

(1) 古代エジプト遺物中微量元素の中性子放射化法による分析

東海大学工学部
大阪大学大学院工学研究科
近畿大学原子力研究所

吉田茂生
村田 勲
堀口哲男

1. はじめに

可塑性に富んだ石英微粒砂に少量のアルカリ溶剤(釉)を加えて、焼結させたガラス質は『ファイアンス』と呼ばれ、古代エジプトの遺物として、多地域にて多数出土されている。これらはシリカ(石英: SiO_2)を多く含んだ石、もしくは砂を主原料として、少量の石灰(酸化カルシウム: CaO)とアルカリ塩(酸化ナトリウム: Na_2O 、もしくは酸化カリウム: K_2O)を融材として混合したもので、これに様々な天然化合物を混入させて加工されている。青色着色のためには銅鉱石(CuO)やコバルト(CuO)、黄色着色のためには鉛(Pb)やアンチモン(Sb)、また、赤色発色のための酸化鉄(Fe_2O_3)や赤銅鉱(Cu_2O)などが用いられている。

このような古代ガラスや釉(ゆい)等の遺物研究において、これまでは試料の一部を粉末状または溶液化等の前処理を要する化学的手法が用いられてきたが、素材を損傷させず非破壊によって、分析素材中の主要な構成元素並びに微量元素の分析を行う科学的研究が今日不可欠となってきた。その一つとしての中性子放射化分析法による非破壊多元素同時分析は非常に有効な手法として考えられている。特に近大炉のように中性子フラックス($< 10^8 \text{ n/cm}^2/\text{sec}$)が低い条件では、照射後の残留放射能が極微量となることから、考古学的試料等の非破壊分析には非常に有効と考えられる。しかし、反して放射化断面積の大きな特徴的な構成元素の存在が必要であり、さらに微量元素検出にあっては、より大きな断面積が必要となることは言うまでもない。

そこで本研究では、この近大炉の様な中性子フラックスの低い条件において、古代エジプトガラス質遺物(ファイアンス等)の主元素・微量元素等の構成元素を特定できる可能性について検討を行い、含有構成元素の分布状態から、時代性・地域性の考古学的特徴を示唆できる指標を見出すことを目的としている。本年度は昨年度に引き続き、ファイアンスの放射化分析を行い、これまでの主原料となっている砂をメインとした放射化分析の結果と比較し、素材(砂)と製品(ファイアンス)との相関関係から分析・検討し、特徴となる指標の抽出を行っていく。

2. 実験方法

今年度、放射化分析に用いた古代エジプト遺物のファイアンス画像を図1に示す。これらすべての試料は数 cm 四方×1cm厚以下に収まる大きさであり、重量も数～10数 g 程度のものである。これらの試料をポリエチレンシートで圧着密封し、照射サンプルとして原子炉の炉心位置に中央ストリンガー孔から挿入し、照射を行った。最大出力1 W にて1時間の照射後、約5分程度のクーリング(測定サンプルセットまでの時間間隔)

の後、近大原研の測定室に備えられた鉛遮蔽体付 HpGe 検出器を用いた測定時間 3600 秒での γ 線スペクトル分析を行い、核種の特定並びに γ 線強度 (カウント率 / 単位重量) の定量を行い、サンプルの特徴性について検討を行った。

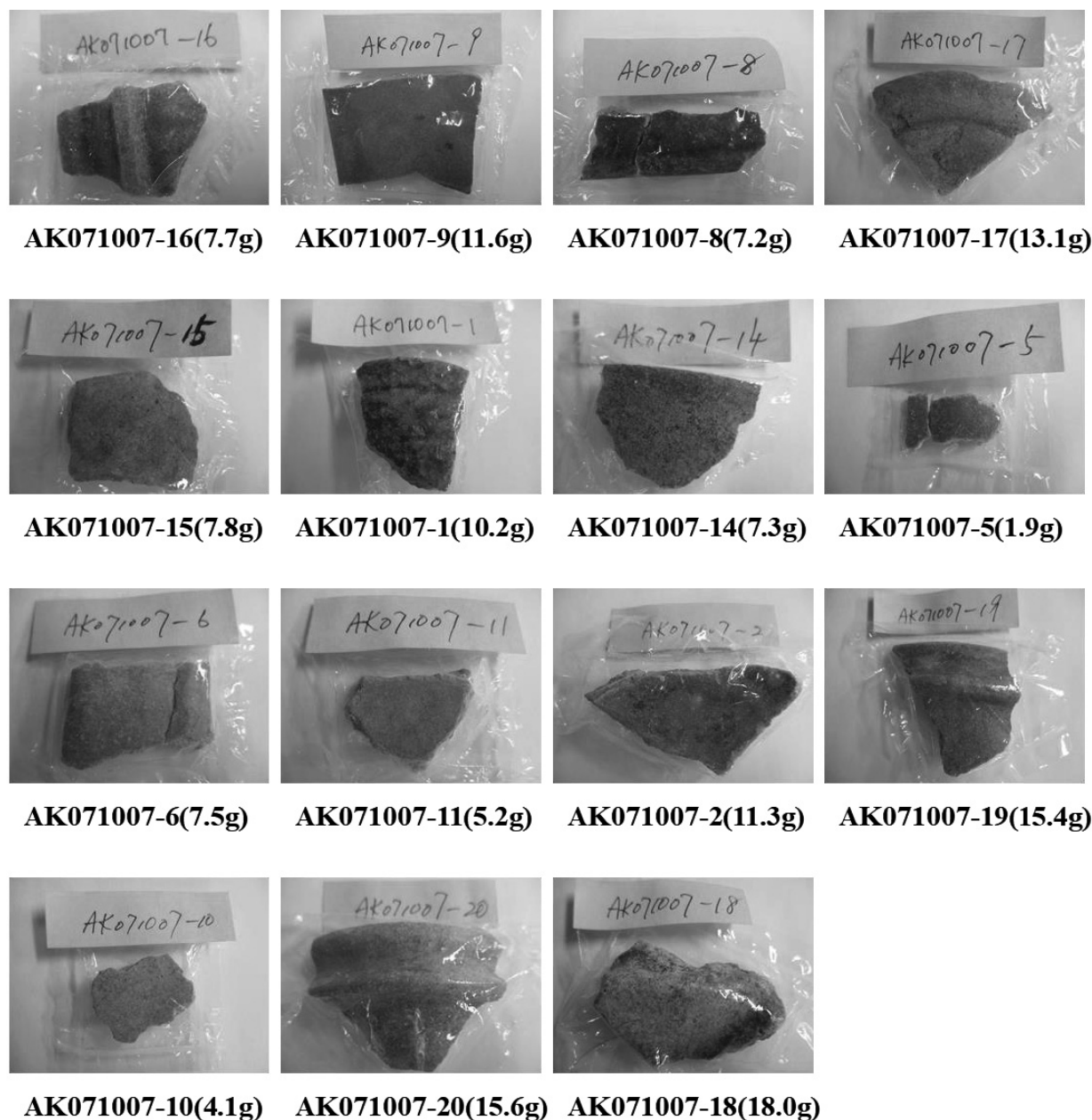


図1 照射分析用ファイアンス画像 (照射サンプル重量)

3. 分析結果及び検討

図2に熱中性子によって放射化されたファイアンスによる γ 線波高分布の代表例を示す。これらの波高分布中に検出された γ 線ピークは、原子炉内で発生した熱中性子との (n, γ) 反応によって生成された放射性核種によるものであり、これらの検出された核種の主ピーク及びそれらの分析情報を表1に示す。もちろん、図2の波高分布図

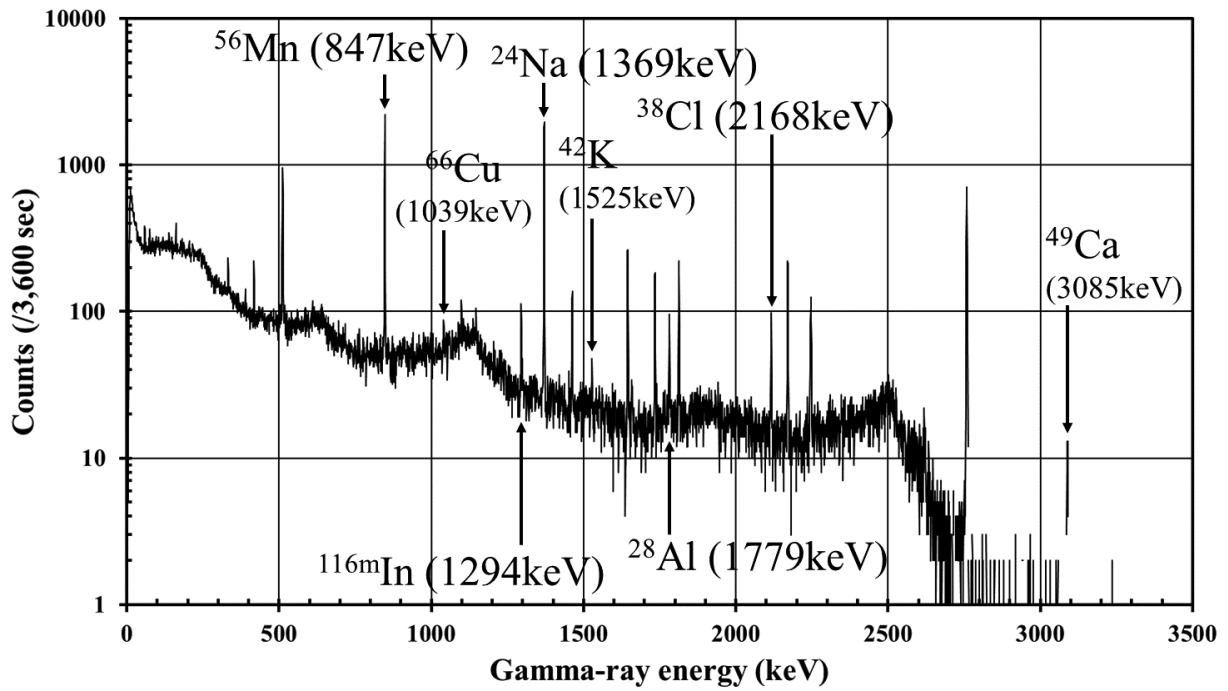


図2 熱中性子放射化ファイアンスの γ 線波高分布図

表1 検出 γ 線ピークに関する分析情報

核種	放出 γ 線エネルギー (keV)	放出割合 (%)	半減期	存在率 (%)	放射化断面積 (σ_{th} : barn)	核種	放出 γ 線エネルギー (keV)	放出割合 (%)	半減期	存在率 (%)	放射化断面積 (σ_{th} : barn)
In-116m	416.92	30	54.15 m	^{115}In (95.71)	201.2	Na-24	1368.6	100	14.9 h	^{23}Na (100)	0.5314
	1097.29	56.2					2753.99	99.9			
	1293.59	85.1				K-42	1524.58	18.7	12.36 h	^{41}K (6.7302)	1.459
Mn-56	846.81	98.9	2.5785 h	^{55}Mn (100)	13.28	Cl-38	1642.59	31	37.24 m	^{37}Cl (24.24)	0.4329
	1810.77	27.2					2167.68	42			
	2113.15	14.2				Al-28	1778.99	100	2.2406 m	^{27}Al (100)	0.2303
Cu-66	1039.35	7.4	5.1 m	^{65}Cu (30.85)	2.169	Ca-49	3084.54	92.1	8.716 m	^{48}Ca (0.187)	1.093

内には自然放射性核種 (^{40}K , ^{208}Tl) による γ 線ピークや分析対象となる全エネルギー吸収ピークの γ 線に伴ったシングル・ダブルエスケープ等の複数の γ 線ピークも検出されている。さらに、少数のファイアンスの波高分布図中には、アンチモン ^{122}Sb からの γ 線 (564keV) と推定されるピークも検出されている。今回の分析では、ほとんどの照射サンプルから検出された以下の γ 線ピークにて主たる分析を行った。

○分析指標主ピーク(すべての試料で検出)

^{56}Mn : 846.81keV (98.9%)

^{24}Na : 1368.6keV (100%)

^{28}Al : 1778.99keV (100%)

^{49}Ca : 3084.54keV (92.1%)

^{38}Cl : 2167.68keV (42.0%)

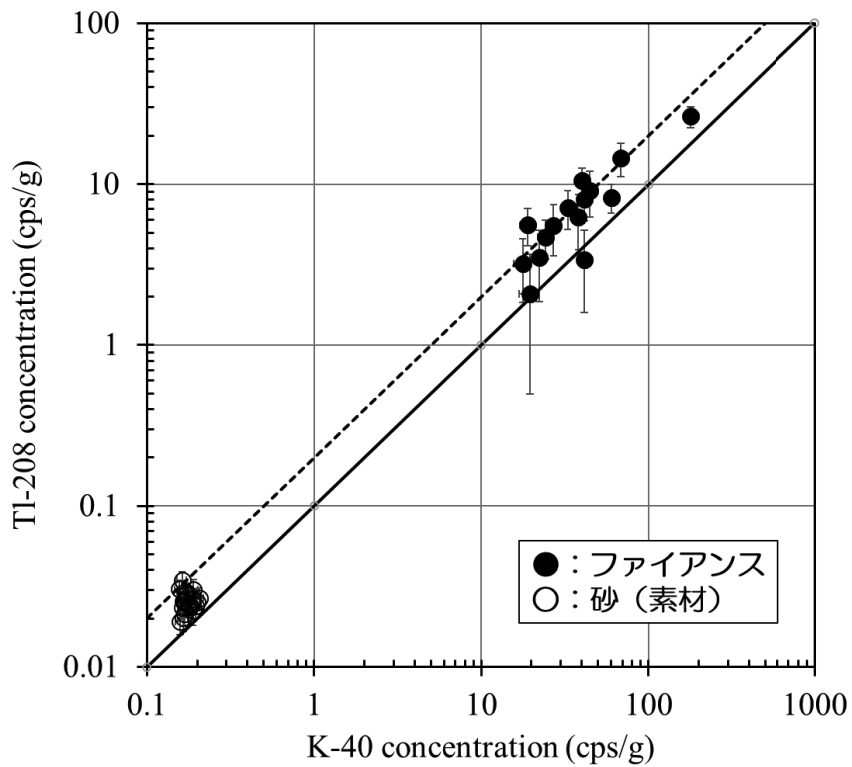
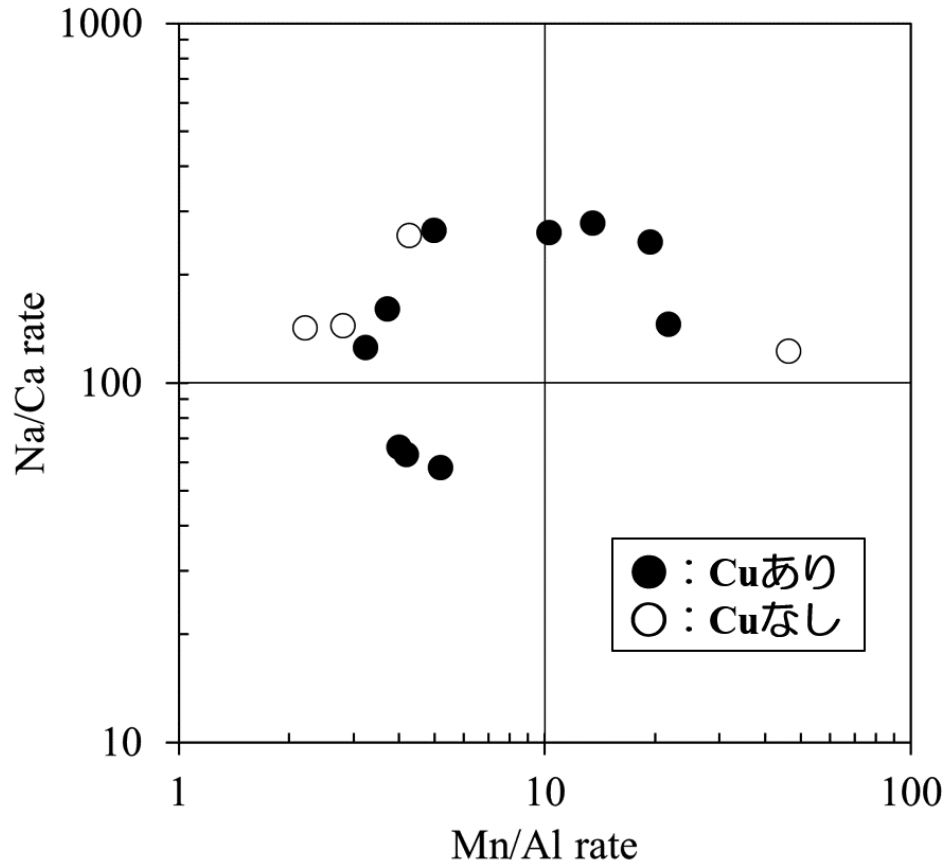


図3 検出 γ 線ピークによる核種存在分布相関図

図3の上図にあつては、3つの事象での分布が推定され、各グループとしての特徴性が予想される。なお、Cuの有無には相関性が無いものと見られる。また、自然放射性核種の存在については、その素材となる砂の分布についてはほぼ一様の関係であったが、製品となるファイアンスにあつては練り固め焼結させているため、その存在率はそれぞれに100倍となっているが、比例性が見られ、グループ化できる特徴性は無いものと考えている。さらには ^{38}Cl 、 ^{66}Cu 、 ^{122}Sb 、 $^{116\text{m}}\text{In}$ 等の特有的な検出ピークの含有率と主構成元素(Mn,Na,Al,Ca)含有率との相関性について検討し、これまでの全てのファイアンスの放射化分析の結果から、定性・定量的な分析を継続させ地域的、さらには時代的な特徴の存在を確認し、指標となるものを特定していく予定である。

謝辞 最後にあたり、今年度の実験にご指導・ご協力をいただきました近畿大学原子力研究所の堀口哲男先生、伊藤哲夫先生をはじめ、近大原研のスタッフの皆様に深く感謝いたします。