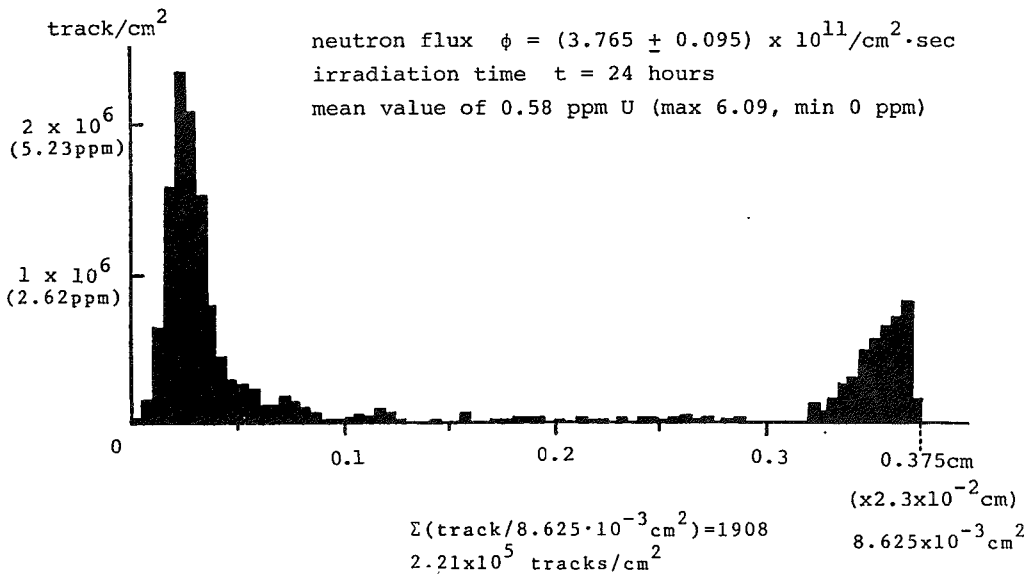


図 12 Salto Grande 産化石骨中のUの分布状況

Fig. 12 Distribution pattern of uranium in fossil bone from Salto Grande

$\alpha$ 測定による  $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$ 比はAmud 試料が $1.05 \pm 0.02$ , Salto Grande #1試料が $1.10 \pm 0.03$ とそれ程高くなく、これらの化石骨中のU含有量が低いことと合わせ、地下水によるU ( $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$ 比は1よりかなり高いものが多い)の供給の少ない埋没環境であったことがうかがわれる。

たまたま測定した化石骨試料は年代測定用の試料としては適当でなかったが、試料中の核種濃度の値は、放射線による照射線量の評価を要するTLDあるいはESR年代測定には有意義な情報を提供するので、非破壊 $\gamma$ 測定はどの試料の場合でも行っておく必要がある。なおこのさいには化石試料ばかりでなく付着した土壌の測定も出来ればしておきたいものである。

これら試料の他周口店で発掘された化石骨髄, Arago の石灰岩等の試料 ( 山口大・池谷元司教授より提供 ) の予備測定を最近開始したが, これらに含まれるU系列核種の濃度はいずれもかなり高く, 年代測定試料として適している様なので期待している。

## 11. おわりに

非破壊 $\gamma$ 測定による年代測定はU系列核種の放射非平衡を利用するという点では従来 $\alpha$ 測定で行われていた方法と全く同じ原理にもとづいている。 $\alpha$ 法に比べ線源の作成はずっと容易で, 習熟の必要がないことや測定した試料をそのまま他の研究に用いることができるなどの利点がある。しかし非破壊 $\gamma$ 測定は $\alpha$ 法に比べ検出効率が悪いいため $\alpha$ 法の数倍の試料を要するうえ,  $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$ 比に関する情報が得られないという欠点もあるが放射線検出器の進歩は著しいので $\alpha$ 法に十分匹敵する感度と精度で年代測定ができる日もそれほど遠い将来ではないかもしれない。

本研究で測定したサンゴ試料は理学部地学教室小西健二教授より共同研究の試料として提供されたものである。本稿を書くに当って桜井次郎氏 ( 現・日本原子力事業 ) の修士論文<sup>14)</sup>より多くの引用を行った。また  $^{14}\text{C}$ 法による年代測定は田中武夫氏 ( 現東大海洋研D.C ) が行ったものであり, フォッショントラック法による理学部放射化学中西孝講師の協力によるものである。これらの方々に深くお礼を申し上げる。

## 参 考 文 献

1. 阪上正信「考古学と自然科学」1 : 32 ( 1968 )
2. 阪上正信「考古学と自然科学」5 : 35 ( 1972 )
3. K.Komura, M. Sakanoue and K.Konishi, Proc. Japan Acad. 54B ( 9 ) : 505 ( 1978 )
4. Y.Yokoyama and H.V.Nguyen, "Isotopic Marine Chemistry". Uchida Rokakuho, 259 ( 1980 )
5. G.J.Hennig, Dr. Thesis, Univ. of Köln ( 1979 )
6. 金沢大理. 低レベル放射能実験施設「年次報告・研究概要」LLRL-AR-3 ( 1979 )
7. T.L.Ku, Ann. Rep. Earth. Planet. Sci, 4 : 347 ( 1976 )
8. 桜井次郎, 小村和久, Radioisotopes 8 : 49 ( 1981 )
9. K.Komura and M.Sakanoue, Sci. Rep-Kanazawa Univ. 12 : 21 ( 1967 )
10. A.Omura, Trans. Proc. Palaeont. Soc. Japan, N.S., 101 : 271 ( 1976 )
11. W.Moor and S.Krishnaswami, Earth Planet. Sci. Lett., 15 : 187 ( 1972 )
12. T.Tanaka, M.S.thesis, Kanazawa Univ. ( 1981 )

13. M.Sakanoue and M.Yoshioka, Quaternary Res., 13 (4) : 220 (1974)
14. J.Sakurai, M.S. thesis, Kanazawa Univ. (1981)

## Radioactive Dating by Non-Destructive $\gamma$ -ray Measurement.

Kazuhisa KOMURA

Low Level Radioactivity Laboratory, Faculty of Science, Kanazawa University

A simple  $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$  method based on non-destructive  $\gamma$ -spectrometry is discussed for the dating of fossil corals and fossil bone samples. The  $^{238}\text{U}$  and  $^{226}\text{Ra}$  contents are indirectly determined by their daughter nuclides  $^{234}\text{Th}$  and  $^{214}\text{Pb}$ , respectively, the content of which can be effectively measured by low background  $\gamma$ -spectrometry using a planar type Ge-LEPS and/or a coaxial type Ge (Li) detector. This method has been successfully applied for Quaternary corals collected from Ryukyu Islands. The reliability of non-destructive method was ascertained by comparing with  $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$  method and also with  $^{14}\text{C}$  method. The non-destructive method was also applied for the fossil bone samples collected from Amud Cave (Israel) and Salto Grande (Urguay), however, reliable age could not be obtained mainly due to the contamination by soil components. The experimental techniques and method of age calculation are also discussed in detail.