

氏名・(本籍)	おおむらあきを 大村明雄
学位の種類	理学博士
学位記番号	理第 423号
学位授与年月日	昭和49年2月27日
学位授与の要件	学位規則第5条第2項該当
最終学歴	金沢大学大学院理学研究科修士課程 地質学専攻修了
学位論文題目	Uranium, Thorium and Protactinium isotopes in skeletal carbonates and their application to geochronology, (生物源炭酸塩中のウラン・トリウム・プロトアクチニウム 同位体とそれらの年代学への応用)
論文審査員	(主査) 教授 浅野 清 教授 塩川 孝信 教授 北村 信夫 教授 小高 民夫

論 文 目 次

- I 緒 論
 - i 緒 言
 - ii イオニウムおよびプロトアクチニウム成長法の理論
 - iii イオニウムおよびプロトアクチニウム成長法の研究史
- II 海洋中のウラン・トリウム・プロトアクチニウム同位体
- III 現生生物硬組織中のウラン・トリウム・プロトアクチニウム同位体
 - i 生物源炭酸塩中のウラン・トリウム・プロトアクチニウム同位体量
 - ii サンゴおよびシャコ貝中のウラン・トリウム・プロトアクチニウム同位体の分布
 - iii 考 察 — 海棲生物硬組織をつくる炭酸塩中のウラン量を支配する要因 —

- IV 化石硬組織中のウラン・トリウム・プロトアクチニウム同位体
 - i 未変質の化石中のウラン・トリウム・プロトアクチニウム同位体
 - ii 変質された化石中のウラン・トリウム・プロトアクチニウム同位体
 - iii 考 察 —— イオニウムおよびプロトアクチニウム成長法による年代測定の問題点 ——
- V イオニウムおよびプロトアクチニウムの成長法の第四紀後期礫性石灰岩への応用
- VI 要 約
- 補 遺 分 析 方 法
- 文 献

論 文 内 容 要 旨

イオニウム (^{230}Th) およびプロトアクチニウム (^{231}Pa) は、ともに半減期の長さから、従来の方法では信頼性が低いとされている。数万～数十万年の材料の放射年代測定法に最適だと最近注目され、“イオニウムおよびプロトアクチニウム成長法”とよばれる方法が開発されてきた。しかし、この方法を用いるには、(1)材料中に測定可能量のウラン同位体が含まれていることはもちろん、ほかにも(2)材料として使用される生物が生育中にはイオニウムやプロトアクチニウムなどウラン同位体の娘核種を含まないこと、および(3)生物の死後、化石として残された硬組織中でウランおよびアクチニウム系列に属する諸核種に関して閉鎖系が保たれていること、という3条件が必要である。

本論では、南西諸島からマレー半島に至る太平洋周縁域に生育する種々の現生生物について第1条件を検討し、あわせて生物源炭酸塩中のウラン量を支配する要因を明らかにした。また、現生と化石試料中の同位体組成を比較して、上記採集地域の試料について、第2・第3条件を検討した。

本研究で用いたd-スペクトル法およびフィッシュン・トラック法によって分析したすべての生物硬組織中から測定可能量のウラン同位体が検出でき、まず第1条件についてはほとんど問題ないことが明らかにされた。また造礁サンゴ・軟体動物および棘皮動物などによって作られた硬組織と海水間のウラン(実際は $[\text{UO}_2]^{2+}$) に関する分配係数を求めた結果から、生物硬組織をつくる炭酸カルシウム中のウラン量を支配する要因として、(1)炭酸カルシウムの鉱物種 — 相依存性 — (2)水温 — 温度依存性 — および(3)生物の種類による生理作用の差 — 生理的選択性 — などがあげられる。そのほか、現在知られている不十分な資料からは解釈できないが、ともに一つの成長層として *extrapallial fluid* からほぼ同時に沈積したはずの二枚貝(与論島産シャコ貝)の内外両層間でウラン量が著しく異なり、外層に1桁も多く含まれていること、および同じ殻の外層で、Pannella & MacClintok(1968)やBonham(1965)によって推定された月間成長率に相当する周期でウラン量が変動することも、新事実として確認された。

次に、本研究で用いられたほとんどの現生試料で、測定可能量のイオニウムおよびプロトアクチニウムが検出され、原理的には当然0年を示さなければならない現生試料が、見かけ上、イオニウム年令にして最高5,700年、プロトアクチニウム年令にして14,000年の放射年令を示した。したがって、これら現生試料と同地域の化石が、もし生育時すでにイオニウムおよびプロトアクチニウムを含んでいたとすれば、それらの示す見かけの年令値は、生物の死亡した正しい年代ではなく、より古い年代を示すことになる。このことは、数千年オーダーの化石試料から求められた見かけのイオニウムおよびプロトアクチニウム年令が、ともに同一試料の炭素-14年令より一般に

古いこと、および時代に関係なく、ほとんどの化石試料中に現生試料とほぼ同量のトリウム(^{232}Th)が検出されたことで支持される。結局、先の第2条件を満たさないため、南西諸島産の化石試料から真の年令値を得るには、生育時に取り込まれたイオニウムおよびプロトアクチニウム量を知る必要がある。筆者は、同地域の現生試料の分析で、各資料ごとに求められたイオニウム/トリウム放射能比が、生育地の海水中の同比(1.4 ± 0.2)とほぼ一致すると結論し、次式によって、生物体の死後、ウラン(^{234}U)の壊変によって形成されたイオニウム量($^{230}\text{Th rad}$)を推定し、補正年令を求めた。

$$^{230}\text{Th rad} = ^{230}\text{Th total} - 1.4 \ ^{232}\text{Th} \cdot e^{-\lambda_{230} \text{ t}}$$

こうした補正法は確かに有効であるが、ほかにも問題がある。それは、現生試料中でみられたウランとトリウムおよびプロトアクチニウム同位体の分布の違いである。ウランが二枚貝の内外層間などで明らかなように、生物硬組織中で不均一に分布するのに対し、トリウムおよびプロトアクチニウム同位体はほぼ均一に分布する。そのため、同じ現生試料でも、部分によっては異なった見かけの年令値を示すのである。例えば、あるサンゴ試料では、見かけのイオニウムおよびプロトアクチニウム年令の部分的な差が、それぞれ1,100年と2,800年にもなった。このように、ウラン分布の不均一性も化石が示す見かけの年令値を不確かにする一つの要因といえる。

アラレ石の生物硬組織で、その一部が再結晶化によって方解石に転移したときは、特殊な場合を除いて、一般にウラン同位体量の減少が顕著である。これはウラン量を支配する要因として先にあげた相依存性によって説明がつく。いずれにしても、本来生物硬組織として形成された鉱物相がそのまま残されている場合を除いて、信頼できる年令値を得ることは不可能といえる。しかし、軟体動物の場合、もともとのアラレ石質硬組織が全く相転移せずに保存されているときでも、死後ウランが富化する事実があることから、上記の第3条件を満たす材料を得ることは望めない。結局、信頼できる年令値を得るには、造礁サンゴ化石が最適である。その理由として、続成作用を被ると安定な方解石へ転移しやすいとされているアラレ質の骨格のため、保存状態の良否を判断しやすいこと、および軟体動物のような死後のウラン量に変化が全くみられないことなどがあげられる。そうした中でも、南西諸島産の試料のように初生的な娘核種を含むことが確実な場合は、次の条件を完全に備えたものを厳選することが大切である。(1)分析前の洗浄で除去できない外来物を付着していないこと。(2)試料はアラレ石のみで構成され、二次的な方解石の晶出が認められないこと。(3)ウラン(^{238}U)量が2~4 ppmの範囲内であること。(4)ウラン比($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比)は1.18~1.00の範囲内を示すこと。(5)トリウム量が、同地域の現生試料中の量以下であること。

最後に、上記の条件を備えた化石サンゴだけを選出し、各試料ごとで、イオニウム年令とプロトアクチニウム年令を、とくに問題の多い数千年オーダーの試料については、炭素-14年令も同時

に求め、それぞれを互いにクロスチェックしながら、琉球石灰岩の形成時代を明らかにした。こうすることで、これまで層位学的な手法で推論するより方法がなかった同岩の形成時代を正しく知ることが可能になった。すなわち、鹿児島県喜界島の Hanzawa (1935) によって、隆起サンゴ礁とされたものが 4.0～7.0 千年以前に、そして琉球石灰岩として一括されたものが、実は 3.6～4.0 万年・5.0～6.5 万年・8.0～10 万年および 12～13 万年以前の 4 時期にわけて形成されたもので、他の島の大部分の琉球石灰岩の形成時代もそれらのいずれかに相当することが推定される。琉球石灰岩は、その構成生物相などからみて、温暖な気候条件下で堆積したことは間違いない。したがって、第四紀後期の氷期・間氷期のくりかえしの中で、上記のそれぞれの年代は間氷期の年代を示唆するものとしてよいだろう。この結論は、現在世界各地から報告されつつある結果ともよく一致する。なかでも、おおよそ 4 万年および 6 万年以前の温暖期は、存在が疑われながら、研究者間の議論の対象となってきた。しかし、本研究で後者の年代を示す段丘面が西インド諸島バルバドス島から、大西洋域で初めて見出され、その論議に終止符を打つことになった。

論文審査の結果の要旨

地質年代の新しいもの、古いものなどに応じて放射年代の測定には、いろいろの方法が適用されてきたが、数万～十数万年前のものに対して、最適とされてきたウラン・トリウム、プロトアクチニウムの分析法には、なおいくつかの問題があった。大村は本研究において、イオン交換法によって、ウラン・トリウム・プロトアクチニウムを同一試料液から逐次抽出する新しい分析法を確立し、一方で最近開発されたフィッション・トラック法を応用しながら西太平洋地域および西インド諸島バルバドス島等から採集した現生生物ならびに化石硬組織中の同位体組成とウランの分布様式について詳しく検討した。その結果、これまでよりは、はるかに信頼度の高い年齢を求めることができ、地質学的な形成過程を明確にすることができた。すなわち、鹿児島県喜界島の隆起サンゴ礁といわれるものは、4～7千年前の産物で、同時代の礁性石灰岩は南西諸島のほとんどの島々では、現在の潮線付近、台湾では20 m以上の高位にまで分布している。

これまで、層位古生物学的手法で細分がむずかしいといわれてきた琉球石灰岩は、年代的にみると、3.6～4.0万年、5.0～6.5万年、8.0～10万年および12～13万年前の4時期に形成されたものである。

バルバドス島で約6万年前の礁成石灰岩が低位段丘として発達しているが、このようなものは、大西洋地域では初めて見出された。

以上の年代測定の結果から、これまで第四紀研究者の間で議論の絶えなかった4万年～6万年以前に温暖期の存在することが確認された。また隆起サンゴ礁、および琉球石灰岩の分布高度などから、少なくとも後期洪積世以降、台湾では年間2～3 mm以上、喜界島では1～2 mmの率で上昇しつづけてきたといえる。

よって大村の論文は理学博士の論文として合格と認める。