

極微量放射能測定と放射年代測定への応用

金沢大学・環日本海域環境研究センター・

低レベル放射能実験施設

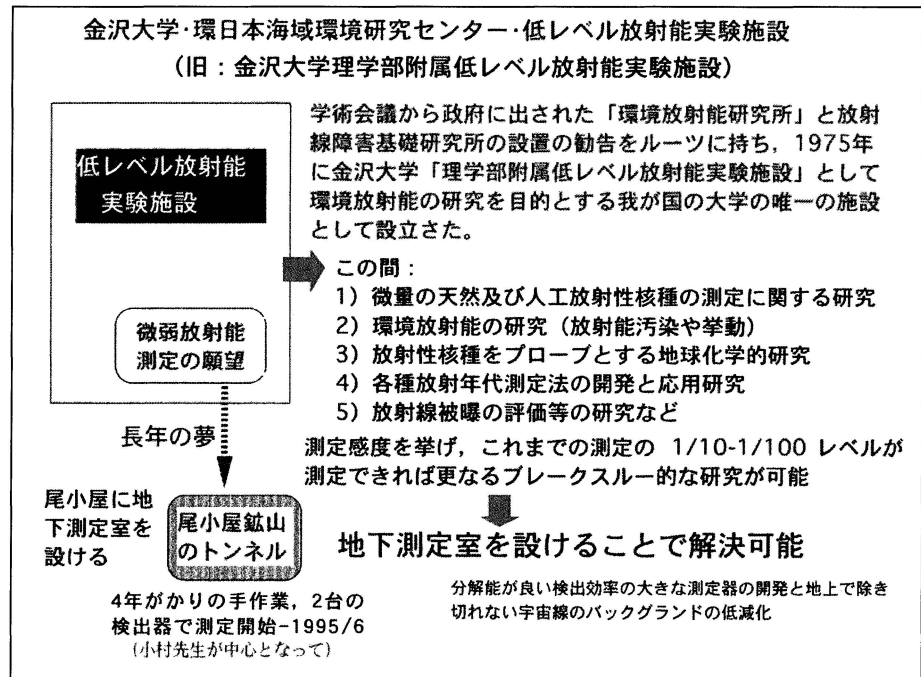
山本 政儀, 美濃 健太

1. はじめに

人間と取り巻く生活環境, すなわち地殻の表層, 水圏, その上の大気圏には, 約 46 億年前に地球が創成されたときから ^{40}K , ^{232}Th , あるいは ^{238}U (天然放射性核種) など, さらに宇宙線により絶えず生成されている放射性核種 (宇宙線生成放射性核種) が種々のレベルで広く分布・存在している。また, これらの放射性核種に加えて, 人工放射性核種も 1945 年以來の大気圏での核実験や原子力平和利用に付随した人的活動によって環境に負荷されてきた。

放射性核種は, 放射線影響や放射線防護の観点から良く研究されてきたが, 一方では, 1) 重さが量れない僅な量であっても容易に検出できる特性をもっていること, 2) 一定の物理的半減期で減少すること, さらに 3) 供給源や供給量が把握されていること等のために自然界で起こっている種々の地球化学的なプロセスの時間や速度の変化についての情報を提供してくれるトレーサー (追跡子) としての側面を持ち合わせている。また, 放射壊変の原理を利用した年代測定にも多用されている。

本講演では, 金沢大学の低レベル放射能実験施設の現状と併せて最近の当施設での放射年代測定に関わる研究の話題を紹介してみたい。



2. 極微量放射能測定

金沢大学の低レベル放射能実験施設 (現: 環日本海域環境研究センターに所属) は, 学術会議 (上図) から政府に出された環境放射能研究所と放射線障害基礎研究所の設

置の勧告にルーツを持ち、1975年に環境放射能の教育・研究を目的として、我が国の大学の唯一の放射能研究の附属施設として設立された。それ以来、自然界に存在する放射性核種や人工の放射性核種の放射線影響に関わる研究やそれらをトレーサーとする地球化学的研究、年代測定への応用を試みてきた。しかし、環境中の人工放射性核種の濃度は、表層の土壌などを除くと非常に低減しており従来の測定量、測定方法では困難な状況になってきた。これを打破しブレークスルー的な研究を目指して、10年ほど前から小村先生（2008年3月退職）が中心になり、古い銅鉱山跡地のトンネル内に極低レベル放射能測定のための地下測定



室を構築し、地上測定より約2桁低い極低バックグラウンドのGe検出器による放射能測定を実現した。現在18台の検出器が稼働しており、 γ 線を放出する放射性核種の非破壊測定では世界に類の無い非常に

魅力的な施設になっている。最近では、物理的半減期の長い放射性核種（数千年以上）の微量測定に対しては、放射線測定よりも原子数測定が有利であることから、ISP-MS

微弱放射能測定

放射性核種

放射線

原子数の測定
質量分析計

- 1) β 線 (e^- , e^+)
- 2) γ 線 (電磁波)
- 3) α 線 (He原子核)
- 4) 中性子

これらの放射線の測定は、種類、半減期レベルによって異なり創意工夫が必要

誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS)
表面電離型質量分析計 (TIMS)
加速器質量分析計 (AMS)

液体シンチレーションカウンター
Ge検出器- γ 線スペクトロメトリー
 α 線スペクトロメトリー
中性子カウンター

尾小屋に整備されている検出器はBGの極めて少ないGe検出器 (18台)

宇宙化学分野

- 1) 環境中性子誘導核種(Au-198)
- 2) 隕石中の宇宙線誘導核種の測定
- 3) 雨水中の宇宙線誘導核種の研究

地球化学分野

- 1) 日本海沿岸海水のラジウム同位体の研究
- 2) 大気中放射性核種の高分解能変動解析
- 3) ラドンと地震
- 4) Th-228/Ra-228 比による年齢測定法の開発

放射線影響分野

- 1) JCO臨界事故関係
- 2) Ag-108mによる原爆中性子評価の可能性
- 3) Eu-152による原爆中性子評価
- 4) 劣化ウラン弾の測定

が多用されるようになり, TIMS, さらに極低レベル測定 AMS も普及している(国内では, ^{14}C , ^{10}Be 測定など)。

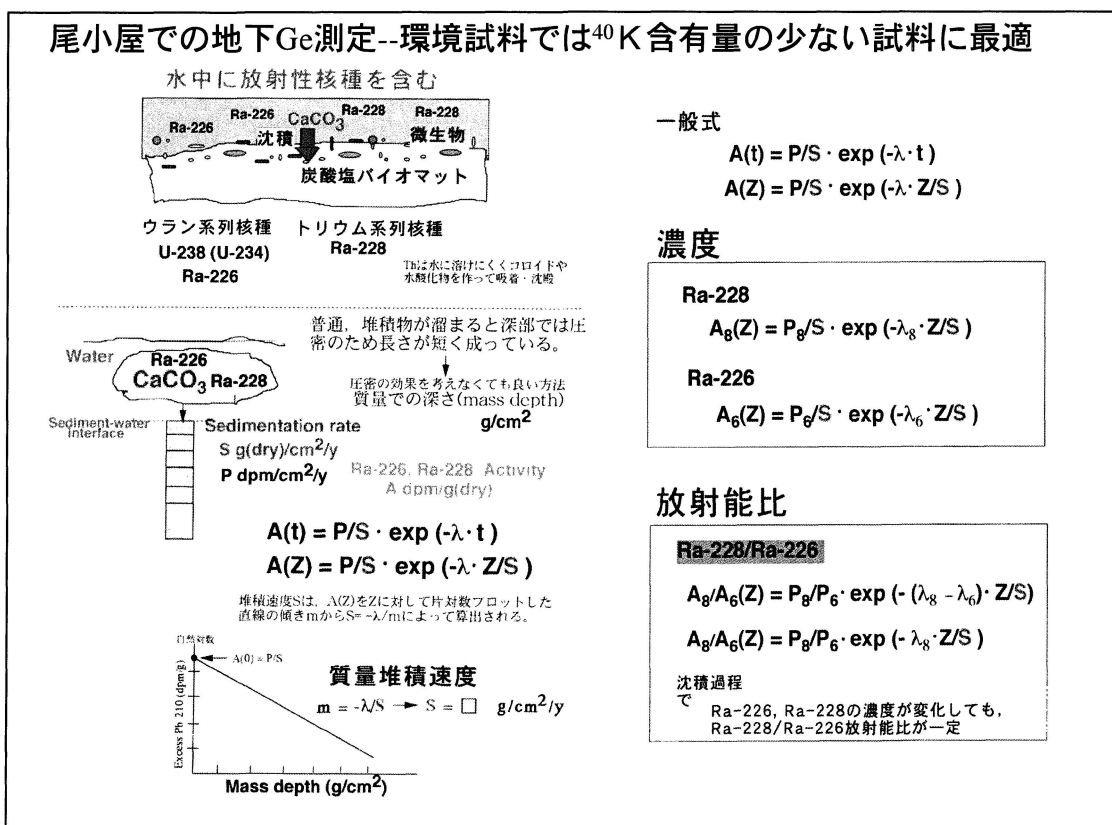
上図に, 尾小屋地下での微弱放射能測定を利用して実施されてきたこれまで研究項目の幾つかを示すが, 従来の試料量, 測定法では不可能であった研究が可能になり, 新分野への更なる展開が期待されている。

3. 放射年代測定

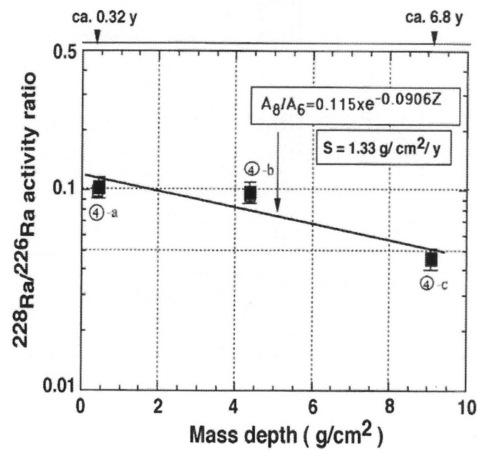
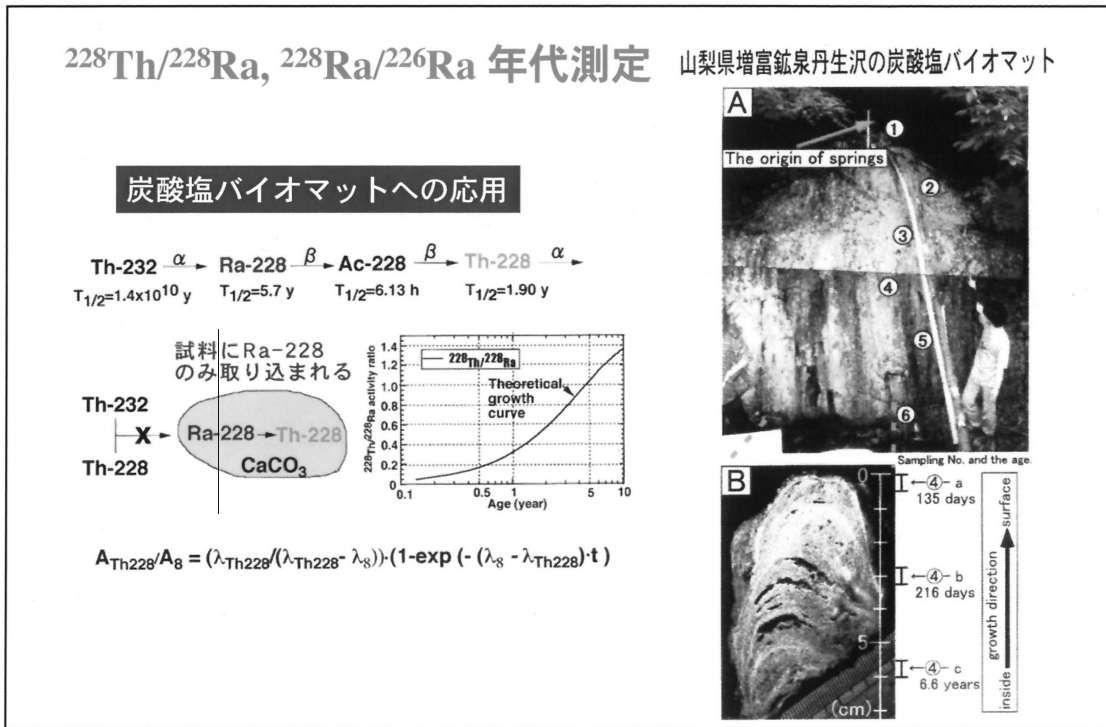
科学的な厳密さをもった数値として年代が得られるようになったのは, 19 世紀末に発見された放射壊変の原理を利用した年代測定が行われるようになってからである。放射壊変を利用した年代測定には, 宇宙線生成核種を利用する方法, 放射壊変系列における放射平衡からのずれを利用する方法などが多用されている。当実験施設でもこれまで珊瑚などへの放射年代の応用など多くの年代測定研究を行ってきた。ここでは, バイオマットの生成速度や資源保護の観点からの甲殻類カニの年齢推定のための $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ($^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$) 法と湖底堆積物の堆積年代推定へのアイオニウム法 (^{230}Th - ^{234}U - ^{238}U 法) の適応例を紹介する。

3.1 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ あるいは $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 法を用いる炭酸塩バイオマット成長速度推定

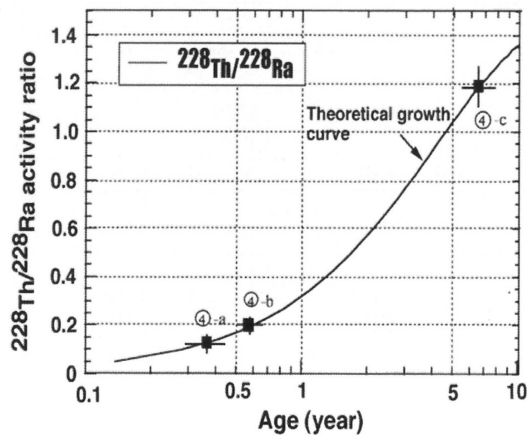
石灰岩地域や温鉱泉地では, 水中の Ca^{2+} が豊富に存在しカルサイトに過飽和な状態で容易に層状炭酸構築物が形成される。通常それらの表面にはバイオマット(微生物被膜)が付着し, その成長には微生物の分泌物が重要な役割を果たしていると考えられている。山梨県増富温鉱泉は古くから強放射能温泉として知られ, その鉱泉付近の沈殿物には多量のケイ酸やシアノバクテリアが見られ現世のストロマイトが形成さ



れつつある。増富温鉱泉水には、天然のウランやトリウム系列の放射性核種が含まれており、炭酸塩バイオマットに Ca と同族のラジウム(Ra)が含まれていることが期待できる。沈殿生成速度の評価は、沈殿物の形成年代，形成過程，さらにそれを通しての環境変動の解析に非常に重要である。ここでは，増富温鉱泉丹生沢に出来ている層状の炭酸塩バイオマットの年代を $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ あるいは $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 法を用いて検討した。



山梨県増富温鉱泉の丹生沢の炭酸塩バイオマットの沈積速度



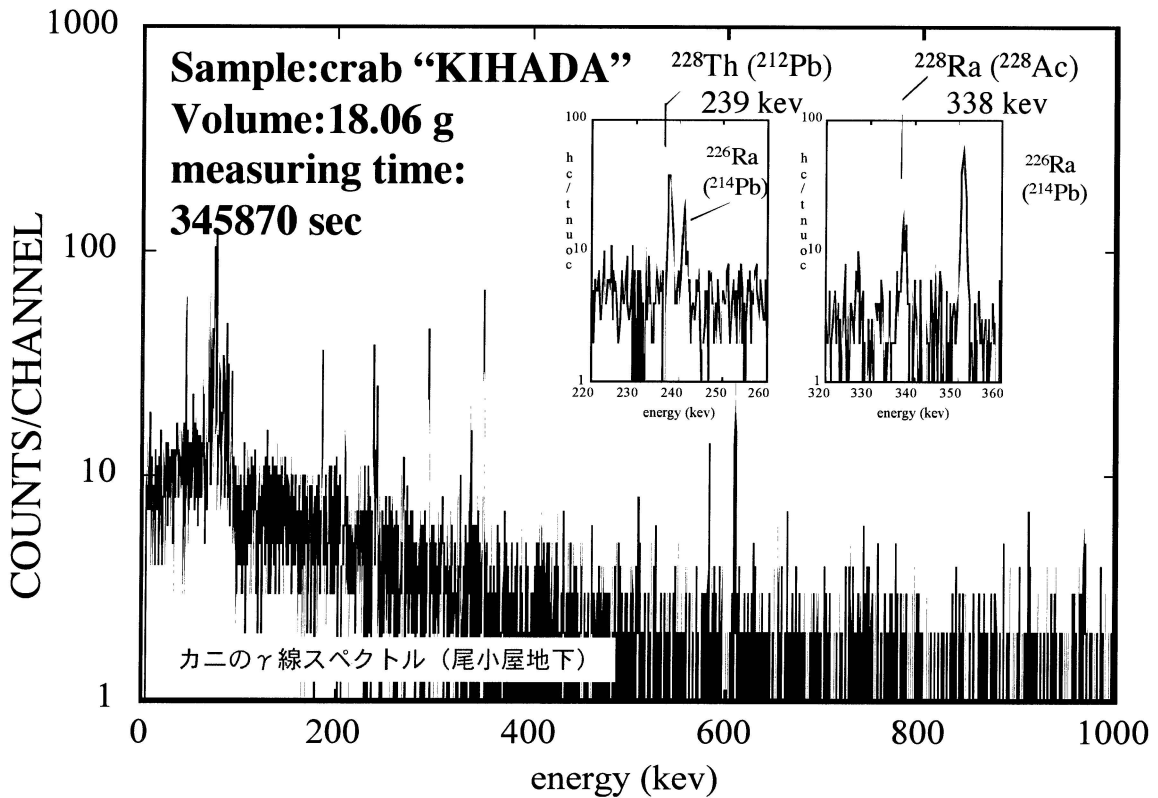
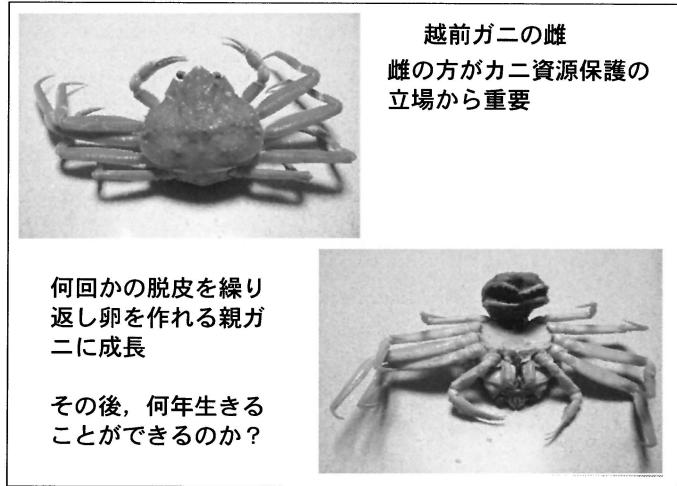
山梨県増富温鉱泉の丹生沢の炭酸塩バイオマットの年代測定 $^{228}\text{Ra} - ^{228}\text{Th}$ dating method

測定の結果，表層試料が ^{228}Ra の親核種 ^{232}Th を含まないこともあって，表層および 3cm 付近では各々 135 ± 27 日， 216 ± 25 日の，さらに深い 6cm の所では 6.6 ± 1.2 年の堆積年代を推定でき，堆積が連続的と考えるよりも不連続の時期があったと推察した。いずれにしても，バイオマットに関わる炭酸塩沈殿の年代推定ができ，形態変遷の詳細

細な検討を可能にしたことは非常に興味深い。

3.2 $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 法を用いた甲殻類カニの年齢推定

我が国の水産業において、海産資源の保護は極めて重要である。甲殻類、特に越前ガニの資源保護も例外ではない。今回、福井県若狭エネルギー・センターとの共同研究で越前カニ雌の年齢推定にチャレンジしている（浜島先生）。雌の保護が、雄に比べて優先度が高い。下図に雌ガニ 1 杯から得た甲羅の乾燥試料の γ 線スペクトルを示す。 ^{228}Ra そして ^{228}Th をそれらの娘核種より測定可能であることが分かる。現在、飼育時の最終脱皮後（卵が産める雌ガニ）のおおよその経過年数が既知の雌ガニを用いて測定を実施しており、さらなる検討が必要であるが、良好な結果が得られつつある。



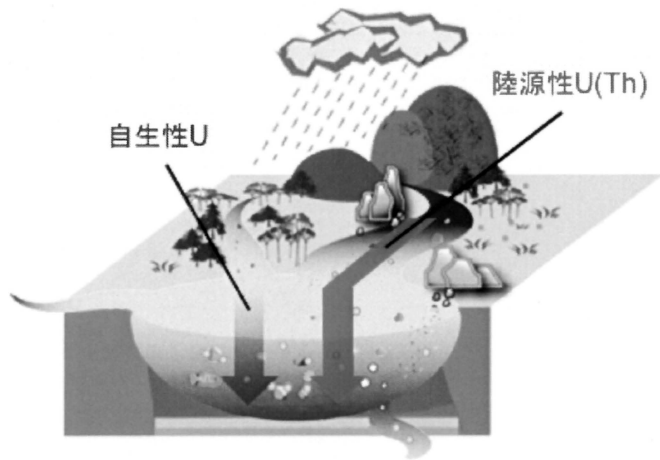
3.3 湖底堆積物の堆積年代決定へのアイオニウム法 (^{238}U - ^{234}U - ^{230}Th 法)

第四紀の湖底堆積物における堆積年代決定法として、これまで ^{210}Pb (^{137}Cs) 法、 ^{14}C 年代測定法が広く利用されてきた。しかしながら、これらの手法には適用可能な範囲 (^{210}Pb (^{137}Cs) 法で数百年、 ^{14}C 年代測定法で約 5 万年) に制限があり、第四紀更新世の年代測定法には依然として空白の期間が存在している。U 系列核種 (^{238}U - ^{234}U - ^{230}Th) を用いる年代測定法は数万年から約 100 万年の範囲を補う有力な方法として、主に海洋で珊瑚や貝殻などの閉鎖系が保証されやすい試料で利用されてきた。ここでは湖底堆積物 (フブスグル湖) へのアイオニウム年代測定法の適用例と誤差の評価を紹介する。

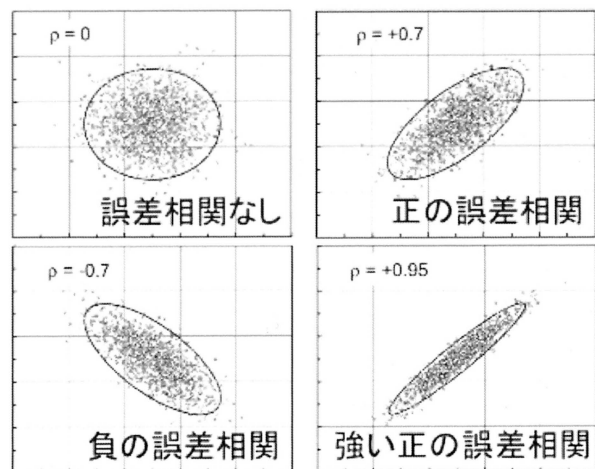
年代測定における珊瑚や貝殻などの炭酸塩試料と湖底堆積物試料の決定的な違いは、陸域の岩石や土壌に由来する U 系列核種 (陸源性 U) が常に混入し得るか否かという点に帰着できる。陸源性 U は一般に放射平衡に達していると考えられるので、年代測定に用いることはできない。珊瑚や貝殻では陸源性 U が存在するような試料を排除し、海水 ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}=1.14$) から取り込まれた U (自生性 U) のみを含む試料から信頼に足る年代測定をすることができ

るが、湖底堆積物の場合では然るべき方法によって全 U 濃度から陸源性 U 濃度を差し引いた自生性 U 濃度に着目する必要がある。

疑似アイソクロン法は直接的に自生性 U 系列核種の比を求めることができ、最も数学的に優れた方法として利用されている。鉱物を選定したり酸の強度を変えて抽出したりすることで、同じ年代ではあるが異なる同位体比を持つ試料に対し、 $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ と $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ を軸にプロットし誤差重み付き最小二乗法で回帰すると、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 軸の切片が自生性 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比となる。これは水に不溶な ^{232}Th を陸源性物質の指標とし、これが存在しないときの即ち自生性成分の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比を外挿することに対応する。同様に自生性 $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 比も外挿によって推定することができる (Osmond isochron)。これら二つの比を用いることで、放射壊変の一般式から初期値を必要とせ



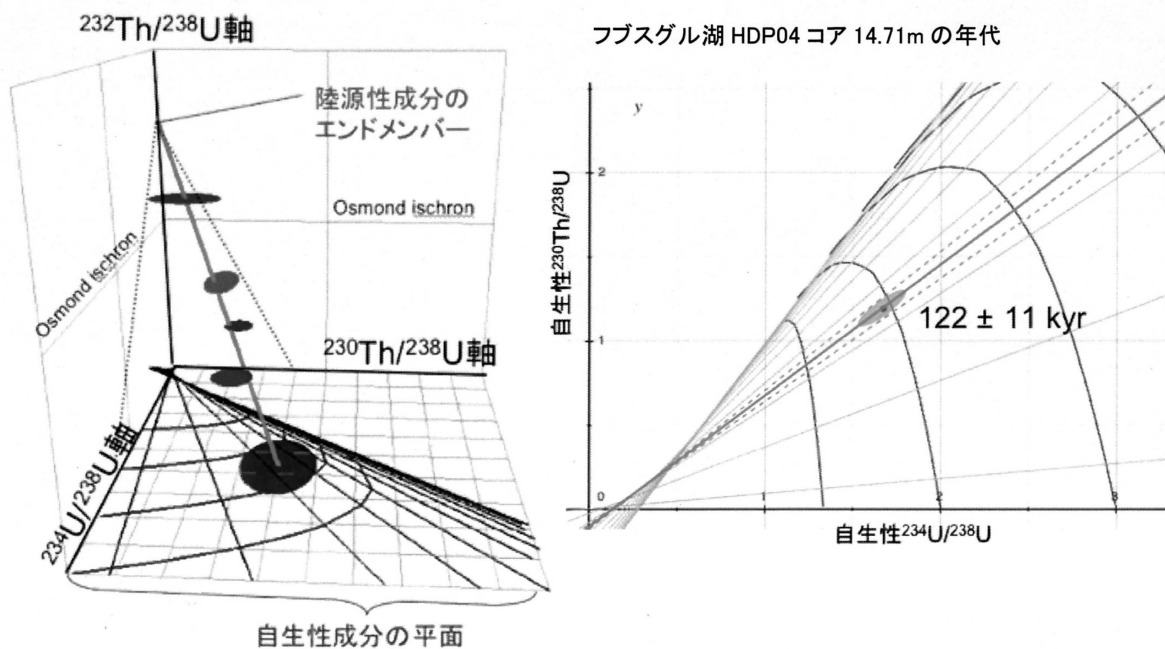
自生性・陸源性 U 系列核種の概念図



誤差相関と確率楕円の関係

ずに年代を算出することが可能になる。

我々はモンゴル北部に位置するフブスグル湖の湖底堆積物 (HDP04) に対し、アイオニウム年代測定法を実施した。実際には、上記の方法 (Osmond-type paired isochron) を拡張させた 3D アイソクロン法を使用している。推定された自生性 $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ はそれぞれ共通の分母 (^{238}U) で除算することにより生じる誤差相関を含んでいる。誤差相関は視覚的には x-y 軸の誤差を考慮した時に得られる確率楕円の傾きとして表現されるが、上記の方法では共通の軸 ($^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 軸) により生じた誤差相関の効果を二度引用することになり、正確な誤差を得ることができない。3D アイソクロン法はこの問題を「全て同時に計算する」ことにより解決しているといえる。即ち、x 軸に $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 、y 軸に $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 、z 軸に $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ を取り三次元で回帰することで、



3D アイソクロン法の概念図 右:フブスグル湖堆積物試料での実際の応用例

x-y 平面 (アイソクロン平面) に正確な誤差の確率楕円を描くことを可能にする。フブスグル湖の堆積物に実際に実施したアイオニウム年代測定法では概ね良好な結果が得られた。10%程の誤差はあるものの、年代測定法がなかった空白の時期に新たな手法を適用したことは意義深いものであるといえる。

参考文献

- 小村和久, 他, 超低レベル放射能測定 of 現状と展望: *Radioisotopes*, 55, 233-243 (2006), 55, 293-306 (2006), 55, 691-697 (2006).
- 田中義太郎, 山本政儀, 田崎和江: 炭酸塩バイオマットの放射年代測定-山梨県増富鉱泉を例として、*地質学雑誌*, 107, 673-680 (2001).
- Osmond, J. K., May, J. P., Tanner, W. F.: Age of the Cape Kennedy barrier-and-lagoon complex, *J. Geophys. Res.*, 75, 5459-5468 (1970).
- Ludwig, K. R., Titterton, D. M.: Calculation of $^{230}\text{Th}/\text{U}$ isochrons, age and errors,

Geochim. Cosmochim. Acta, 58, 5031-5042 (1994).

Ludwig, K. R.: Reviews in mineralogy and geochemistry, Uranium-series Geochemistry (Eds. Bernard, B., et. al.), Volume 52, 632-656 (2003).

Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Tomita, J., Mino, K., Sasaki, K., Kashiwaya, K., Kawai, T.: Uranium-series chronology for lake sediments (HDP-04) with 1Ma uranium and thorium isotopes distributions, Lake Hovsgol, Mongolia, Quarter. Internat., (accepted, 2009).