

天然における放射非平衡と地球化学

金井 豊 (技術部)
Yutaka KANAI

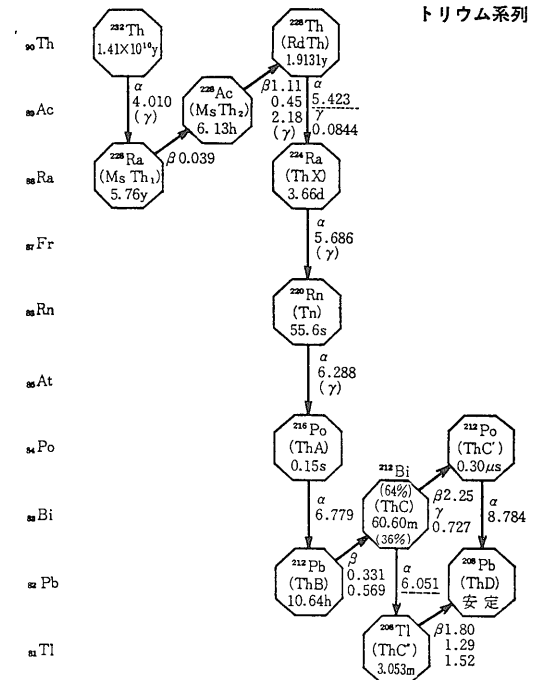
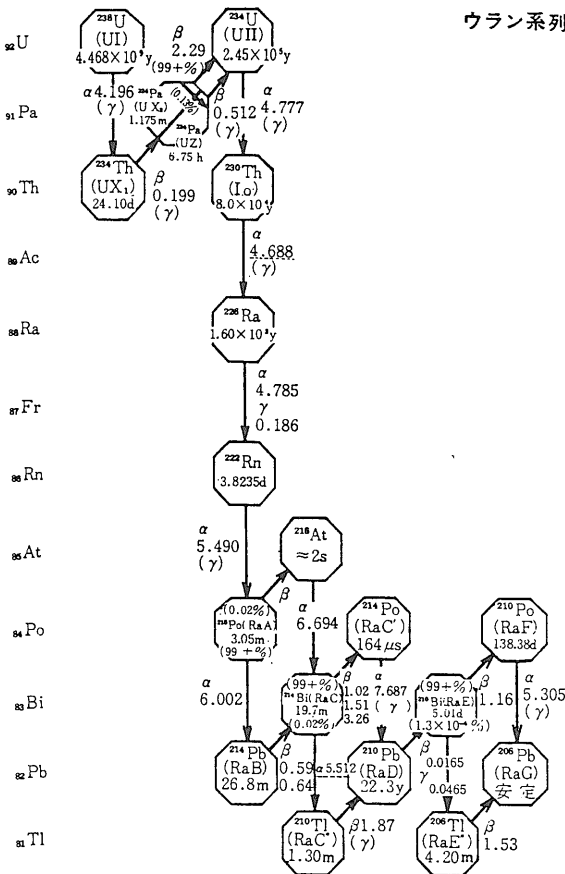
1. まえがき

天然には放射性核種が幾種か存在しているが その中でもお互いに系列をつくって次々と壊変していくものがある。これらは 親核種の名をとってウラン系列 トリウム系列 アクチノウラン (アクチニウム) 系列と呼ばれている。壊変に伴う質量数の変化は α 壊変時の $4n+2$ $4n+3$ で関係づけられている。この他にも $4n+1$ で表わされるネプツニウム系列があるが 天然にはほとんど存在していない。ここでは ウラン系列と

トリウム系列に主眼をおいて話を進めていきたい。

これらの系列の壊変図を第1図に示した。各々の核種は α 線・ β 線・ γ 線等の放射線を放出しながら核種特有の半減期で壊変し 最後には安定な鉛の同位体 ^{206}Pb ・ ^{208}Pb となる。ところで 親核種の半減期が娘核種の半減期と比べて十分に長ければ 娘核種はあたかも親核種と同じ半減期で壊変しているように観察される。*これが「放射平衡」と呼ばれている状態で ウラン系列やトリウム系列では 親核種の ^{238}U や ^{232}Th の半減期が 4.5×10^9 年 1.4×10^{10} 年と他の娘核種の半減期に比べて十分に長いので 放射平衡の状態にあると考えられていた。

ところが CHERDYNTSEV と CHALOV がシュレッキングル石 (ウランの炭酸塩鉱物) において ^{234}U が ^{238}U よりも濃縮しており 放射平衡の状態にないことを報告してから 天然のウラン鉱や天然水 岩石等においては「放射非平衡」の状態がしばしば生じていることが明らか



* この時親核種と娘核種の放射能は等しくなる

第1図 放射壊変図 (アイソトープ手帳 1980による)

かとなった。

このような非平衡は 化学的な また地球化学的な諸作用によって生じており 非平衡の解析は 逆に対象物がたどってきた道筋を解明する糸口となっている。ここでは 放射平衡・非平衡に関する最近までの研究の一端を述べ あわせて地質調査所で予察的に行った測定を紹介してみたい。

2. 放射非平衡の研究例

2.1 鉱石

1955年に CHERDYNTSEV によってジュレッキンゲル石中のウラン同位体放射能比 ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$) が3.7と報告されて以来 種々の鉱石中のウラン同位体比が報告されている。その一例を第1表に示した (梅本, 1966)。一般に 若い堆積性の鉱物ではウラン同位体比が1からはずれていることが多い。人形峠をはじめとする日本各地のウラン鉱・ノジュール等のウラン同位体比も多くの試料で1よりわずかに小さな値で 大きな過不足はないことが指摘されている (SAKANOUÉ et al., 1968)。鉱物の成因・続成作用等の諸条件にも関係するが 特殊な条件下でなければ それ程大きな非平衡にはならないものと考えられる。

2.2 火山岩

若い火山岩は 上部マントル・地殻下部を起源としているものと考えられており 火山岩の放射系列核種の測定結果からマグマの挙動に関する議論がなされている。

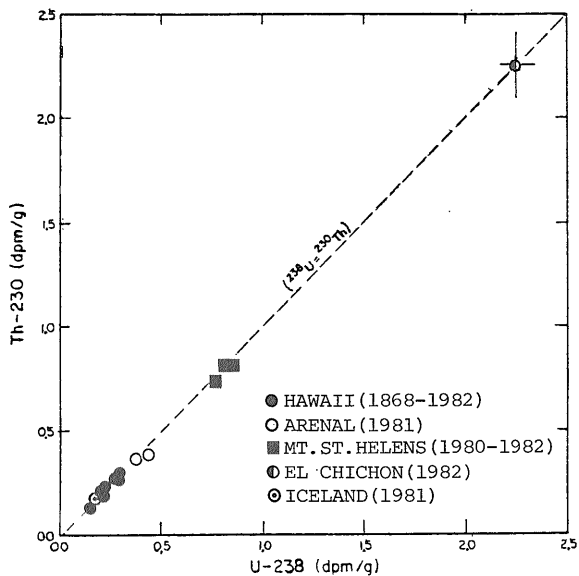
マグマ生成におけるウランとトリウムの分別も一つの課題である。 ^{234}U と ^{238}U とが放射平衡にあるとして ^{230}Th と ^{238}U とをプロットすると もしウランとトリウムとがマグマ生成の時に分別を生じていれば 放射平衡関係線からはずれるはずである。KRISHNASWAMI et al. (1984) は St. Helens 火山の噴出物を調べた結果 第2図に示したように平衡関係線上にあり 分別はないとしている。一方 ALLEGRE (1976) CONDOMINES (1980) 等のフランスの研究者は 少してはあるが 確実に分別の生じた試料も幾つかあるとしている。また SAMAYAJULU et al. (1966) は ハワイの火山の $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 比を調べているが 1.08~1.51と ^{230}Th の過剰がかなりあり 前二者とも異なる結果となっている。

SAMAYAJULU et al. (1966) は ハワイ・大島・三宅島・硫黄島・隠岐島等の火山岩の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比 $^{210}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ 比も調べており 多くの試料において ^{210}Pb がU平衡量に対して不足していることを明らかにした。これは マグマ中及び固結後の Rn の散逸によると考えた。

第1表 鉱物中の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比 (梅本, 1966による)

鉱物	産地	$^{234}\text{U} : ^{238}\text{U}$	註
強放射性鉱物			
Uraninite	Northern Karelian	1.02±0.01	
Brannerite		1.00±0.01	
変質した放射性鉱物			
Pitchblende		1.015±0.003	黒い粒
〃		1.042±0.006	灰色の粒
Thorite		0.976±0.007	
輝水鉛鉱			
	Central Kazakhstan	1.000±0.005	
	〃	1.02±0.03	
	〃	1.00±0.01	
	Zailiiskii Alatau	1.06±0.02	*
	Kirgiziya	1.00±0.02	
	Uzbekistan	0.93±0.01	
	Western Pamir	0.9±0.3	skarn
	〃	1.04±0.02	pegmatoid*
	〃	1.04±0.02	quartz vein*
	Armenia	1.03±0.03	
	Trans-Caucasia	1.00±0.01	
硫化鉱物			
Chalcopyrite		1.00±0.02	
Bornite		0.98±0.02	
水銀・アンチモン鉱床中の鉱物			
Cinnabar		1.50±0.16	
Aragonite		1.30±0.03	
Iron oxides		1.02±0.02	
その他の鉱物			
Magnetite	Armenia	1.05±0.05	
〃	Western Pamir	1.00±0.02	
Garnet	〃	1.00±0.04	
Calcite	Armenia	0.94±0.06	
Magnetite		1.046±0.018	pegmatite vein*
〃		1.037±0.01	〃
Brown iron oxide		0.874±0.008	〃
Iron oxide		1.02±0.02	〃
Calcite		0.97±0.05	〃
Calcite		1.05±0.02	〃*
pegmatite			
Magnetite	Middle Asia	1.01±0.01	
Calcite	〃	1.08±0.04	*
Marble	Armenia	1.00±0.03	
Cassiterite	Kazakhstan	1.00±0.01	
〃	〃	0.94±0.01	

*一次鉱物で $^{234}\text{U} : ^{238}\text{U} < 1$.



第2図 火山岩中の²³⁰Thと²³⁸U放射能の関係線 (Krishnaswami et al., 1984による)

マグマと火山岩との関係を論ずるのに 固相・液相間の分配係数が原子価・イオン半径と関連づけられるために マグマ発生機構には前出のように ²³⁰Th/²³⁸U を マグマだまりに関しては ²²⁶Ra/²³⁸U を用いると便利である。西村ほか(1969)は 日本の三宅島の玄武岩の ²²⁶Ra/²³⁸U が1に近く マグマがあまり分化しないうちに流出したのに対し ハワイの Hualalai 火山は ²²⁶Raの濃縮がみられ 残液の噴出と推定している。

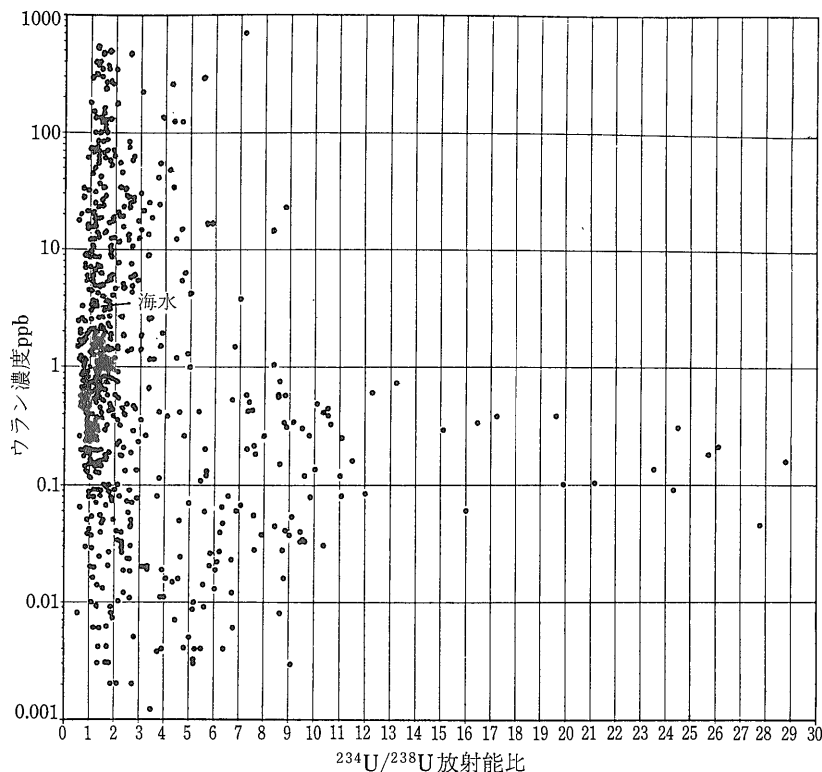
マグマ・マンツルの不均一性も考えられる。佐藤ほか(1978)は 日本の第四紀火山岩のU系列・Th系列核種の放射能比とK濃度を調べ 一つの火山の岩石では岩質にかかわらず概してその火山特有の値の範囲にあることを明らかにし マグマの特徴付けを試みている。

このように 火山岩の研究からマグマに関する情報が得られる。

2.3 天然水

水の循環は 地球規模で考えると閉鎖系であるが ひとつの地域に限ってみるとほぼ開放系に近い。天然における放射非平衡は こうした水の作用に依るところが大きい。

天然水中の ²³⁴U/²³⁸U 比を第3図に示したが 1以上



第3図 天然水中の²³⁴U/²³⁸U放射能比 (Osmond et al., 1983による)

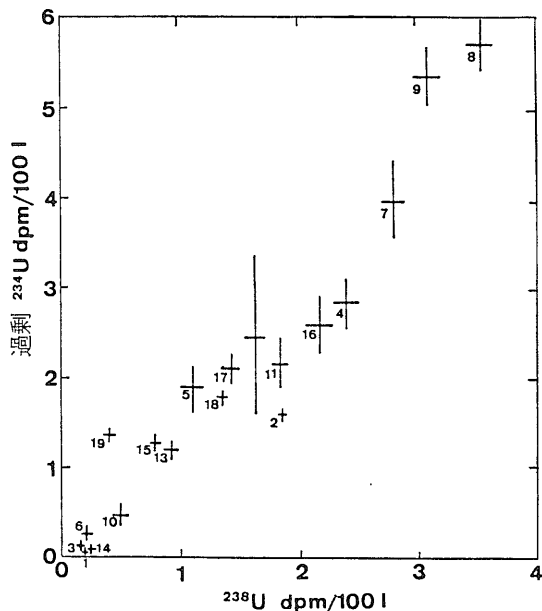
の値が一般的で 時には29にもなる場合もみうけられる。一方 海水中の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比はほぼ一定しており 1.13近くの値である。この比がほぼ一定している事実が 海洋で起こっている種々の現象を解明する手段となっている。

地下水中の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比も測定されている。満田ほか (1983) は武蔵野台地における地下水を調べ ^{238}U 量と過剰に存在する ^{234}U 量とがほぼ比例関係にある (第4図) ことから U含有量の多い“古い水”と含有量の少ない“新しい水”との混合を推定している。また 地下水と接触していた鉱物からの溶出を考え 平均滞留時間も推定している。

HUSSAIN et al. (1980) は インドの地下水中の ^{238}U ・ ^{234}Th ・ ^{226}Ra ・ ^{222}Rn ・ ^{210}Pb ・ $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ を調べ ^{234}Th ^{210}Pb が親核種に比べて不足していることを明らかにした。これは 水中の粒子による表面吸着が原因と考えられている。また ^{238}U 量と $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比が逆相関にあり 帯水層の環境の酸化還元状態を反映しているものと考えた。

2.4 堆積岩・ノジュール

堆積物中のウラン同位体比の測定例は数多い (SNELLING et al., 1979; LIVERY et al., 1979; DOOLEY et al., 1966)。ここでは ノジュールの研究例を示す。海洋底に存在するマンガンノジュールには ウランが比較的濃縮しているものが多い。海水中のウラン濃度・同位体比等がほぼ一定していることから こうしたノジュールの現象



第4図 武蔵野台地の地下水の ^{238}U と過剰 ^{234}U 数値は試料番号を示す (満田ほか, 1983による)

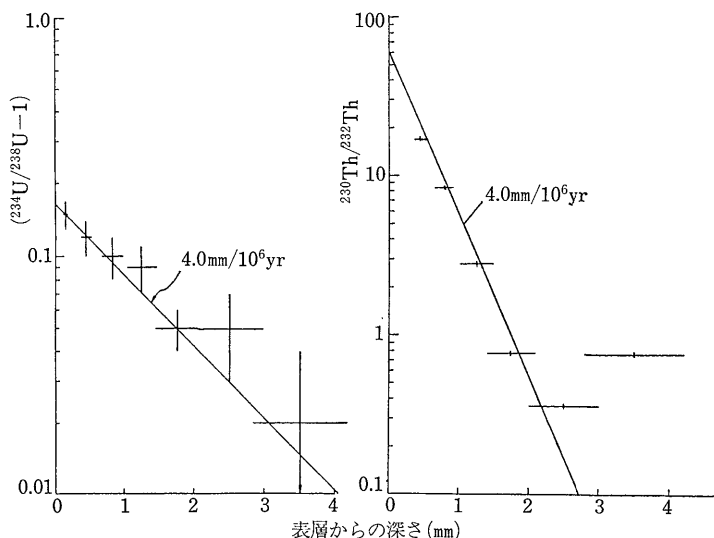
について興味ある研究がなされている。

海水からノジュールにとり込まれたウランは その後海水とのやりとりがなければウラン核種はそれぞれの半減期で減少するはずである。Ku et al. (1967) は マンガンノジュールの表面から試料をかきとり それぞれのフラクション中の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比を測定して成長速度を求め 北太平洋からドレッジされた試料 ($34^{\circ}54'\text{N}$, $160^{\circ}19'\text{W}$, 5400m) からは $4\text{mm}/10^6\text{y}$ という値を得ている (第5図)。

^{230}Th ^{231}Pa 等からも成長速度を求めているが ほぼ同様な大きさであった。第2表には 他の研究者によって求められたマンガンノジュールの成長速度を示した。

BURNETT et al. (1976) は 太平洋のノジュールに対して ^{230}Th を用いる測定法とパラゴナイト化作用を用いる測定法とを併用し それぞれを比較している。 ^{232}Th の含有量も測定し多くは random であるが時には内部ほど減少する試料もあり ^{230}Th の減少は放射壊変によるものだけとはいえないため注意が必要なることを指摘している。

KRISHNASWAMI et al. (1978) は ^{230}Th ^{226}Ra ^{210}Pb ^{231}Pa ^{228}Th ^{232}Th



第5図 マンガンノジュールの $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比・ $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 比と成長速度 (Ku et al., 1967 による)

第2表 マンガンノジュールの成長速度

BENDER et al.(1966)	10mm/10 ⁶ y
KU (1969)	1—6 mm/10 ⁶ y
BURNETT et al.(1976)	3.6—22.6mm/10 ⁶ y
KRISHNASWAMI (1978)	1.8—4.6, 1.5—3.3mm/10 ⁶ y

等を測定し ノジュールの成長速度 メカニズムを解明しようとした。そして ノジュールの底面では頂部に比べ²³⁰Th ²³¹Paが少ないことを明らかにし この違いからノジュールがこの上下関係になっている“年齢”として $\sim 10^6$ yという数値を与えた。また ノジュールが²²⁶Raを捕え ²²²Rnを放出する源となっていることを推定している。

HUH et al. (1984)は ノジュールを red clay (R) siliceous ooze (S) hemipelagic clay (H)の堆積環境によって分類し それぞれを放射化学的に研究した。その結果 Rでは1~2mm/10⁶y Sでは3~8mm/10⁶y Hでは20~50mm/10⁶yの成長速度で 10³~10⁵yの“turn over”年齢をもつことを明らかにした。更に RAMA et al. (1984)は一つのノジュールの中でも数cm離れた部分では組成や同位体比に大きな変動があることを示しており ノジュールの成長が複雑であることをうかがわせている。

一方 同じノジュールでも深海でなく 大陸の浅海沿岸のノジュールでは 次のような違いがみられることを明らかにしている (KU et al., 1972)。

- (1)ウラン濃度が高く (10~20ppm) トリウム濃度が低い (2~5ppm)。
- (2)²³⁰Th ²³¹Paが低く 親核種のUから溶脱している。
- (3)2ヶタ以上成長速度が大きい。

U/Th比が高いのは より還元的であったと考えられ 堆積物の酸化度の目安として有用なことを指摘している。

3. 放射非平衡をもたらず原因

3.1 化学形の相違

このような放射非平衡をもたらず原因はいくつか考えられているが その一つに親核種と娘核種との化学形の相違がある。²³⁸Uについてみると 第1図にあるように²³⁸Uは壊変して²³⁴Thになるが UとThとは異なる元素で 物理的 化学的性質も異なっている。溶存していたUが Thに変わったために溶存できなくなることもある。例えば 海洋ではUは安定な錯イオンとして

溶存しているが Thは水酸化物として存在している。

ウランは地球規模でサイクルしているが この過程の各所において²³³Uと²³⁴Th ひいては²³⁴Uとの分別が生ずるわけである。この作用には 水の組成 温度等が大きく関与しているものと考えられる。

3.2 反跳効果

ウラン原子核は α 壊変するとき反跳効果を受ける。²³⁸Uが壊変するときには 70keVもの大きな反跳エネルギーが放出されるが これは多くのウラン化合物の結合エネルギー10eV ウランのイオン化エネルギー4eVよりもはるかに大きな値であって (DOOLEY et al., 1966) ²³⁸Uは壊変して (²³⁴Th) 電子を放出し結晶構造からも束縛されない状態になっているものと考えられる (²³⁴Thはさらに²³⁴Paを経て²³⁴Uとなる)。KIGOSHI (1971)はジルコンを用いて溶出液の²³⁴Th ²³⁰Thを調べ ²³⁴Thの溶出量は²³⁰Thに比べはるかに多いことを明らかにし ²³⁴Thの α 反跳による溶出を実証した。また FLEISHER (1980)は²³⁵Uを反跳核種として鉱物に埋め込み 種々の溶液に浸して α 反跳トラックのエッチングによる溶出を実験で認めた。このように 反跳効果によるものには 反跳核種が直接鉱物から放出されるものと トラックを通じて溶出されるものとの2段階のメカニズムの存在が考えられる。

3.3 同位体効果

²³⁸Uと²³⁴Uとは質量数が異なるので 種々の挙動において同位体効果が考えられるが その相対的差違はわずかであるため 同位体効果による分別作用はほとんどないものと考えられる。

4. 放射非平衡の地球化学・地質学的応用

放射性核種は放射壊変の式 $\exp(-0.693t/T)$ (Tは半減期)に従って原子数が変化する。壊変の半減期は温度・圧力等の条件に影響されないことが知られており このことから逆に地質時代の“時計”として利用される。放射非平衡を用いる年代測定の例は多く ²³⁴U/²³⁸U ²³⁰Th/²³⁴U ²³¹Pa/²³⁰Th ²¹⁰Pb等の核種を用いて行わ

第3表 核種の半減期による分類

U	4.47x10 ⁹ y	²³⁸ U= ²³⁴ Th= ²³⁴ Pa (24d) (6.8h)
	2.45x10 ⁵ y	²³⁴ U
	8.0x10 ⁴ y	²³⁰ Th
	1.6x10 ³ y	²²⁶ Ra= ²²² Rn= ²¹⁸ Po= ²¹⁴ Pb= ²¹⁴ Bi= ²¹⁴ Po (3.8d) (3.0m) (27m) (20m) (164μs)
	22.3y	²¹⁰ Pb= ²¹⁰ Bi (5.0d)
	138d	²¹⁰ Po
Th	1.41x10 ¹⁰ y	²³² Th
	5.76y	²²⁸ Ra = ²²⁸ Ac (6.1h)
	1.91y	²²⁸ Th = ²²⁴ Ra = ²²⁰ Rn = ²¹⁶ Po = ²¹² Pb = ²¹² Bi = ²⁰⁸ Tl, ²¹² Po (3.7d) (56s) (0.15s) (11h) (61m) (3.0m) (0.3μs)

れている (阪上, 1967). 詳細は他に譲るとして 非平衡に隔離されてからの時間を求める場合が多い. 測定しうる年代は 対象とする核種の半減期によって決まり 数百年から数万年までいろいろである. 半減期の大きさで核種を分けたものを第3表に示したが 測定核種を適当に選べば適用年代範囲はさらに広がることであろう. また測定対象も現状では海底堆積物 (GOLDBERG et al., 1962) さんご (OMURA, 1976, 1983; 大村ほか, 1984) 貝化石 化石骨 火山岩 ノジュール (KRESS et al., 1980) 等が多いが 非平衡の仮定が成立するような試料であればそれらの時間の決定も可能となるであろう.

非平衡の応用例は 測定結果の例のところでもいくつか述べてきた. ウランやトリウムは マグマから鉱物・火成岩を経て堆積岩 河川 海へと移動し 一部はマグマにも戻るが再び堆積し このサイクルを繰り返す.

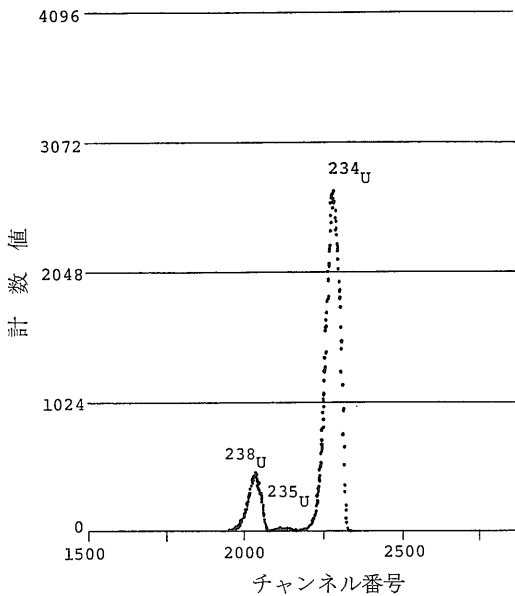
この様な中で 我々の観察を越える時間における地域的現象 マグマの挙動 ノジュールの変化等が非平衡の研究から解明されつつある. 系列核種の非平衡を用いることは 古環境を推定する一手段としても有用であろう.

この他にも 地球化学探査の一手法としてウラン探査に また Rn・He 濃度と同様に地震予知の一手法としても ²³⁴U/²³⁸U 比が用いられている (GORBUSHIUA et al., 1972).

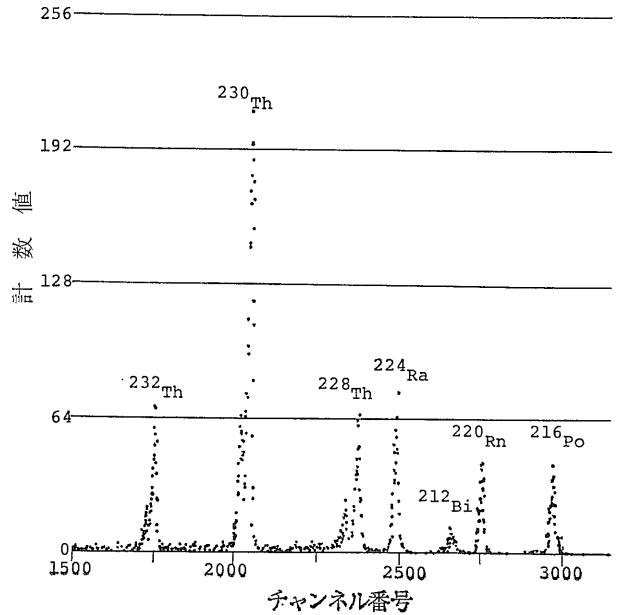
いずれにしても これらの方法は放射性核種としての特性と ウラン・トリウムの化学的・物理的性質をうまく利用しており今後地質現象における天然のトレーサーとして広く利用されることが期待される.

第4表 岩石標準試料中の ²³⁴U/²³⁸U 比

試料名	岩 質	発行機関	U(ppm)	²³⁴ U/ ²³⁸ U
SY-2	syenite	CCRMP	267	0.994±0.012
SY-3	syenite	CCRMP	628	0.996±0.013
JG-1a	granodiorite	GSJ	4.14	1.066±0.031
JR-2	rhyolite	GSJ	10.2	0.979±0.046
NBS1633a	fly ash	NBS	10.2	1.035±0.017
NIM-L	lujavrite	NIM	15.3	1.004±0.047
NIM-G	granite	NIM	16.1	0.992±0.039
GXR-1	jasperoid	USGS-AEG	32.1	1.029±0.023
GnA	greisen	ZGI	21.8	0.963±0.027
TS	shale	ZGI	29.1	0.813±0.011



第6図 ウラン鉱のアルカリ抽出液のα線スペクトル



第7図 トリウムフラクションのα線スペクトル
(試料は岩石標準試料 GnA)

5. 地質調査所における実験例

このような放射非平衡の研究は 一部の研究室においてしか行われていないようである。これは放射能測定という比較的特殊とも言える分析手法であるためでもあろうが ウラン・トリウムのようなα線放出核種の測定の場合 その飛程が短いため試料の自己吸収を避けるため薄い測定線源を作成する必要があるが それがなかなか難しいためであろう。それでも最近では 半導体検出器(SSB)とマルチチャンネルアナライザー(MCA)を組み合わせたスペクトロメトリーが進歩して α線測定が容易に行えるようになってきている。

筆者も ウランを溶媒抽出・イオン交換等で分離精製後ステンレス板に電着させて測定試料を作成し Si(Au)半導体検出器を用いて 岩石標準試料における $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比を測定した(第4表)。それらは 火山岩 堆積岩 フライアッシュ等であるが 火山岩試料では1に近く 堆積岩ではいくらか平衡からのずれがみられていることがわかる。また ウラン鉱からのアルカリ抽出液における $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は6にもなり ^{234}U が反跳により過剰に溶け出ていることが観察される(第6図)。

トリウムも同様にしてα線測定ができる。第7図にα線スペクトルを示したが トリウム系列の ^{232}Th ^{228}Th の他にウラン系列の ^{230}Th も測定され さらに ^{228}Th の娘核種も測定中に生長しスペクトルとなって観

測されている。

以上 手はじめに測定した例を示した。地球化学的・地質学的現象の解明には $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比だけでは不十分である。トリウムの同位体・ラジウムの同位体等の測定も合わせて行うことによって 今まで述べてきたような天然のトレーサーとしての利用と同時に 時間のパラメーター(年代測定)を加味した総合的解釈が可能となるであろう。そうすることによって 深部マグマがたどってきた道すじ 堆積岩が生成した古環境等が次第に明らかにされていくものであらうと期待している。

最後に文献を提供していただいた東京大学理学部 小橋浅哉氏・地質調査所物理探査部 金谷弘氏に深く感謝いたします。

References

ALLEGRE C.J. and CONDOMINES M. (1976): Fine chronology of volcanic processes using ^{238}U - ^{230}Th systematics. Earth Planet. Science Lett. Vol. 28, p.395-406.

BENDER M. L., KU T. L. and BROECKER W. S. (1966): Manganese nodules: their evolution. Science Vol. 151, p.325-328.

BURNETT W. C. and MORGENSTEIN M. (1976): Growth rates of Pacific manganese nodules as deduced by uranium-series and hydration-rind dating techniques.

- Earth Planet. Science Lett. Vol. 33, p. 208-218.
- CONDOMINES M. and ALLEGRE C. J. (1980): Age and magmatic evolution of Stromboli volcano from 230 Th-238U disequilibrium data. *Nature* Vol. 288, p. 354-357.
- DOOLEY J. R. Jr., GRANGER H. C. and ROSHOLT J. N. (1966): Uranium-234 fractionation in the sandstone-type uranium deposits of the Ambrosia lake district, New Mexico. *Economic Geology* Vol. 61, p. 1362-1382.
- FLEISHER (1980): Isotopic disequilibrium of uranium: Alpha-recoil damage and preferential solution effects. *Science* Vol. 207, p. 979-981.
- GOLDBERG E. D. and KOIDE M. (1962): Geochronological studies of deep sea sediments by the ionium/thorium method. *Geochim. Cosmochim. Acta* Vol. 26, p. 417-450.
- GORBUSHINA L. V., TYMINSKII V. G. and SPIRIDONOV A. I. (1972): Formation mechanism of radiohydrogeological anomalies in seismically active areas and their significances in prognostication of earthquakes. *Sov. Geol.* Vol. 15, p. 153-156 (from C. A.)
- HUH C. A. and KU T. L. (1984): Radiochemical observations on manganese nodules from three sedimentary environments in the north Pacific. *Geochim. Cosmochim. Acta* Vol. 48, p. 951-963.
- HUSSAIN N. and KRISHNASWAMI S. (1980): U-238 series radioactive disequilibrium in groundwaters: implications to the origin of excess U-234 and fate of reactive pollutants. *Geochim. Cosmochim. Acta* Vol. 44, p. 1287-1291.
- KIGOSHI K. (1971): Alpha-recoil thorium-234: Dissolution into water and the uranium-234/uranium-238 disequilibrium in nature. *Science* Vol. 173, p. 47-48.
- KRESS A.G. and VECH H. H. (1980) Geochemistry and radiometric ages of phosphatic nodules from the continental margin of northern New South Wales, Australia. *Marine Geol.* Vol. 36, p. 143-157.
- KRISHNASWAMI S. and COCHRAN J. K. (1978): Uranium and thorium series nuclides in oriented ferromanganese nodules: Growth rates, turnover times and nuclide behavior. *Earth Planet. Science Lett.* Vol. 40, p. 45-62.
- KRISHNASWAMI S., TUREKIAN K. K. and BENNETT J. T. (1984): The behavior of ^{232}Th and the ^{238}U decay chain nuclides during magma formation and volcanism. *Geochim. Cosmochim. Acta.* Vol. 48, p. 505-511.
- KU T. L. and BROECKER W. S. (1967): Uranium, thorium, and protoactinium in a manganese nodule. *Earth Planet. Science Lett.* Vol. 2, p. 317-320.
- KU T. L. and BROECKER W. S. (1969): Radiochemical studies on manganese nodules of deep-sea origin. *Deep-Sea Research* Vol. 16, p. 625-637.
- KU T. L. and GLASBY G. P. (1972): Radiometric evidence for the rapid growth rate of shallow-water, continental margin manganese nodules. *Geochim. Cosmochim. Acta* Vol. 36, p. 699-703.
- LIVELY R.S., HARMON R. S., LEVINSON A. A. and BLAND C. J. (1979): Disequilibrium in the 238-uranium series in samples from Yeelirrie, western Australia. *J. Geochem. Explor.* Vol. 12, p. 57-65.
- 満田伯・田中邦也・木越邦彦・長沢宏 (1983): 武蔵野台地の地下水中の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比. *地球化学* Vol. 17, p. 103-108.
- 西村進・浅山哲二・初田甚一郎 (1969): 火山岩中のU系列元素について(1). *地球化学* Vol. 2, p. 21-22.
- OMURA A. (1976): Thorium and protoactinium isotopes in some present-day hermatypic corals and their implications to dating. *Trans. Proc. Palaeont. Soc. Japan* Vol. 101, p. 271-290.
- OMURA A. (1983): Uranium-series ages of some solitary corals from the Riukiu limestone on the kikajima, Ryukyu islands. *Trans. Proc. Palaeont. Soc. Japan* Vol. 130, p. 117-122.
- 大村明雄・大村一夫・桜本勇治・辻喜弘 (1984): 南関東上部更新統産サンゴの $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 年代. *第四紀研究* Vol. 23, p. 31-35.
- OSMOND J. K., COWART J. B. and IVANOVICH M. (1983): Uranium isotopic disequilibrium in ground water as an indicator of anomalies. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* Vol. 34, p. 283-308.
- RAMA P. S. and MOORE W. S. (1984): Spacial variation of U-Th series radionuclides and trace metals in deep-sea manganese encrustations. *Earth Planet. Science Lett.* Vol. 67, p. 319-326.
- 阪上正信 (1967): ウランおよびアクチノウラン系列放射性同位体非平衡による年代測定法. *第四紀研究* Vol. 6, p. 121-133.
- SAKANOUÉ M., YONEDA S., ONISHI K., KOYAMA K., KOMURA K. and NAKANISHI T. (1968): Alpha radioactive nuclides of uranium, protoactinium and thorium in uranium deposits. *Geochemical Journal* Vol. 2, p. 71-86.
- SAMAYA JULU B. L. K., TATSUMOTO M., ROSHOLT J. N. and KNIGHT R. J. (1966): Disequilibrium of the 238-U series in basalt. *Earth Planet. Science Lett.* Vol. 1, p. 387-391.
- 佐藤和郎・佐藤純・荒牧重雄 (1978): 有珠火山噴出物の Th 系列/U 系列放射能比と K 濃度. *火山* Vol. 23, p. 263-265.
- SNELLING A. A. and DICKSON B. L. (1979): Uranium/daughter disequilibrium in the Koongarra uranium deposit, Australia. *Mineral. Deposita* Vol. 14, p. 109-118.
- 梅本春次 (1966): ウラン同位体の地球化学. *化学の領域* Vol. 20, p. 9-18.