

# 放射性炭素年代測定のための 液体シンチレーション計測の改善II

木庭元晴・米田文孝・影山陽子・佐藤ふみ

## はじめに

本報告は、内容としては木庭ほか（2000）に続くもので、関西大学年代測定室報告としては「ベンゼン-液体シンチレーション法による放射性炭素年代測定法V」にあたるものである。放射性炭素年代測定法には、放射性炭素が放射性崩壊の際に放出する $\beta$ 線を検出するものと、放射性炭素を直接検出するものがある。前者の方法の主流はベンゼン-液体シンチレーション法であり、本報告ではこの方法の改善法を述べる。

年代測定に限らず液体シンチレーション計測では、シンチレーション現象の溶体量依存性ゆえに、標準試料溶液と試料溶液の容量は同一の必要があったが、Koba（2000）はその限界を超える方法を示した。その際にはシンチレータとして溶液（PP0+POPOPトルエン）を使用したのが、本報告では最も使用されているbutyl PBD粉末を使った手法について述べる。この成果は1999年にすでに得られたものであり、本測定室で常用しているものであるが、公表してこなかったため、新たに確認のための実験結果を加えて、ここに報告する。

液体シンチレーション法では試料からベンゼンを作成し、それにシンチレータを加えて液体シンチレーション計測を実施して後に、放射性炭素年代を算出する（網干ほか、2000）。試料ベンゼンを液体シンチレーション計測する際には、同時に1950年現在を代表する標準試料ベンゼンと放射性炭素を持たないバックグラウンドベンゼンを計測する必要がある。前者はIAEAから供給されており、NIST II（SRM 4990 C）と呼ばれるがほぼ3万円のシュウ酸（一瓶28g）からベンゼンは3mlほどしか取れない。本実験室では試料ベンゼンの液体シンチレーション計測のために、3mlテフロンバイアルを使って1回の計測で1.5mlのベンゼンを使用する。つまり、シュウ酸28gからせいぜい2回分しか確保できないのである。関西大学独自の標準試料（東南アジア産サトウキビ由来の砂糖を一括に炭化した粉末）もあるが、ベンゼン合成には他の試料同様、労力を要する。こういった労力を回避する方法をこの報告で提示する。

液体シンチレーション計測の後、放射性炭素年代を求める。そして、<http://www.calib.org>（©1986-2005: Minze Stuiver and Paula Reimer）で提供されているプログラムCalibを使って、先に得た放射性炭素年代から較正年代を求めることになる。木庭ほか（2003）にはv.4の使用法などを示すが現在v.5になっており、この報告の機会を利用して補遺を末尾に示すこととした。

本報告はもともと2007年度に実施した成果で2008年1月に脱稿したものである。その後、関西大学ならびに大阪文化遺産学術センター（2009）に掲載されたが報告書の性質上、この研究にかかわった院

生を共著者とすることができないので、関西大学博物館のご好意によりここに再掲するものである。ただし、同報告書では元原稿の構成が崩れている部分があり修正している。

## 1. butyl PBDを使った液体シンチレーション計測の改善

この成果は2001年実施したものである。これ以降、当教室の年代測定値はこの成果に基づいている。

### 1.1 バックグラウンドベンゼンの容量と線量率の関係

個々の試料ベンゼンについて、同容量のバックグラウンドベンゼンが必要になる。当然バックグラウンドベンゼンについても butyl PBDが必要になる。図1はこのバックグラウンドベンゼンの容量と線量率の関係を示したものである。容量が大きいくほど、線量率も標準偏差も高くなっている。なお、ここでは、butyl PBDはベンゼン 1 ml に対して15mgを使用している。

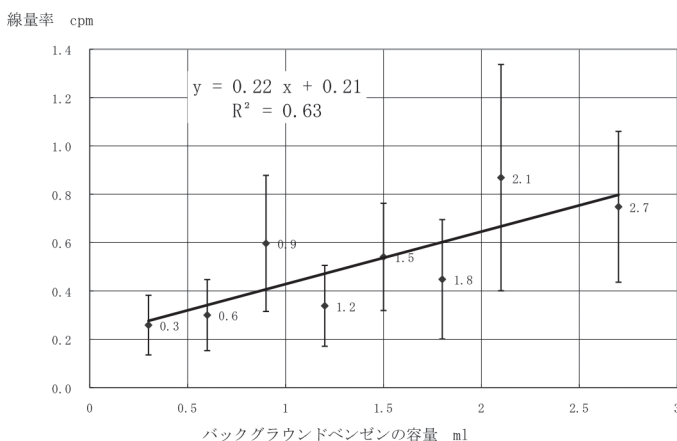


図1 バックグラウンドベンゼンの容量と線量率の関係

### 1.2 ストックベンゼンの異なる容量での線量率の一定性

はじめに述べたように、液体シンチレーション計測では容量依存性があるため、計測値の評価のためには同容量で比較しなければならないとされてきた。ここでは、Koba (2000) で示したことが粉末のシンチレータでも適用できることを示す。図2に実験結果を示している。

図2は、3 ml 銅テフロンバイアルに、0.3~2.7mlの範囲で0.3ml刻みの容量の試料ベンゼンのネット線量率を示したものである。それぞれの線量率はグラム当たり平均27.6 cpmとなっている。この図に見られる回帰直線は、次の点を指示している。

- (1) butyl PBD (濃度15mg / ml after Polach) の計量に多少の変動はあっても、線量率は影響されない。
- (2) ストックベンゼンのグラム重と線量率cpmは比例する。

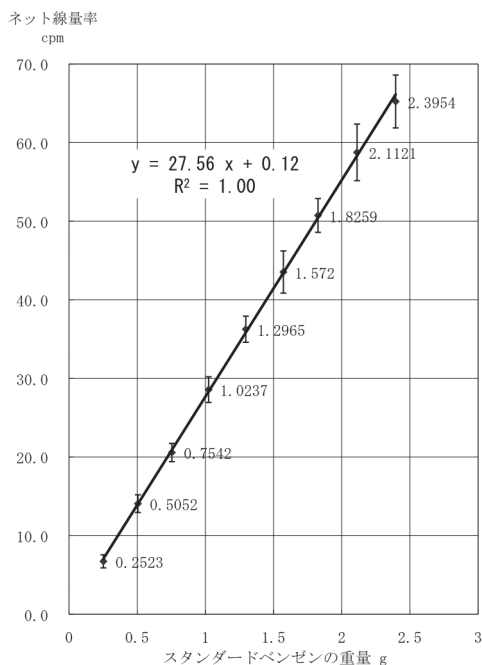


図2 ストックベンゼンの異なる容量での線量率の一定性

(3) この条件では、溶液量が異なっても、バックグラウンドさえ計測しておけば、同じ測定系列で計測しても問題がない。

### 1.3 butyl PBDの試料ベンゼン含有率と線量率の関係

butyl PBDのベンゼン含有率、言い換えると、試料ベンゼンに投下するbutyl PBDの量はおそらくPolach *et al.* (1983) の示した15mg/mlが多く年代測定室で採用されていることであろう。使用した銅テフロンバイアルの容量は3mlで、この中に0.9mlのストックベンゼンを投入し、さらにこのベンゼンに図3中のラベルで示した重量 (mg) のbutyl PBD粉末を追加した。図3で、13.3と示したものは0.9mlベンゼン中のbutyl PBDの重量であるから、13.3/0.9から、14.8mg/mlで、およそPolach *et al.* の推奨値にあたる。この付近の線量率は不安定に見える。17.1~20.6の間、つまり、19.0~22.9mg/mlがより安定のように見える。

そこで、図3で変動が少ないと考えた範囲周辺についてかなり高濃度の<sup>14</sup>Cストックベンゼンを使って再実験を実施した。その結果を図4に示す。ここで使用したベンゼン容量はいずれも1mlである。どうもbutyl PBD 18mgが大きな値を示す。図3の13.3mgを示した溶液のバイアルと図4の18.0mgが示した溶液のバイアルが同じものなので、おそらくこのバイアルの蓋に問題があるようである。それゆえ、17~20mg/mlの範囲で線量率が高く、安定していると考えられる。なお、図4のb-PBD量が17mg/mlと18mg/mlのカウントcpm/g差は変動比であらわすと15/670=0.022であるから、極めて僅かな変動である。

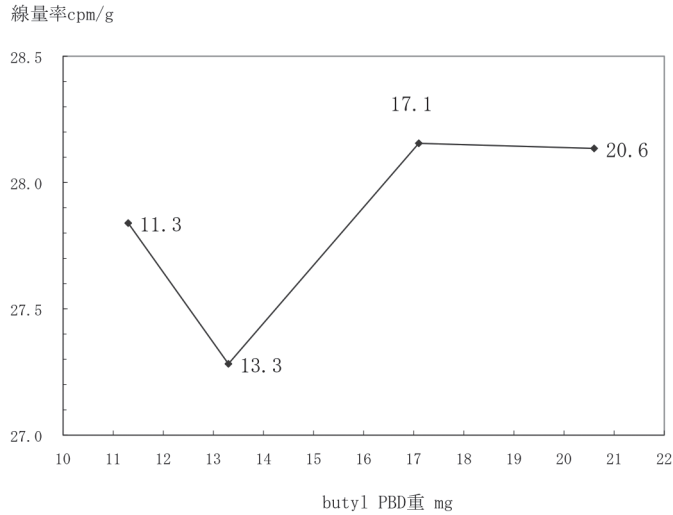


図3 butyl PBDのベンゼン含有率と線量率の関係

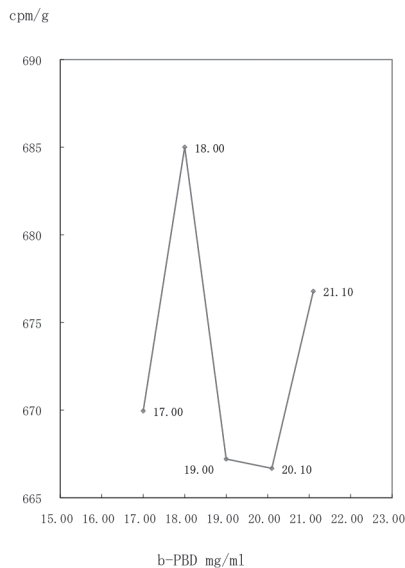


図4 butyl PBDのベンゼン含有率と線量率の関係2

#### 1.4 バックグラウンドベンゼン希釈法の信頼性

希釈法の信頼性を確認するには、ベンゼン容量が一定で異なる放射性炭素重量が入っている複数のバイアルを作成し、放射性炭素重量とネット線量が比例することを確認できればよい。この実験には4バイアルを使用した。ストックベンゼン0.25ml+バックグラウンドベンゼン0.75ml、ストックベンゼン0.50ml+バックグラウンドベンゼン0.50ml、ストックベンゼン0.75ml+バックグラウンドベンゼン0.25ml、そしてバックグラウンドベンゼン1.00mlである。いずれのバイアル

にも butyl PBD 粉末は19mgを投入している。

図5に希釈法評価の結果を示す。横軸はストックベンゼンのグラム重である。縦軸は1グラム当たりのネットカウント値である。直線回帰の決定係数は1.0を示している。つまり、希釈法は信頼性に足ると言える。データは3点に過ぎないが既存の考えを確認したまでである。

二酸化炭素ガスまたはベンゼンで希釈した場合（それぞれの希釈ファクター dilution factor を、D1、D2とする）に、その希釈率の積  $D1 \times D2$  でネット試料線量 cpm を割る必要がある。当実験室にはフラスコの気圧計はないのでガス段階の希釈は実施できない。また ANU (Gupta and Polach, 1977) ではベンゼン段階での希釈はクエンチング quenching が生じるので避けるべきとする。上記の結果はバックグラウンドを計測すればベンゼン段階での希釈に問題はないことを示している。ただ、できるだけ希釈はしない。これまでの計測で希釈を実施したのは数例に限られる。

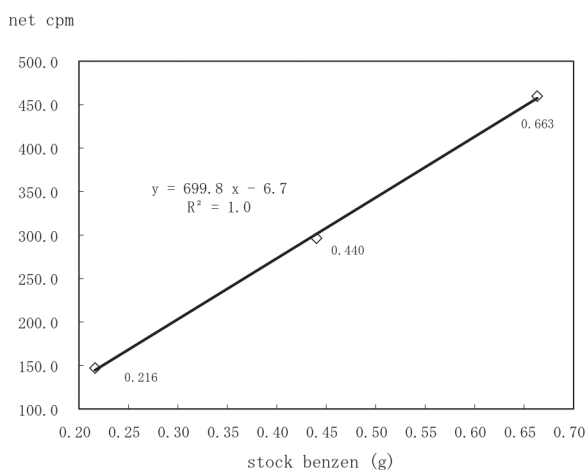


図5 バックグラウンドベンゼンの希釈の信頼性

### 1.5 付録：butyl PBDを使った液体シンチレーション計測の手順

- (1) butyl PBDは、ベンゼン 1 ml に対して  $19 \pm 2$  mg を使用する。
- (2) ベンゼン量は1.0mlを基本とする。一部の試料について溶液量が足りない場合、同じ容量のバックグラウンド試料を用意すること。
- (3) 液シン試料のバイアルへのセット要領
  1. 試料ベンゼンを冷凍庫から出して、自然融解を待つ。なお、試料ベンゼンとバックグラウンド試料、NIST IIベンゼンを揃える。後述のようにWallacスタンダード法を使用する場合は、NIST IIベンゼンは不要だが、バックグラウンド試料は必ず必要とする。
  2. 注射器とマイクロピペット一式を出す。
  3. バイアル下部を中央実験台に順番に揃える。
  4. 一枚の薬包紙を電子天秤にセットしてゼロクリア。
  5. butyl PBD粉末をその薬包紙に載せて計量。ベンゼン 1 ml に対しておよそ19mgの粉末を計量し、それぞれのバイアルに入れる。次にその薬包紙を計量してその値を差し引くこと

で入れた粉末重を計測することができる。ただし、経験値としてはほぼ全部の粉末をバイアルに入れることが可能である。

6. 次に、butyl PBDが入ったバイアル下部を電子天秤にセットしてゼロクリアする。そしてピペットで原則的には1 mlの試料ベンゼンを滴下して計量する。その後、すぐに上蓋を締めて、軽く水平方向に丸く振盪する。
- (4) 封入が終わったら再度すべてを軽く振盪し、200g用の天秤でバイアル全量を秤量する。
- (5) さらに振盪し、上蓋が適度に締まっていることを確認してトレイにセットする。1番目は通常バックグラウンドで、次はNIST、以下各試料ベンゼンとする。すべての試料ベンゼンの最後に、Wallac製スタンダードとバックグラウンドを同時にセットし計測すること。すべて、計測時間は20分×50サイクル（1000分計測）である。ただし、50年程度の誤差に抑える必要がある試料は50分×60サイクル（3000分計測）とする。

## 2. WallacスタンダードのNIST II代用

NIST IIの代用として、Wallacスタンダードとバックグラウンドを使うことが可能であることがわかった。このことで従来試料ベンゼンを計測する際に同時に毎回必要があったNISTベンゼン測定の実験の必要性が無くなった。この根拠を次に示す。なお、Wallacが極低レベル液体シンチレーション計測装置Quantulus 1220とともに提供する前述のスタンダードとバックグラウンドは、装置のメンテナンスに利用するためのものであって、本報告で示した目的に使用するものではないこととお断りしておく。

同量がガラスバイアルに入ったWallac製放射性炭素スタンダードとバックグラウンドを本実験室ではほぼ定期的に計測している。これによると放射性炭素の残存核種数値dpmと液体シンチレーションネット計測値cpmを比較すると95%の測定効率で検出されてきた。なお、残存核種数は $N=99100 \cdot (1/2)^{(t/5730)}$  で計算している。ここで、99100は<sup>14</sup>Cスタンダードの初期核種数、5730は<sup>14</sup>C半減期（年）、tは経過時間（年）である。

たとえば2007年9月7日から2008年1月30日までの9回1000分計測（20分×50回）結果は平均94432.6cpm、標準偏差44.8である。NIST IIの場合、ネット計測値は $12.52 \pm 0.75$  cpm/gで、標準偏差/平均は、 $0.75 / 12.52 = 0.056$ になるのに対して、Wallacスタンダードの場合、4ヶ月余りの間のネット計測値は前述のように $94432.6 \pm 44.8$ で、標準偏差/平均は $44.8 / 94432.6 = 0.00047$ と極めて低い。図6上部の直線は上述の計算式から求めたもので、同図下部の複数のドットは2007年9月7日から2008年1月30日までの9回1000分計測（20分×50回）結果をプロットしたものである。

放射性炭素年代はNIST IIと無煙炭などのバックグラウンド試料から得られたベンゼンの重量、使用したシンチレータ重量などの計測環境の上で決定できる。ここで問題にするのはNIST IIの毎分計測値cpmである。試料ベンゼンの液体シンチレーション計測を実施する際に、NIST IIを使わずにWallac製のスタンダードとそのバックグラウンドを計測することでNIST IIの使用頻度を大幅に小さくすることができる。Wallacスタンダードの代用で、NIST IIの平均値を維持しながら、変動幅は $\pm 0.006$ とすることができる。見かけ上、NIST精度は約125倍向上することになる。

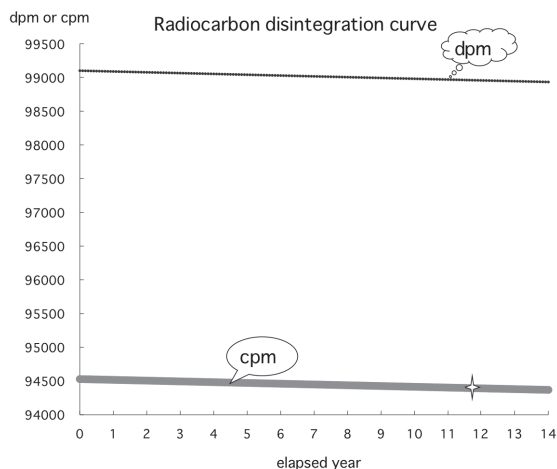


図6 Wallacスタンダードの壊変（上の直線）と液体シンチレーション計測値（下の直線 星印は2007. 9. 7～2008. 1. 30間の測定値）

### 3. 補遺1：Calib 5の使用法

2008年1月現在、放射性炭素年代から較正年代を得るプログラムは、M. Stuiver, P. J. Reimer, and R. Reimer によって管理されている Calib Rev. 5.0である。プログラムファイルのダウンロードの方法から使用法までを次に示す。

#### 3.1 Calib Rev.5.0関連ファイルのダウンロード

<http://calib.qub.ac.uk/>の2番目のCALIB Radiocarbon Calibrationからマニュアルやアプリケーション本体Calib501をダウンロードする。マニュアルからもダウンロードのリンクがあり、必要に応じて実施すればいい。

#### 3.2 スプレッドシートに一括入力して較正年代値を得る手順

木庭ほか（2003）の末尾にCalib Rev. 4.3の使い方を示しているが、これとはかなりの違いがある。ほぼ類推可能であるので、詳細は示さないが、「放射性炭素年代測定法IV」の「2.3 スプレッドシート（csv形式）から較正年代を求める一全過程」の部分に当たるところを主に書き換える。入力用ファイルは、次のサイトからダウンロード可能である。

<http://www.calib.qub.ac.uk/crev50/manual/d13ccorr.xls>

##### 3.2.1 Calib Manual – Chapter 1 抜粋

Calibは、試料の真の年代 true age の確率分布を計算して、放射性炭素年代 yr BP から較正年代 Cal yr を得るためのものである。較正に使ったCalibのデータセット名は明記する必要がある。

データセットには、IntCal04、Marine04、SHCal04（以上は2004年の国際学会）、UWSY98（Stuiver



et al., 1998のもの(350 14C BPに限定して)がある。

#### A. データセットの選択

IntCal04 : 北半球の non-marine 試料に適用。

SHCal04 : 南半球の non-marine 試料に適用。11,000 yr BP まで。

Marine04 : 海洋全体の軟体動物、サンゴ、魚などの海洋試料について適用可。リザーバー効果  $\Delta R$  の適用は、この較正年代値を得てから (Dで議論)。

他 : 陸源と海洋の混合起源のものについては、Eで示す。Post-AD1950の試料の較正年代については、<http://www.calib.org> で取得可能。

#### BとC. 系統的なズレの補正

理想的には較正年代を求める前に、測定機関の系統的なズレの補正を実施すべきである。当然ながら、このプログラムには、その補正分を入力することができる。補正が必要無い場合、わからない場合は、上に示した表の該当部分 Lab Error or added variance に 1 (既定値) を入力する。

#### D. 海洋試料に対するリザーバー効果の適用

海洋ではほぼ400年だが、海域による違いは、<http://www.calib.qub.ac.uk/marine> に掲載されている。このサイトで経緯度を入力すれば求まる。ユーザーは放射性炭素年代 yr BP からこの値を単に引き算すればいい。しかし、一括処理の場合は上の表の Delta R years の列に入力すればいい。

#### E. 海洋性炭素含有比率 Marine Carbon percentage

例えば人間が海洋性のものと陸源性のものをどれぐらいの比率で食べているかによってきまる。同位体比によるものが最も適切か。例えば、Ambrose, S. H. and Norr, L. (1993) に示されている。

#### I. 試料カレンダー

較正年代が20~30年以上にわたる試料 (例えば木片試料で100年分の年輪に相当する試料) の場合、移動平均を採用した方がいい。上の表で Age Span の列に入力する。

#### J. 同位体分別の $\delta^{13}\text{C}$ 補正

放射性炭素年代は-25‰ PDB or VPDB に標準化することで同位体補正される。CALIBはこの同位体補正をサポートしない。前もって補正しておく必要がある。それゆえ、一括処理の場合も、上表の次の列はゼロにする。つまり、Uncorrected 14C date, Uncorrected 14C SD years,  $\delta^{13}\text{C}$  per mil,  $\delta^{13}\text{C}$  SD years, の列について。

較正年代 Cal age は、50年前より古い試料では、10年で丸める。たとえば 5125 cal year ならば、5130 cal year にする。

### 3.2.2 Calib Manual – Chapter 2 Chapter 3 抜粋



アプリケーションCalib501を立ち上げて、メインメニューHelpにイントロダクションがあるがこの章の内容と類似する。一括処理に限定して述べる。Calib501を立ち上げると個別入力とソフトのバージョン表示の画面になる。個別入力ウィンドもソフトのバージョン表示の画面も開いたままにしておく。個別入力画面ではLabcode001, samplecode001のカードが表示されているがこれは削除できない。一括入力の場合でもこのカードは必ず表示される。たとえば9試料の場合、10カードで構成されることになる。

まずは、オプションを前もって設定する。

Options/Calibration

Precision：1SD, 2SDの両方を選ぶことができるので、そのままにしておく。

Output：Cal BPの方を選ぶ。

Treatment of Lab Errors：as a multifierを選ぶ。

Sample Identification：sample codeを選ぶ。

Options/Plot Type：Single Probability Normalized to Unit Heightを選ぶ。

### 3.2.3 ルーティン計算手順

1. さて、File / Openで適当なc14inp.csvを読み込む。カードにすべて読み込まれていることがわかる。
2. Calibrate / Goを実施。計算結果が一括してCalib Rev 5.0.1のウィンドウに表示される。ファイルとしては、calout.csvに記録されている。Precisionを1SDと2SD選んでおくと両方の計算結果が示される。つまり、各試料について2行を使用する。
3. View / Plotを実施。Calib Plotウィンドウに表示される。

このウィンドウの左下のsample Numberを選ぶことができる。この選んだ試料について表示された確率分布がアプリケーションCalib501と一緒に入っているcalib.epsに保存される。このウィンドウで別のサンプルを選んで確率分布を表示するとこれがcalib.epsに保存される。それゆえ、一つを表示するたびに、File / Saveで個別のグラフを特定のフォルダに保存してゆく必要がある。

## 4. 補遺2：市販放射性炭素濃縮液から作成したスタンダードの信頼性への疑問

WallacスタンダードのNIST II代用で述べたように、試料ベンゼンを液体シンチレーション計測する際にNIST IIベンゼンを用意するのは大変面倒なことである。そこで、多くの実験室でPackard製<sup>14</sup>C standardなどからNIST IIに近い濃度のベンゼンを作成してNIST IIの代用にされてきた。この方法を詳細に説明した報告はないが、Mestres *et al.* (1991) の記述から推定できるので、本実験室で1999年に数回にわたり実験を試みた。その時の記録を簡潔にここに示す。先に結論を言うと、この手法の信頼性は極めて低かった。

現在、本実験室が採用している測定法とは異なるが、考え方に変化はない。この結果は、前述のWallacスタンダード法の適切性を支持している。

## 4.1 NIST IIベンゼンの線量効率

当実験室で作成されるベンゼンはガスクロマトグラフィーによる分析結果 (Koba, 2000) から、年代測定用としては100%と考えて良い。銅テフロンバイアルにNIST II粉末から合成したベンゼン0.7115g  $C_6H_6$ を入れ、当時はトルエンベースのPPO+POPOPシンチレータを追加して液体シンチレーション計測を実施し、 $12.086 \pm 0.353$  cpm値が得られた。

NIST IIとここで使用した大理石バックグラウンドのベンゼン溶液の容量を一致させるのは液体シンチレーション計測で必要なことである。放射性炭素が入っていない大理石試料から作ったベンゼンであっても、シンチレータ溶液を入れると何らかのクエンチング現象がある。それゆえ、NIST IIの測定値12.086 cpmからバックグラウンド値0.3976を差し引く必要がある。この差11.688 cpmがNIST IIの測定値といえる。

ベンゼン中に炭素は $72/78 \times 100 = 92.31$  %含まれる。つまり、NIST IIベンゼン中の炭素量は、 $0.7115 \times 92.31 / 100 = 0.6568$  gCとなる。それゆえ、1gC当たりの線量率は、 $11.688 / 0.6568 = 17.795$  cpm/gCとなる。このNIST IIは、1999年には18.305 cpm/gCの濃度を持つので、線量効率は、 $(17.795 \text{ cpm/gC}) / (18.305 \text{ cpm/gC}) \times 100 = 97.2$  %と極めて高い値になる。先ほどの過程で作成した希釈液の濃度値とNIST II値を比較することになる。

## 4.2 結果

1999年5月13日作製の第二希釈溶液は4874.7 dpm / gであった。数ヶ月間は冷凍保管して使用時に解凍・冷凍を繰り返して適切な濃度を示していたと思われるが、使用后1週間ほど常温で放置したら、3834.3 dpm / gに減少した。原因はわかっていないが、この激変を受け入れることはできない。

当時の数ヶ月間、SQP(E)値でNIST IIと第二希釈溶液のクエンチングもモニターしてきたが、いずれもほぼ908を示してきたので、線量効率はほぼ一致していたと思われる。詳細の数値は省略する。なお、これまでこの方法で年代値を計算したことはない。この手法が使えるかどうか調査したに過ぎない。

## 4.3 付録 希釈法の考え方と手順

### 4.3.1 考え方

Packard製 $^{14}C$  standardの濃度は $5.01 \times 10^5$  dpm / g (Jul. 24, '98、ここでdpmは1分間あたりの壊変数)である。この原液から希釈液Cを作る際の計算は、溶媒solventに何を使っても、核種の重量gを溶液総量gで割ればよい。

すなわち、

$$(\text{原液使用重量 } g \times 5.01 \times 10^5 \text{ dpm / g}) / (\text{溶液総重量 } g) = c \text{ dpm / g}$$

次に、この希釈液を使って作製した溶液Dの濃度d dpmを考える。上式同様、希釈液Cの濃度dpm / gにこの使用重量gを掛ける。つまり、

$$c \text{ dpm / g} \times \text{使用重量 } g = d \text{ dpm}$$

が得られる。液シンの測定結果e cpmから測定効率efficiencyを評価する場合は、バイアルに含ま

れる濃度値 d dpm から、

$$(e \text{ cpm}) / (d \text{ dpm}) \times 100 = e / d \text{ cpm} / \text{dpm} (\%)$$

と考えて良い。なお、ここでは Jul. 24, '98 から May 13, '99 年までのおよそ 1 年間の自然壊変を考慮していない。

#### 4.3.2 手順

原液をほぼ 100 倍に希釈して使用する。容器は、バックグラウンドベンゼン inactive benzene で洗淨済みの 20ml glass vial を 2 個 (A, B) 使用のこと。まずは実験室のエアコン、換気扇を停止する。

##### I. A 液の作成

- 20ml glass vial A を計量し、これを風袋とする。これ以降、ゼロクリアはしない。
- 3 ml 注射器で 6 回、infinity pure benzene を計 18.00ml 計量し、vial に追加する。→最終的な重量 (a1 gram) を記録する。→<sup>14</sup>C スタンダード原液を入れる直前に再度、秤量値を見る (a1' gram)。
- 引き続き、<sup>14</sup>C スタンダード原液から、マイクロピペットを使って 2.00ml を計量 (a2 gram)。→すぐに、蓋をして、ゆっくりとミックスする。

##### II. B 液の作成

表 1 <sup>14</sup>C スタンダード原液から希釈溶液を作成する過程の記録例

A 液の作成、作成日 13. May. 99				
	容量 ml		秤量値の読み	備考
infinity pure benzene	1 ml × 18 回	a1	15.2666	18ml 滴下直後
		a1'	15.2620	std C14 滴下直前
std C14 原液	1 ml × 2 回	a2	16.9206	
	総重量	T-A	16.9206	g
	infinity pure benzene 重量	IPB-A	15.2620	g
	std C14 原液重量	STD-A	1.6586	g
(STD-A g * 5.01 * 10 <sup>5</sup> dpm / g) / T-A g				
49109.3 dpm / g				
B 液の作成、作成日 13. May. 99				
	容量 ml		秤量値の読み	備考
infinity pure benzene	3 ml × 6 回	b1	15.4494	18ml 滴下直後
		b1'	15.4446	C14-A 滴下直前
C14-A 溶液	1 ml × 2 回	b2	17.1466	
	総重量	T-B	17.1466	g
	infinity pure benzene 重量	IPB-B	15.4446	g
	C14-A 溶液重量	STD-B	1.7020	g
(STD-B g * C14-A 溶液濃度 dpm / g) / T-B g				
4874.7 dpm / g				

4. 次に、20 ml glass vial B を計量し、これを風袋とする。これ以降、ゼロクリアしない。
5. 3 ml注射器で6回、infinity pure benzeneを計18.00ml計量し、vialに追加する。→最終的な重量 (b1 gram) を記録する。→<sup>14</sup>C-A液を入れる直前に再度、秤量値を見る (b1' gram)。
6. 引き続き、<sup>14</sup>C-A液から、マイクロピペットを使って2.00mlを計量 (b2 gram)。→すぐに、蓋をして、ゆっくりとミックスする。

当日、使用しない場合には、マイナス18℃で冷凍庫に保管する。なお、この過程を記録する表1を次に示す。この表で上段はA液、下段はB液用で、それぞれ10倍に薄めてあわせて100倍希釈になる。20倍ごと薄めて400倍にする場合は、バックグラウンドベンゼン19mlとスタンダード1 mlにすることもできる。上段、下段いずれも同様の構造になっていて、たとえば、a1、a1'、a2はそれぞれバックグラウンドベンゼン18ml滴下、stdC14滴下前の液重の再読、stdC14滴下直後の読み値を入力することになる。液の追加過程で空のバイアル重計測後以外はゼロクリアしない。

## 謝辞

本研究をご支援いただいた関西大学文学部の高橋隆博氏に感謝する。なお、本研究には、なにわ・大阪文化遺産学研究センターの設備および研究費および科学研究費基盤研究(B)「南海地域における琉球の歴史地理学的実体に関する総合研究」(代表 高橋誠一)の研究費を使用している。記して感謝する。

## 引用文献

- 網干善教・木庭元晴・米田文孝編, 2000. 畿内およびその周辺の考古遺物・遺跡の空間的・時系列的データベース作成—考古編年による放射性炭素年代軸の確立—. 平成8年度~11年度科学研究費補助金(基盤研究(A)-(2))研究成果報告書, 83p.
- 木庭元晴・網干善教・米田文孝, 2000. 関西大学年代測定室のベンゼン—液体シンチレーション法による放射性炭素年代測定法Ⅲ: 液体シンチレーション計測の実際. 関西大学文学論集, Vol. 50, No. 2, pp. 97-127.
- 木庭元晴・網干善教・米田文孝, 2003. 関西大学年代測定室のベンゼン—液体シンチレーション法による放射性炭素年代測定法Ⅳ: 放射性炭素年代の計算過程とその較正年代への変換. 関西大学考古学研究室開設五〇周年記念 考古学論叢, pp.1303-1329.
- 関西大学なにわ・大阪文化遺産学研究センター, 2009. 考古遺跡の分析学的研究 —14C年代測定、粒度分析、堆積物X線像、安定同位体比—. なにわ・大阪文化遺産学叢書12, pp. 43-99.
- Ambrose, S. H. and L. Norr, 1993. Experimental evidence for the relationship of the carbon isotope ratios of whole diet and dietary protein to those of bone collagen and carbonate. In Prehistoric Human Bone Archaeology at the Molecular Level (J. B. Lambert and G. Grupe, eds.) Springer-Verlag, Berlin, pp. 1-37.
- Gupta, S. K. and H. A. Polach, 1985. Radiocarbon Dating Practices at ANU. Handbook of Radiocarbon Laboratory, Research School of Pacific Studies, ANU, Canberra, 173p.
- Koba, M., 2000. Improved results using higher ratios of scintillator solution to benzene in liquid scintillation

spectrometry. *Radiocarbon*, Vol. 42, No. 2, pp. 295-303.

Polach, H., J. Gower, H. Kojola, and A. Heinonen, 1983. An ideal vial and cocktail for low-level scintillation counting. In: *Advances in Scintillation Counting*, eds S.A. McQuarrie, C. Ediss, L. I. Wiebe, University of Alberta Press, pp. 508-525.

Mestres, J. S., J. F. Garcia, and G. Rauret, 1991. The radiocarbon laboratory at the University of Barcelona. *Radiocarbon*, Vol. 33, No. 1, pp. 23-34.

Stuiver, M. and P. Reim, 1986-2005 ©. <http://www.calib.org>