JAEA-Conf
2008-003

JAEA-Conf

第1回JAEAタンデトロンAMS利用報告会論文集

2007年11月14日　青森県むつ市

Proceedings of the First JAEA Tandetron AMS Utilization Workshop
November 14, 2007, Mutsu-shi, Japan

（編）天野 光　甲 昭二

(Eds.) Hikaru AMANO and Shoji KABUTO

青森研究開発センター
むつ事務所

Mutsu Office
Aomori Research and Development Center

April 2008

Japan Atomic Energy Agency　日本原子力研究開発機構

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ（http://www.jaea.go.jp）
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構　研究技術情報部　研究技術情報課
〒319-1195　茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2008

JAEA-Conf 2008-003

第 1 回 JAEA タンデトロン AMS 利用報告会論文集
2007 年 11 月 14 日　青森県むつ市

日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　むつ事務所
(編)　天野　光、甲　昭二※

(2008 年 2 月 25 日受理)

加速器質量分析装置（AMS）は、極微量の長半減期放射性核種等を高感度・高精度に測定できる装置である。1997 年に旧日本原子力研究所むつ事業所に導入・設置されたタンデトロン AMS は、放射性炭素（^{14}C）及び放射性ヨウ素（^{129}I）測定用に整備され、日本海を中心とした海洋調査研究等にその威力を発揮してきた。2006 年度から共用施設となったタンデトロン AMS は、現在では原子力機構内外の多岐に亙る研究に利用されている。

AMS 利用者相互の情報交換を図り、本施設の管理者と利用者との間の風通しを良くし、タンデトロン AMS の運転を円滑に行い最先端の研究に役立てるため、定期的に利用報告会を開催することとし、2007 年 11 月にタンデトロン AMS が設置されている青森県むつ市において第 1 回利用報告会を開催した。利用報告会では AMS 施設利用の現状、データ処理方法、放射性炭素（^{14}C）及び放射性ヨウ素（^{129}I）を用いた応用研究等について、21 件の講演と活発な質疑応答が行われた。会議参加者は内外合わせて 76 名であった。

本稿は、本報告会で発表された講演の論文集である。

青森研究開発センターむつ事務所（大湊施設）：〒035-0064 青森県むつ市港町 4-24
※技術開発協力員

JAEA-Conf 2008-003

Proceedings of the First JAEA Tandetron AMS Utilization Workshop November 14, 2007, Mutsu-shi Japan

(Eds.) Hikaru AMANO and Shoji KABUTO※

Mutsu Office
Aomori Research and Development Center
Japan Atomic Energy Agency
Minato-machi, Mutsu-shi, Aomori-ken

(Received February 25, 2008)

Accelerator Mass Spectrometer (AMS) can determine ultra low level long-lived radioactive isotopes in high sensitivity and precision. Tandetron AMS, originally introduced at Mutsu Establishment, the former Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI), had been adjusted for the measurement of ^{14}C and ^{129}I. The AMS has mainly been used for marine research around the Japan Sea. This AMS has adopted the open door policy for the general users from the spring of 2006. Recently varieties of research activities using this AMS have been in progress by many users.

This workshop aimed to not only exchange information on the AMS and its utilization but also continue stable operation of the AMS. First JAEA-AMS-MUTSU Utilization Workshop was held at Mutsu office, JAEA in November 14, 2007. In the workshop 76 participants attended. The topics of the conference concerned recent utilization status of AMS, data processing from the AMS, ^{14}C measurement and its application, ^{129}I measurement and its application, and so on. This proceeding includes 21 papers at the workshop.

Keywords: Workshop, AMS, ^{14}C, ^{129}I, R&D, Utilization

※Collaborating Engineer

目　次

1. AMS 利用の現状

1.1　AMS（加速器質量分析）とその応用 …… 1
松崎浩之（東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻）
1.2　むつタンデトロン AMS 利用の現状 …… 9
天野　光、甲　昭二、木下尚喜
（日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　むつ事務所　AMS 管理課）
1.3　むつタンデトロン AMS 運転の現状 …… 13
甲　昭二、木下尚喜、天野光
（日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　むつ事務所　AMS 管理課）
渡部幸也、馬場正美（日本海洋科学振興財団　むつ海洋研究所　分析部）
1.4　JAEA ペレトロン年代測定装置の現状と研究活用の例 …… 17
石丸恒存、齋藤龍郎、鈴木元孝
（日本原子力研究開発機構　地層処分研究開発部門　自然事象研究グループ）
西澤章光（株式会社ペスコ）
1.5　むつ AMS における C-14 データ処理と質評価について …… 21
乙坂重嘉、天野　光、甲　昭二、木下尚喜
（日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　むつ事務所　AMS 管理課）
田中孝幸（日本原子力研究開発機構　原子力基礎工学研究部門　環境動態研究グループ）

2. AMS による ^{129}I 測定とその応用

2.1　JAEA AMS Mutsu による ^{129}I 測定及びヨウ素循環研究への応用 …… 24
鈴木崇史、甲　昭二、木下尚喜、天野　光
（日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　むつ事務所　AMS 管理課）
外川織彦（日本原子力研究開発機構　原子力基礎工学研究部門　環境動態研究グループ）
2.2　人為起源 ^{129}I の発生源と存在状態 …… 28
島　茂樹、賀佐信一、河村日佐男（日本海洋科学振興財団　むつ海洋研究所）
天野　光（日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　むつ事務所　AMS 管理課）
長尾誠也（北海道大学大学院）
山本政儀（金沢大学自然計測応用研究センター）
百島則幸（九州大学アイソトープ総合センター）
古川雅英（琉球大学理学部）
木村秀樹（青森県原子力センター）
2.3　AMS を用いた土壌中 ^{129}I 濃度分析法に関する検討 …… 32
國分祐司、中野政尚、武石　稔
（日本原子力研究開発機構　東海研究開発センター　核燃料サイクル工学研究所

放射線管理部　環境監視課）
2.4　地下水のヨウ素同位体比分析のためのヨウ素抽出法の検討 …… 36
窪田卓見、中野（太田）朋子、馬原保典（京都大学原子炉実験所）
天野　光、鈴木崇史（日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　AMS 管理課）

3. AMS による ^{14}C 測定とその応用

3.1　下北半島における完新世の海水準微変動
－主に田名部平野の縄文海進と自然環境－ …… 40
奈良正義（下北自然史研究会）
3.2　日本海洋科学振興財団における JAEA むつタンデトロンによる AMS 利用経過
について …… 44
河村日佐男、賀佐信一、小藤久毅、秋濱奈都子（日本海洋科学振興財団　むつ海洋研究所）
3.3　日本産樹木年輪試料の ^{14}C 測定 …… 48
尾嵜大真、坂本　稔、今村峯雄（国立歴史民俗博物館）
光谷拓実（奈良文化財研究所）
3.4　6000 年前の古木の ^{14}C 濃度と宇宙線強度変動 …… 51
佐藤太一、櫻井敬久、門叶冬樹、高橋　唯、鈴木佳代、郡司修一（山形大学理学部）
立石雅昭、中田　誠（新潟大学中越沖地震調査団）
松崎浩之、土屋（春原）陽子（東京大学大学院工学系研究科）
3.5　青森県の現生・化石植物中の ^{14}C 分析より何が期待できそうか？ …… 55
堀内一穂（弘前大学　大学院理工学研究科　地球環境学専攻）
3.6　液体シンチレーション法と加速器質量分析法との比較） …… 59
山田芳宗、安池賀英子（北陸大学　薬学部附属 RI 施設）
天野　光（日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　AMS 管理課）
3.7　日本海における水塊構造と海水循環の解明 …… 63
乙坂重嘉、田中孝幸、外川織彦
（日本原子力研究開発機構　原子力基礎工学研究部門　環境動態研究グループ）
天野　光（日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　AMS 管理課）
荒巻能史（国立環境研究所　化学環境研究領域）
3.8　日本海および青森周辺海域における粒子状有機物の循環過程 …… 67
乙坂重嘉、田中孝幸、外川織彦
（日本原子力研究開発機構　原子力基礎工学研究部門　環境動態研究グループ）
天野　光（日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　AMS 管理課）
3.9　溶存態有機物中放射性炭素測定システムの開発と海水中溶存有機炭素の循環に
関する研究 …… 71
田中孝幸、乙坂重嘉、外川織彦
（日本原子力研究開発機構　原子力基礎工学研究部門　環境動態研究グループ）
天野　光（日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　AMS 管理課）

3.10 ^{14}C をトレーサーとして利用した森林中炭素挙動研究 …… 75
安藤麻里子、小嵐　淳
（日本原子力研究開発機構　原子力基礎工学研究部門　環境動態研究グループ）
石塚成宏（森林総合研究所　立地環境研究領域　土壌資源研究室）
齋藤武史、平井敬三（森林総合研究所　東北支所）
3.11 北大構内半原生林中の土壌ガス CO_2 とその炭素同位体分析 …… 79
藤吉亮子、原木之英、住吉　孝（北海道大学大学院工学研究科量子理工学専攻）
天野　光（日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　AMS 管理課）
3.12 AMS を用いた空気及び河川水中無機態 C-14 簡易分析 …… 84
天野　光（日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　むつ事務所　AMS 管理課）
山道美和子、馬場正美（日本海洋科学振興財団　むつ海洋研究所）
百島則幸、杉原真司（九州大学アイソトープ総合センター）
上田祐介、中村康弘（熊本大学理学部）

付録 1　「第 1 回 JAEA タンデトロン AMS 利用報告会」参加者名簿 …… 88

付録 2　「第 1 回 JAEA タンデトロン AMS 利用報告会」開催風景 …… 89

Contents

1. Status of Recent Utilization of AMS

1.1 Accelerator Mass Spectrometry – principle, facilities, applications …… 1
H. Matsuzaki(MALT(Micro Analysis Laboratory, Tandem accelerator), Department of Nuclear Engineering and Management, The School of Engineering, The University of Tokyo

1.2 Status of Recent Utilization of JAEA AMS MUTSU …… 9
H. Amano, S. Kabuto, N. Kinoshita
(AMS Management Section, Mutsu Office, Aomori Research and Development Center Japan Atomic Energy Agency)

1.3 Operational Status of the JAEA-Mutsu Tandetron AMS …… 13
S. Kabuto, N. Kinoshita, H. Amano
(AMS Management Section, Mutsu Establishment, Japan Atomic Energy Agency)
Y. Watanabe, M. Baba (Mutsu Marine Laboratory, Japan Marine Science Foundation)

1.4 The current condition and utilization of JAEA-AMS-TONO …… 17
T. Ishimaru, T. Saito, M. Suzuki
(Neotectonics Reserch Group, Geological Isolation Research and Development Directorate, Japan Atomic Energy Agency)
A. Nishizawa (PESCO Co. Ltd.)

1.5 Quality policy on radiocarbon measurement at the JAEA-Mutsu AMS …… 21
S. Otosaka, H. Amano, S. Kabuto, N. Kinoshita
(AMS Management Section, Japan Atomic Energy Agency)
T. Tanaka (Research Group for Environmental Science, Japan Atomic Energy Agency)

2. ^{129}I measurement by AMS and its applications

2.1 Measurement of ^{129}I by JAEA AMS MUTSU and application to study of iodine migration. …… 24
T. Suzuki, S. Kabuto, N. Kinoshita, H. Amano
(AMS Management Section, Japan Atomic Energy Agency)
O. Togawa (Research Group for Environmental Science, Japan Atomic Energy Agency)

2.2 Origin and Chemical Speciation of Anthropogenic Iodine-129 …… 28
S. Shima, S. Gasa, H. Kawamura (Japan Marine Science Foundation)
H. Amano (Japan Atomic Energy Agency)
S. Nagao (Hokkaido University)
M. Yamamoto (Kanazawa University)
N. Momoshima (Kyushu University)
M. Furukawa (University of Ryukyus)

H. Kimura (Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center)
2.3 A study on analysis of ^{129}I concentration in soil by AMS ····· 32
Y. Kokubun, M. Nakano, M. Takeishi
(Environmental Protection Section, Radiation Protection Department, Japan Atomic Energy Agency)
2.4 Investigation on extraction methods of environmental iodine ····· 36
T. Kubota, T. Nakano-Ohta, Y. Mahara (Research Reactor Institute, Kyoto University)
H. Amano, T. Suzuki (AMS Management Section, Japan Atomic Energy Agency)

3. ^{14}C measurement by AMS and its applications

3.1 Sea level change in the Holocene epoch at the Shimokita Peninsula
- Jomon transgression and accompanying nature change at the Tanabu plains - ····· 40
M. Nara (Shimokita National History Study Society)
3.2 Use of JAEA Mutsu AMS facility at Japan Marine Science Foundation - a history and current situation ····· 44
H. Kawamura, S. Gasa, H. Kofuji, N. Akihama
(Mutsu Marine Laboratory, Japan Marine Science Foundation)
3.3 Radiocarbon measurements of tree-ring samples from Japanese woods ····· 48
H. Ozaki, M. Sakamoto, M. Imamura
(National Museum of Japanese History, The National Institutes for Humanities)
T. Mitsutani (National Research Institute for Cultural Properties, Nara)
3.4 ^{14}C concentrations in the old woods at 6000yrBP and the variations of cosmic rays ····· 51
T. Sato, H. Sakurai, H. Tokanai, Y. Takahasi, S. Kayo, S. Gunji
(Dept. of Physics, Yamagata University)
T. Tateisi, M. Nakata
(Nigata University The Niigataken Chuetsu-oki Earthquake in 2007 research group)
H. Matsuzaki, Y. Tsuchiya-Sunohara
(Micro Analysis Lab.Tandem accelerayor, The University of Tokyo)
3.5 What can we expect from ^{14}C analysis of recent and fossil plants from the Aomori prefecture? ····· 55
K. Horiuchi
(Department of Earth and Environmental Sciences, Faculty of Science and Technology, Hirosaki University)
3.6 Comparison of Liquid Scintillation Counting Measurement with Accelerator Mass Spectrometric Measurement ····· 59
Y. Yamada, K. Yasuike (Faculty of Pharmaceutical Sciences, Hokuriku University)
H. Amano (AMS Management Section, Japan Atomic Energy Agency)
3.7 Seawater movement in the Japan Sea inferred from ^{14}C measurement in seawater ····· 63

S. Otosaka, T. Tanaka, O. Togawa
(Research Group for Environmental Science, Japan Atomic Energy Agency)
H. Amano (AMS Management Section, Japan Atomic Energy Agency)
T. Aramaki (National Institute for Environmental Studies)
3.8 Biogeochemical cycle of particulate organic carbon in the Japan Sea and northwestern North Pacific. …… 67
S. Otosaka, T. Tanaka, O. Togawa
(Research Group for Environmental Science, Japan Atomic Energy Agency)
H. Amano (AMS Management Section, Japan Atomic Energy Agency)
3.9 Development of analysis system of dissolved organic radiocarbon and study on its circulation in sea water …… 71
T. Tanaka , S. Otosaka, O. Togawa
(Research Group for Environmental Science, Japan Atomic Energy Agency)
H. Amano (AMS Management Section, Japan Atomic Energy Agency)
3.10 Evaluation of carbon cycle in forest by using radiocarbon as a tracer …… 75
M. Atarashi-Andoh, J. Koarashi
(Research Group for Environmental Science, Japan Atomic Energy Agency)
S. Ishizuka
(Department of Forest Site Environment, Forestry and Forest Products Research Institute)
T. Saito, K. Hirai (Tohoku Research Center, Forestry and Forest Products Research Institute)
3.11 Soil gas CO_2 and its carbon isotope analyses in the semi-natural woods on the campus of Hokkaido University 79
R. Fujiyoshi, Y. Haraki, T. Sumiyoshi
(Graduate School of Engineering, Hokkaido University)
H. Amano (Aomori Research and Development Center, Japan Atomic Energy Agency)
3.12 Analysis Methods of Inorganic C-14 in Air and River Water using an AMS …… 84
H. Amano (Japan Atomic Energy Agency)
M. Yamamichi, M. Baba (Japan Marine Science Foundation)
N. Momoshima, S. Sugihara (Kyusyu University)
Y. Ueda, Y. Nakamura (Kumamoto University)

Appendix 1 「Participant list」 …… 88

Appendix 2 「Photos from the conference」 …… 89

1. AMS 利用の現状

1.1 AMS（加速器質量分析）とその応用

松崎　浩之

東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻

1.　AMS（加速器質量分析）とは

1.1. 加速することの利点

AMS（Accelerator Mass Spectrometry：加速器質量分析）は、質量分析に加速器を組み込んだものである（図 1)。被分析試料（通常ターゲットと呼んでいる）をイオン化し、核子あたり MeV 程度のエネルギーにまで加速し、質量分析を行う[1)]。

質量分析は、静電偏向器（静電場）や分析電磁石（磁場）を組み合わせ、電荷あたりの質量数の違いによって分析する。したがって、質量分析の手法だけでは、同重体イオンや同重分子イオンを分離することは困難である。しかし、イオンを加速し、核子あたり MeV 程度のエネルギーを与えると、物質との相互作用の情報を引き出すことができる。核子あたり MeV 程度のエネルギーを持ったイオンをガスなどの媒体に導くと、媒体を電離し、自らはエネルギーを失っていく（Energy loss：エネルギー損失)。このエネルギーの失い方は、イオンを構成する核子の Z（原子番号、すなわち陽子の数）に依存する。そこで、何らかの方法でその情報を集める、すなわち、電離された電子を計測し、比較することによって同重体を分離することができる。また、イオンがガスや薄膜と衝突することによって、分子イオンを壊すことができるため、その後に質量分析を行えば容易に分離される。

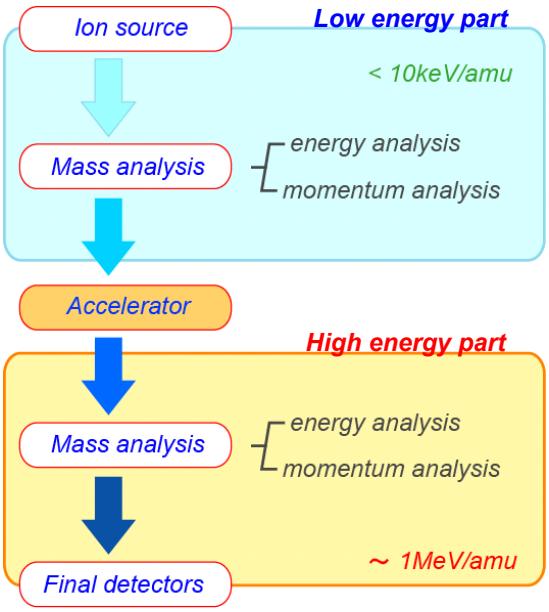


図 1. AMS（加速器質量分析）の基本構成

AMS の測定対象となる同位体としては、^{14}C（半減期 5,730 年））のほか、^{10}Be（半減期 1.36x10^{6} 年[2)]）、^{26}Al（半減期 7.1x10^{5} 年）、^{36}Cl（半減期 3.01x10^{5} 年）、^{129}I（半減期 1.57x10^{7} 年）などがある。それぞれの検出について以下に見ていこう。

1.2. ^{14}C の検出

^{14}C -AMS の場合、妨害成分として、同重体 ^{14}N（窒素-14）や同重分子 $^{12}CH_2$ や ^{13}CH が考えられる。しかし、今日、多くの AMS システムは、負イオン源とタンデム加速器を組み合わせて構成されており、電子親和力の違いから、負イオン源では窒素はイオン化されな

い。すなわち、この時点で同重体による妨害は除去されている。一方、同重分子 $^{12}CH_2$ や ^{13}CH は、タンデム加速器の荷電変換部で壊される。したがって、負イオン源とタンデム加速器の組み合わせは、^{14}C-AMS で特に有利な特徴をそなえているといえる。^{14}C-AMS においては、分子イオンの分解が重要であるため、タンデム加速器のターミナル電圧は実はそれほど高くなくても良いことが最近分かってきており [3]、500kV のコンパクトな AMS システムも普及している。

1.3. ^{10}Be・^{26}Al・^{36}Cl・^{129}I の検出

^{10}Be-AMS の場合、同重体 ^{10}B の妨害が深刻である。通常は、最終検出器により、媒体中のエネルギー損失の違いで分離するほか無い。^{10}B を十分分離して、バックグラウンドを下げるには、タンデム加速器のターミナル電圧として 5MV 程度必要である。ただし、最近、ターゲットのコンパウンドを工夫することによって、ホウ素含有量を小さくして、低いターミナル電圧でも ^{10}Be-AMS が可能である、という報告もある [4]。

^{26}Al は同重体 ^{26}Mg の電子親和力が負であるため、イオン源でイオン化されない。そこで、検出器部分では重大な妨害要員はない。3MV 程度のタンデム加速器でも十分検出可能である。

^{36}Cl-AMS の場合、同重体 ^{36}S の妨害が極めて深刻である。原子番号 Z の相対的な差が ^{10}Be-AMS の場合よりさらに小さいため、通常のガスカウンター（ガス・イオン化チェンバー）で検出するためには、タンデム加速器には、10MV 程度の大きなターミナル電圧が要求される。ターミナル電圧 5MV 程度の加速器で ^{36}Cl-AMS を行うためには、ガス充填型電磁石など、特殊な分析器を用いるか、またターゲット中の ^{36}S を押さえるため、ターゲット作成にコストをかけなければならない [5), 6)]。

^{129}I-AMS の場合、質量数は大きいが、重大な妨害同重体は存在しないため、比較的低いターミナル電圧でも検出可能である。もっとも大きな妨害要員は、同位体 ^{127}I となる。^{129}I の検出には、TOF（飛行時間差測定法）を用いる場合と、ガスカウンターを用いる場合がある。ただし、質量/電荷比の近い分子イオンの分解生成イオンに注意する必要がある [7)]。

1.4. 同位体比の測定

AMS は通常の質量分析同様、被分析ターゲット中の核種の絶対値を求めるものではなく、着目している核種と安定同位体との同位対比を求めるものであり、高精度な測定のためには、安定同位体の測定技術も極めて重要であることを付け加えておく [1)]。

2. 世界の AMS 施設

さて、世界の AMS 施設に目を向けてみよう。AMS は始めは原子核物理学の実験に使われていた静電加速器を利用して開始されたが、その後、比較的小型の AMS 専用機が現れている。特にその利用（需要）の大きさから、^{14}C-AMS 専用機は世界中に普及している。以下に、おおざっぱなターミナル電圧と AMS としての使われ方を分類し、概観してみたいと思う。

2.1. ^{14}C-AMS 専用機

^{14}C-AMS の需要は極めて大きく、また、精度に対する要求も高い。現在は、現代炭素のサンプルで±40 年以下（測定精度 0.5%）で測定できる施設は、高精度 AMS 施設としてみてよいだろう。そのような施設は、ターミナル電圧 3MV 以下の小型タンデム加速器を ^{14}C-AMS 専用機として使用しているケースが多い。代表的な施設としては、イギリスの Oxford 大[8]、オランダの Groningen 大[9]、ドイツの Kiel 大[10]、アメリカの Arizona 大[11]、同じくアメリカの NOSAMS（National Ocean Sciences Accelerator Mass Spectrometry：アメリカ国立海洋科学研究所）[12]、日本では名古屋大学[13]の加速器が実績がある。なぜターミナル電圧 3MV のタンデム加速器が普及したかについては、炭素イオンの性質と関係がある。タンデム加速器はターミナル部（もっとも電圧の高い部分）で負イオンから正イオンへの荷電変換を行う。その際、炭素イオンの電荷数は 1+ ～ 6+までのさまざまな（整数）値をとりえるが、その電荷分布（Charge distribution）は、荷電変換部を通過する際のエネルギー、すなわちターミナル電圧に依存する（図 2）。3+が最大となるエネルギーは、約 2.6MeV である。測定効率を考えると、電荷分布最大のところで AMS を行うのが望ましい。そのため、3MV 程度の加速器が普及したといえる。最近では、加速電圧をさらに下げ、システム全体をコンパクト化する傾向にある。1MV や 500keV のコンパクト AMS 装置がさかんに稼動し始めているが、それは、電荷分布で 2+が最大のところ、または 1+が最大のところをねらっているのである。500keV のタンデム加速器で、^{14}C-AMS に関しては、0.25%の精度と 70,000 年のバックグラウンドを実現しているという[14]。また、精度を要求しない目的（薬学トレーサー実験など）のために、200keV のシングルエンド加速器を用いたシステムも実用化されている。一方、高い測定効率（High throughput）が求められるのも現代の AMS のトレンドである。多くの施設がイオン源を改良し、高効率イオン化・高効率測定を目指している[15]。

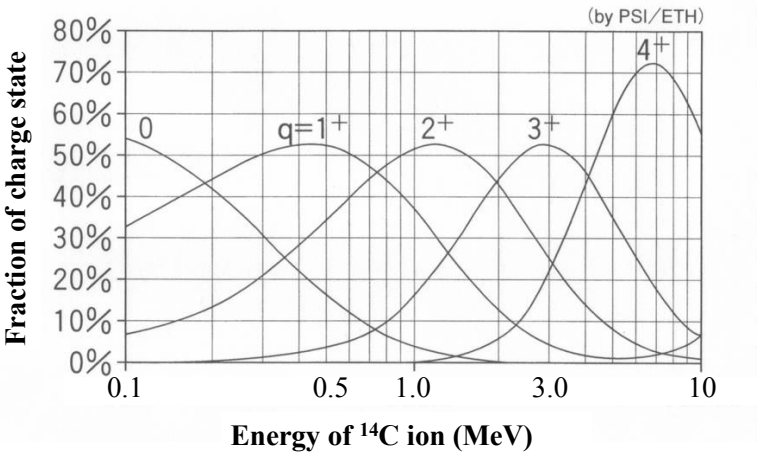


図 2. 14C イオンの荷電変換後の電荷分布のエネルギー依存性

2.2. AMS 汎用機

他方、^{14}C 以外の核種の AMS は、発生電圧が 5MV 程度あるいはそれ以上の加速器で行われていることが多い。そのような施設の中で実績のある施設は、アメリカの LLNL-CAMS（Lawrence Livermore National Laboratory, Center of AMS, 10MV）[16]、同じくアメリカ PRIME-Lab（Purdue University, 8MV）[17]、オーストラリア ANSTO-ANTARES（Australian Nuclear Science and Technology Organization, Australia- Australian

National Tandem Accelerator for Applied Research, 9MV）[18]、スイス ETH-PSI（6MV）[19]、わが国では MALT（Micro Analysis Laboratory, Tandem accelerator, The University of Tokyo, Japan; 5MV）[20]や筑波大学研究基盤センターの加速器（12MV）[21]などが挙げられる。また最近では、スコットランドの SUERC（Scotissh Universities Environmental research Centre, 5MV）[6]が顕著なパフォーマンスを示している。

また、3MV の発生電圧で ^{14}C 以外の核種の AMS を手がけている施設もある。代表的な施設にウィーン大学 VERA（Vienna Environmental Research Accelerator）[22]、フランス Gif-sur-Yvette[23]、アリゾナ大学 AMS Laboratory 2 号機 [24]、日本原子力研究開発機構青森研究開発センターのタンデトロン [25]などがあるが、一般にイオンのエネルギーが小さくなると、同重体の分離が悪くなるため、^{14}C 以外の核種の AMS では、バックグラウンドの面で不利な面もある。

3. AMS の応用

3.1. 宇宙線生成核種

AMS の測定対象となる同位体として挙げた、^{14}C、^{10}Be、^{26}Al、^{36}Cl、^{129}I などの核種のもっとも重要な起源は、宇宙線（特に、太陽系外より飛来する高エネルギーの銀河宇宙線）と地球上の物質との相互作用に求めることができる。そこで、これらの核種をしばしば宇宙線生成核種（CRNs ＝ Cosmogenic Radio Nuclides）と呼んでいる。

3.1.1. メテオリック宇宙線生成核種

大気中で生成する宇宙線生成核種は大気循環に乗り、全地球的に広がり、降雨などで地上へ降ってくる。このような宇宙線生成核種を特に、メテオリック宇宙線生成核種（Meteoric CRNs）と呼ぶことがある。年代測定に利用する ^{14}C も Meteoric CRNs の一つである。大気中で生成された ^{14}C は、CO_2 の形で拡散するが、生成と放射壊変がつりあい、全地球的に均一な $^{14}C/^{12}C$ を保っている。その同位体比は、光合成や呼吸、食物連鎖等を通じ、生命圏でも保たれている。いわば炭素のやり取りに関して、大気圏と生物圏は開放系をなしている（図 3）。生物個体の死などで外界との炭素のやり取りがなくなり、閉鎖系ができると、^{14}C のみが崩壊し、その生物個体中

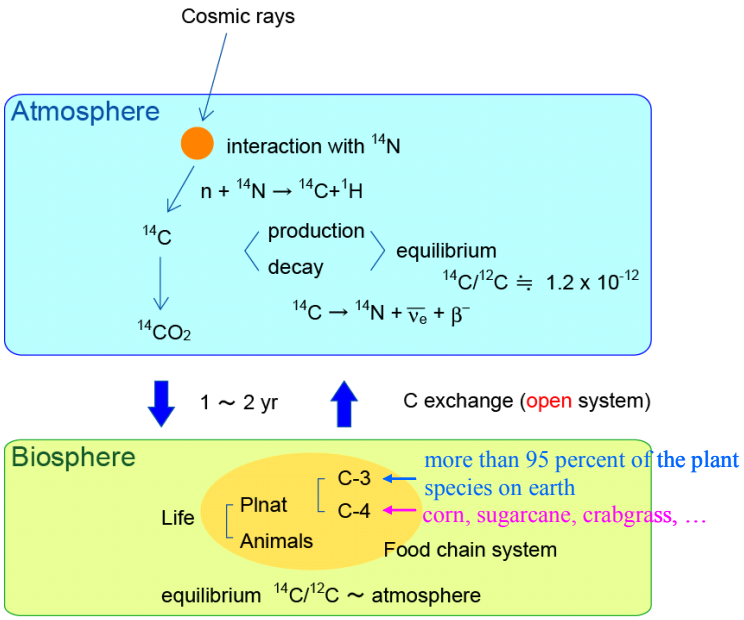


図 3. 地球表層環境の $^{14}C/^{12}C$ 比の平衡状態（核実験以前）

の $^{14}C/^{12}C$ 比が時間と共に減少していく。これを利用したのが、いわゆる「放射性炭素年代測定法（Radiocarbon dating）」である。

宇宙線生成核種の生成量は宇宙線の強度に依存する。地球圏に侵入する宇宙線の強度は、太陽活動や地球磁場の大きさで変化する。したがって、宇宙線生成核種の生成量を記録したアーカイブは、宇宙線の強度変動を記録していることになり、それは、太陽活動や地球磁場の変動の間接的な記録である。一方で、太陽活動や地球磁場の変動は、地球環境・気候に大きな影響を与える。すなわち、宇宙線生成核種生成量の過去の変動を調べることは、地球古環境を調べるための重要なてがかりとなる（図４）。宇宙線生成核種生成量を記録したアーカイブとしては、アイスコア、海底・湖沼堆積物、樹木年輪、珊瑚、鍾乳石などがあり、世界中の研究者がこれらの試料を分析して、地球古環境の研究を行っている。

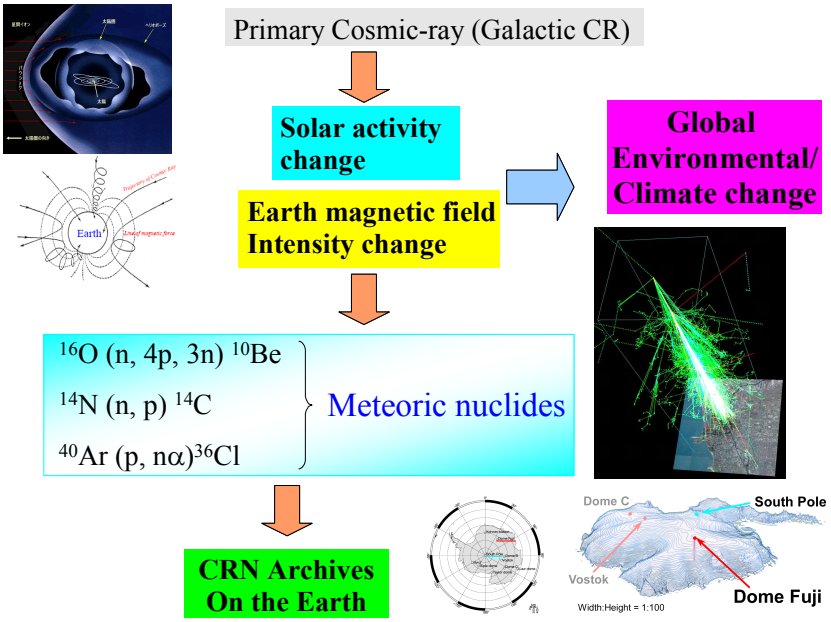


図 4. 宇宙線生成核種と地球環境変動との関係

一方で、このことは、大気中での ^{14}C の生成速度は一定ではないことを意味する。したがって、放射性炭素年代測定法において、正確な年代を決めるためには実年代（暦年代）既知のサンプル中の $^{14}C/^{12}C$ 比を正確に測定し、$^{14}C/^{12}C$ 比ー暦年代の対照表を作っておくことが必要になる。そのために、正確な年代情報を持つサンプル（堆積物、樹木年輪、珊瑚、鍾乳石など）中の $^{14}C/^{12}C$ 比を測定した結果を総合して、キャリブレーションカーブ（較正曲線）と呼ばれるデータベースが作られている。最新のものは 2004 年に発表され、IntCal04 と呼ばれている [26]。

3.1.2. in situ 宇宙線生成核種

最近では、宇宙線が地殻構成物質（岩石）と直接相互作用して生成される宇宙線生成核種（in situ CRNs）の利用がさかんになってきている。主として二次中性子の地下でのフラックスの減衰から、地表近傍での CRNs の深さ分布は、地表面の露出履歴と、侵食速度を反映する。このことを原理として、実測データをモデルフィッティングすることにより、さまざまな地表面プロセスの解明に利用されている。この手法は、第一義的には純粋に地形の成り立ちの研究に用いられるが、最近では地表面の状態と気候とが深い関わりのあることが認識され、地球環境変動の研究にも重要な役割を果たしている [27]。

3.2. 人為起源核種

一方、1950 年代以降、人類の核エネルギーの利用により、人為的な核反応によって、^{14}C、^{36}Cl 、^{129}I などの核種が生成している。これらの核種は、核燃料再処理工場周辺の環境影響評価や、原子力事故時の影響評価などに利用される一方、人為的なポイントソースからの物質動態のマーカーとして、物質循環の新たなトレーサーとしても利用価値が高い[28), 29)]。

4. まとめ

AMS（加速器質量分析）の原理、施設、応用について急ぎ足で概観してみた。応用分野については、すべてを網羅することは不可能であり、今後もさまざまな領域で新しい研究が生まれてくることと思う。いずれにしても、AMS は、他の手法では測定不可能（または困難）な核種（の同位体比）を測定できる、という点がユニークであり、また強みでもある。

References:

1) 松崎浩之: “加速器質量分析の原理” 真空, vol. 50, No. 7, p.467（2007）.

2) K. Nishiizumi, M. Imamura, M. W. Caffee, J. R. Southon, R. C. Finkel, J. McAninch: “Absolute calibration of ^{10}Be AMS standards”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B258, p.403 (2007).

3) 500keVcompactAMS performance ETH

4) M. Grajcar, Max Dobeli, P. W. Kubik, H.-A. Synal, L. Wacker, M. Suter: “New concepts of ^{10}Be AMS at low energies”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B259, p.173 (2007).

5) T. Aze, H. Matsuzaki, H. Matsumura, H. Nagai, M. Fujimura, M. Noguchi, Y. Hongo, Y. Yokoyama: “Improvement of the 36Cl-AMS system at MALT using a Monte Carlo ion-trajectory simuration in a gas-filled magnet”,

6) S. Freeman, P. Bishop, C. Bryant, G. Cook, D. Dougans, T. Ertunc, A. Fallick, R. Ganeshram, C. Maden, P. Naysmith, C. Schnabel, M. Scott, M. Summerfield, S. Xu: “The SUERC AMS laboratory after 3 years”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B259, p.66 (2007).

7) H. Matsuzaki, Y. Muramatsu, K. Kato, M. Yasumoto, C. Nakano: “Development of 129I-AMS system at MALT and measurements of 129I concentration in several Japanese soils”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B259, p.721 (2007).

8) http://c14.arch.ox.ac.uk/

9) J. van del Plicht, S. Wijma, A. T. Aerts, M. H. Pertuisot, H. A. J. Meijer: “Status report: Groningen AMS facility”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B172, p.58 (2000).

10) M.-J. Nadeau, M. Schileicher, P. M. Grootes, H. Erlenkeuser, A. Gottdang, D. J. W. Mous, J. M. Sarnthein, H. Willkomm: “The Leibniz-Labor AMS facility at Christian-Albrechts University, Kiel, Germany”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B123, p.22 (1997).

11) D. J. Donahue, J. W. Beck, D. Biddulph, G. S. burr, C. Courtney, P. E. Damon, A. L. Hatheway, L. Hewitt, A. J. T. Jull, T. Lange, N. Lifton, R. Mddock, L. R. McHargue, J. M. O’Malley, L. J.

Toolin: “Status of the NSF-Arizona AMS laboratory”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B123, p.51 (1997).

12) K. F. von Reden, J. C. Donoghue, K. L. Elder, A. R. Gagnon, D. Stuart Gerlach, V. S. Griffin, R. J. Healy, P. Long, A. P. McNichol, D. Percy, M. L. Roberts, R. J. Schineider, L. Xu, J. M. Hayes: “Plans for expanded 14C analyses at the NOSAMS facility – a status and progress report”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B223-224, p.50 (2004).

13) T. Nakamura, E. Niu, H. Oda, A. Ikeda, M. Minami, T. Ohta, T. Oda: “High precision ^{14}C measurements with the HVEE Tandetron AMS system at Nagoya University”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B223-224, p.124 (2004).

14) M. Stocker, R. Bertschinger, M. Dobeli, M. Grajcar, S. Jacob, J. Scheer, M. Suter, H.-A. Synal: “Status of the PSI/ETH compact AMS facility”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B223-224, p.104 (2004).

15) J. Southon, G. Santos: “Life with MC-SNICS. Part II: Further ion source development at the Keck carbon cycle AMS facility”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B259, p.88 (2007).

16) M. L. Roberts, G. S. Bench, T. A. Brown, M. W. Caffee, R. C. Finkel, S. P. H. T. Freeman, L. J. Hainsworth, M. Kashgarian, J. E. McAninch, I. D. Proctor, J. R. Southon, J. S. Vogel: “The LLNL AMS facility”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B123, p.57 (1997).

17) P. Sharma, M. Bourgeois, D. Elmore, D. Granger, M. E. Lipschutz, X. Ma, T. Miller, K. Mueller, F. Rickey, P. Simms, S. Vogt: “PRIME lab AMS performance, upgrades and research applications”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B172, p.112 (2000).

18) D. Fink, M. Hotchkis, Q. Hua, G. Jacobsen, A. M. Smith, U. Zoppi, D. Child, C. Mifsud, H. van der Gaast, A. Williams, M. Williams: “The ANTARES AMS facility at ANSTO”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B223-224, p.109 (2004).

19) H.-A. Synal, G. Bonani, M. Dobeli, R. M. Ender, P. Grtenmann, P. W. Kubik, Ch. Schnabel, M. Suter: “Status report of the PSI/ETH AMS facility”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B123, p.62 (1997).

20) H. Matsuzaki, C. Nakano, Y. S. Tsuchiya, K. Kato, Y. Maejima, Y. Miyairi, S. Wakasa, T. Aze: “Multi-nuclide AMS performances at MALT”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B259, p.36 (2007).

21) K. Sasa, Y. Nagashima, T. Takahashi, R. Seki, Y. Tosaki, K. Sueki, K. Bessho, H. Matsumura, T. Miura, M. He: “26Al and 36Cl AMS system at the University of Tsukuba: A Progress report”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B259, p.41 (2007).

22) P. Steier, R. Golser, W. Kutchera, A. Priller, C. Vockenhuber, S. Winkler, “VERA, an AMS facility for “all” isotopes”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B223-224, p.67 (2004).

23) G. M. Raisbeck, F. Yioy, C. Eymas, J. Lestringuez: “A status report on the Gif-sur-Yvette AMS facility”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B223-224, p.40 (2004).

24) http://www.physics.arizona.edu/ams/

25) T. Suzuki, T. Aramaki, T. Kitamura, O. Togawa: “Performance of the new iodine-129 beamline at JAERI-AMS”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B223-224, p.87 (2004).

26) Paula J. Reimer, et al.: “INTCAL04 TERRESTRIAL RADIOCARBON AGE CALIBRATION, 0-26 CAL KYR BP”, Radiocarbon, Vol. 46, Nr. 3, p.1029 (2004).

27) J. C. Gosse, F. M. Phillips: “Terrestrial in situ cosmogenic nuclides: theory and application”, Quaternary Sci. Rev. 20, p.1475 (2001).

28) M. J. M. Wanger, B. Dittrich-Hannen, H.-A. Synal, M. Suter, U. Schotterer: “Increase of 129I in environment”, Nucl. Instr. Meth. in Physics Research, B113, p.490 (1996).

29) Q. Hua, M. Barbetti: “REVIEW OF TROPOSPHERIC BOMB ^{14}C DATA CYCLE MODELING AND AGE CALIBRATIOM PURPOSES”, Radiocarbon, Vol. 46, Nr. 3, p.1273 (2004).

30) T. Suzuki, T. Kitamura, S. Kabuto, O. Togawa, H. Amano: "High sensitivity measurement of iodine-129 / iodine-127 ratio by accelerator mass spectrometry" J. Nucl. Sci. Technol, 43, (11), p.1431 (2006).

Accelerator Mass Spectrometry – principle, facilities, applications

Hiroyuki Matsuzaki

MALT(Micro Analysis Laboratory, Tandem accelerator), Department of Nuclear Engineering and Management, The School of Engineering, The University of Tokyo

The principle, worldwide AMS facilities and a part of AMS applications are briefly surveyed. AMS is constructed the combination of the mass spectrometry system and the accelerator. As accelerated up to MeV/nucleon, various techniques can be used for the identification of the interested nuclide from the interfering isober and iso-molecular ions. Consequently, ultra high sensitivity of the detection of the cosmogenic nuclides such as ^{10}Be, ^{14}C, ^{26}Al, ^{36}Cl, ^{129}I is achieved by AMS. The fact there is no other way alternating the AMS technique makes the research of the application of AMS very unique and highly valuable.

1.2 むつタンデトロン AMS 利用の現状

天野 光、甲　昭二、木下尚喜

日本原子力研究開発機構 青森研究開発センター
むつ事務所 AMS 管理課

１．緒言

平成 9 年にオランダ High Voltage Engineering Europa 社から導入されたタンデトロン AMS（加速器質量分析装置）: JAEA-AMS-MUTSU は炭素、及び重元素用のイオン源をそれぞれ配置しており、重元素としてはヨウ素同位体比(I-129/I-127)測定用にライン設計された[1)]。当初、海洋調査研究のための共同利用施設としての利用が目論まれたが、諸事情のため旧原研の一施設として、海洋調査研究室によって運用され、主に日本海、オホーツク海の海洋試料の測定に利用されてきた[2)]。平成 17 年度の旧原研と旧サイクル機構との合併による組織改変により、平成 18 年度より原子力機構の共用施設として内外の利用に供している[3-5)]。JAEA-AMS-MUTSU はこれまでに 2007 年 9 月末で、内外合わせて炭素試料 7075 個、ヨウ素試料 1317 個を測定している。

２．平成 18 年度から 19 年度までの利用状況

施設共用を開始した 18 年 4 月から 19 年 9 月末までの内部及び外部利用の全測定試料数は炭素 1,648 個、ヨウ素 756 個である。外部利用の割合は、炭素 23%、ヨウ素 45%である。

外部利用

JAEA-AMS-MUTSU は原子力機構の共用施設の一つとして、平成 18 年度より外部利用を開始した。外部利用開始にあたっては、原子力機構の施設利用協議会のもとに AMS 専門部会を立ち上げた（部会長　中村俊夫 名大年代測定総合研究センター長）。半期毎の利用を基本とし 5 月と 11 月の年 2 回応募課題の公募を行う。成果公開課題は成果を公開することによる施設利用料金の一部免除が適用される。平成 18 年度に外部利用として採択された成果公開課題は上半期 4 件、下半期 6 件、平成 19 年度は上半期 8 件、下半期 11 件である。成果非公開課題は、各半期 2 課題程度である。これまでに JAEA-AMS-MUTSU を利用した外部機関は、受託研究等を含めると、北海道大学、海洋科学振興財団、むつ市教育委員会、日本分析センター、国立歴史民俗博物館、海洋研究開発機構、北陸大学、京都大学、広島大学である。青森県原子力センター、弘前大学が 19 年度下半期利用で課題が新規採択されている。

ちなみに放射性炭素（^{14}C）に関する成果公開採択課題名を羅列すると以下の通りである。
ベンゼン－液体シンチレション法と AMS 法で得た樹木年輪 ^{14}C 濃度の比較

土壌ガス中の CO_2 同位体分析－試料採取及び調整法の検討
^{14}C をトレーサーとした環境中における有機物の移行研究
^{14}C を用いた大気・海洋間における気体交換量推定にかかわる研究
樹木年輪の ^{14}C 濃度の経年変動
網走湖湖底堆積物コア試料に記録されたオホーツク海南西部陸域の完新世気候変動の解明
北極海、北太平洋高緯度域における古環境復元研究
日本産樹木年輪試料の ^{14}C 測定による日本における大気中 ^{14}C 濃度の地域効果の検討
^{14}C を用いた大気・海洋間における気体交換量推定にかかわる研究
二枚貝化石殻の高精度酸素同位体比測定に基づく過去２万年間の日本海表層水温季節変動幅の復元
日本産樹木年輪試料の ^{14}C 測定による日本における大気中 ^{14}C 濃度の地域効果の検討
青森県の現生・化石植物中の ^{14}C による環境動態解析

放射性ヨウ素（^{129}I）に関する成果公開採択課題名を羅列すると以下の通りである。
環境試料中の ^{129}I 分析に係る前処理方法の検討
大気由来 ^{129}I 量の推定
人為起源 ^{129}I の海水中での存在状態の解明
セミパラチンスク核実験場近郊土壌中 ^{129}I の汚染濃度の測定

上記のそれぞれの概要は実施報告書として例えば18年度下期分であれば原子力機構産学連携推進部の以下のＨＰで閲覧できる。
http://www3.tokai-sc.jaea.go.jp/sangaku/3-facility/06-news/commonuse-2006b/20070914-7.html

内部利用

JAEA-AMS-MUTSU の内部利用としては、原子力基礎工学部門、バックエンド推進部門、核燃料サイクル工学研究所に加えて、むつ事務所 AMS 管理課が自前で行う技術開発等のための利用がある。

内部利用に関する主な研究課題として以下が挙げられる。これらの概要は、その一部が本論文集でも報告されている。
溶存態有機物中放射性炭素測定システムの開発
AMS を用いた簡便な ^{14}C 環境モニタリング手法の開発
粒子状有機物中の放射性炭素測定に関する技術的検討
タンデトロン AMS の測定試料の前処理に関する研究
森林生態系における炭素循環に関する研究
日本海における水塊構造と長期間海水循環の解明

日本海および青森周辺海域における粒子状有機物の循環に関する研究
海水中溶存有機物の循環に関する研究
環境試料中のヨウ素同位体比測定のための前処理法の検討
ヨウ素同位体比測定のための前処理技術開発
海洋環境におけるヨウ素の動態
廃棄体確認技術の開発
東海再処理施設周辺の環境調査

３．今後の課題

JAEA-AMS-MUTSU の運転継続に関する今後の課題は以下の通りである。

＊システムの堅固さをいかに確保するか？

運転開始以来 10 年が経過しており、OS やインターフェイス更新等が必要である。

＊運転資金をいかに確保するか？

与えられる運転資金が年々減少しており、運転のための資金確保が重要である。

＊運転計画をいかに合理的に策定するか？

施設共用開始以来、測定希望試料数が測定可能試料数を大幅に上回っており、運転計画をいかに合理的に策定するか頭を悩ませている。

＊ユーザー利用の調整をいかに行うか？

これは上記とも関連するが、年度後半、特に年度末に測定依頼が集中する傾向にあり、年度初めでの試料の持込が推奨される。

＊利用に関するニーズ・シーズの把握とニーズ・シーズにあった前処理技術開発

AMS の将来に亙っての利用を担保するため、利用に関するニーズ・シーズの把握とニーズ・シーズにあった前処理技術開発を行う必要がある。その上で AMS 利用の将来計画を策定するのが合理的であろう。

４．結言

JAEA-AMS-MUTSU は将来にわたって原子力機構の共用施設として機構内外の利用に供することが期待されている。このパワフルな装置を常時運転可能となるよう努力し、意義のある研究・技術開発テーマを採択して、AMS の有効利用の可能性を将来にわたって探っていきたい。

参考文献

1) 天野光、北村敏勝. 原研タンデトロン加速器質量分析装置、加速器 Vol.1 No.3, p.293 (2004).
2) T. Aramaki, T. Senjyu, O. Togawa, S. Otosaka, T. Suzuki, T. Kitamura, H. Amano, and

Y.N. Volkov: “Circulation in the northern Japan Sea studied chiefly with radiocarbon” Radiocarbon, Vol.49, No.2, p.915 (2007).

3) 天野　光、甲　昭二、木下尚喜、鈴木崇史、田中孝幸、乙坂重嘉、桑原　潤、北田慶信、渡部幸也、北村敏勝「原子力機構むつ・タンデトロン加速器の現状」、第 19 回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会報告集 pp.1-4 (2006)

4) H. Amano, S. Kabuto, N. Kinoshita, T. Suzuki and T. Kitamura: “Status and Future Plan of JAEA Mutsu Tandetron AMS Facilities”, Proc. of the 1st East Asian Symposium on AMS, pp.77-81 UTTAC-74 (2006).

5) 天野　光、甲　昭二、木下尚喜、渡部幸也「原子力機構むつ・タンデトロン加速器の現状」、第 20 回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会報告集、JAEA-Conf, 印刷中 (2007)

Status of Recent Utilization of JAEA AMS MUTSU

H. Amano, S. Kabuto and N. Kinoshita

AMS Management Section, Mutsu Office
Aomori Research and Development Center
Japan Atomic Energy Agency

Tandetron AMS was set up at the JAEA Mutsu in 1997. This AMS has been used for the determination of $^{14}C/^{12}C$ and $^{129}I/^{127}I$. So far, 7075 samples have been measured for the ^{14}C-AMS, and 1317 samples have been measured for the ^{129}I-AMS until the end of September 2007. This AMS has adopted the open door policy which is periodic filing of applications and judgment for use twice a year, expecting broad usage including environmental issue and estimation of radioactive wastes for the general users from the spring of 2006. Eight external assignments have adopted in the first half of 2007, eleven external assignments have adopted in the latter half of 2007 at the JAEA AMS MUTSU.

1.3 むつタンデトロン AMS 運転の現状

甲昭二[1)]、木下尚喜[1)]、渡部幸也[2)]、馬場正美[2)]、天野光[1)]
1）日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　むつ事務所　AMS 管理課
2）財団法人　日本海洋科学振興財団　むつ海洋研究所　分析部

１．はじめに

日本原子力研究開発機構(JAEA)青森研究開発センターむつ事務所に設置されている加速器質量分析装置は、平成 9 年に導入された。この AMS は 3MV の加速器に炭素同位体比及びヨウ素同位体比測定用の専用ビームラインが取り付けてられている。イオン源には Cs スパッタ型負イオン源が装備され、最大 59 個の試料を装着できる。炭素ラインは平成 11 年 12 月から、ヨウ素ラインは平成 15 年 5 月から定常測定を開始している。平成 18 年度からは AMS の施設共用が開始され、平成 17 年度以前の年間測定実績を超える多数のニーズが、原子力機構内外から寄せられた。20 年度も更にニーズの増加が予測されるため、実例を示しながら 18 年度から 19 年度 9 月までの AMS 運転に係るトラブルや故障等の運転の現状について報告する。

２．H18 年度～H19 年度 9 月までの運転状況

AMS 運転に係るトラブルや故障はイオン源に関するもの、真空系に関するもの、冷却系に関するもの、ビーム測定に関するもの等が挙げられる。H18 年度は経年劣化が原因と思われる機器の故障等は起きたが予備品との交換により、炭素 1,094 個、ヨウ素 502 個と定常測定を開始してから最高の試料数を測定できた。H19 年度は 9 月時点で機器の故障等は無く装置に関しては順調に稼動しており、炭素 554 個、ヨウ素 254 個を測定した。しかし、測定中に数回イオン源にトラブルが発生し、炭素試料については再測定を余儀なくされたため、運転計画に若干の変更が生じた。図 1 に H18～H19.9 炭素測定実績を、図 2 に H18～H19.9 ヨウ素測定実績を示す。

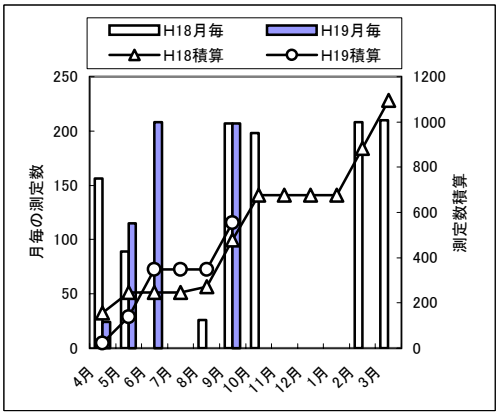


図 1　H18～H19.9 炭素測定実績

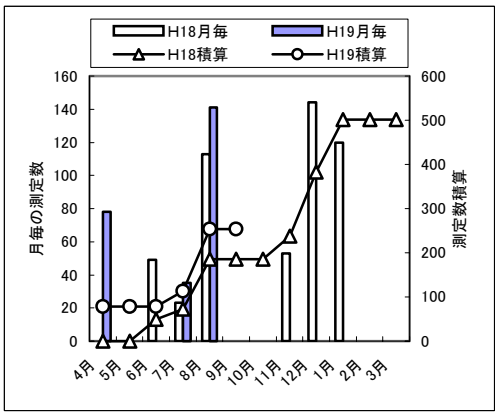


図 2　H18～H19.9 ヨウ素測定実績

炭素試料は最大 200 個／1 ヶ月安定して測定している。ヨウ素については最大 140 個／1 ヶ月測定できるが、各ユーザーが試料の汚染を嫌うため、小口ユーザーが多いと測定の Run 回数は多くなるが、1 ヶ月当たりの測定実績は増えない。また、年度の前半に試料が集まらない傾向があるので、ユーザーと調整できれば運転効率はまだ上がると思われる。

３．トラブルや故障等の発生状況

施設共用が開始された H18 年度～H19 年度 9 月までにいくつかのトラブルや故障等が発生している。表 1 に主なものを示す。

表 1 トラブル及び故障事例

H18 年度	H19 年度 9 月まで
^{129}I TOF Magnet Lens 電源不具合	^{129}I イオン源真空度異常インターロック
^{129}I イオン源 X モーター作動不良	^{14}C イオン源ターゲット電圧導通
^{129}I TOF カウント異常	^{14}C イオン源エクストラクション電圧異常
^{14}C 入射部±1A 出力直流電源不具合	^{14}C イオン源ターゲット電圧導通
^{14}C イオン源ターゲット電圧導通	
冷却水装置 No.1 ポンプインペラ破損	
クライオコンプレッサ No.1 不具合	

H19 年度から機構外ユーザーが試料の前処理を行って、ターゲットピースにプレスした状態で持込まれた試料が増えるに従って、試料が原因と思われるイオン源トラブルが増えてきた。定常運転を開始してから発生したイオン源トラブルは内部の汚れ（図 3）やターゲットピースの削れ片（図 4）によるカソードの絶縁不良と真空度異常のためのインターロック作動が主であった。内部の汚れはターゲットのプレス状態（圧力、キズ、剥がれ）に、アルミ片は試料交換時の微妙な位置のずれやターゲットホルダー内面のキズでアルミ製のターゲットピースが削られることに、真空度異常は同一ユーザーが作製した試料に再現性があるため試料自体に原因があることが経験からわかっている。

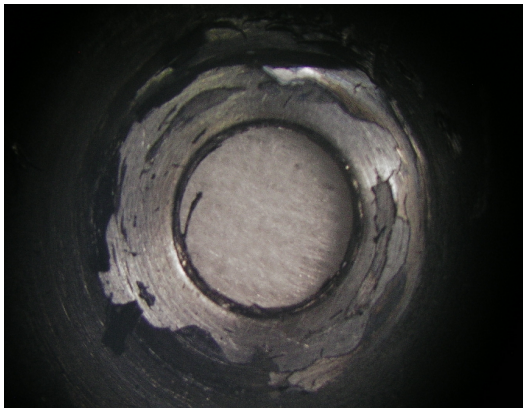


図 3　グラファイトの汚れ

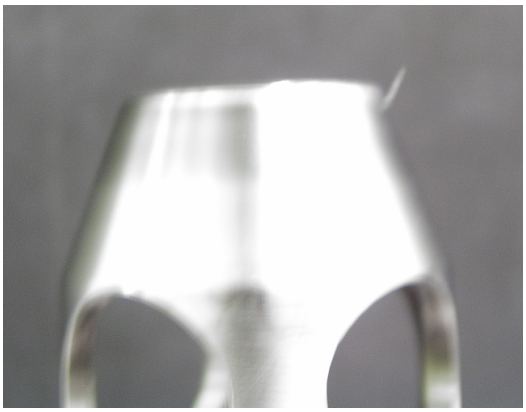


図 4　アルミ片の付着

４．イオン源トラブルの状況

H18 年度は内部試料測定中に ^{14}C イオン源で 1 回発生しているが、アルミ片の付着が原因であった。これは試料をつかむターゲットホルダー内面にキズが付いたためで、キズを研磨して対応した。また、1 回／2 週間に行うイオン源クリーニング時にターゲットホルダーを整備したものと交換することで、アルミ片の付着を抑えることができている。H19 年度は外部試料測定中に ^{129}I イオン源で 1 回、^{14}C イオン源で 3 回発生している。^{129}I イオン源真空度異常のトラブルは試料が原因と思われる。^{14}C イオン源のトラブルでは、開放して内部を点検したがグラファイトの汚れやアルミ片は確認されなかった。トラブルを起こした外部 2 機関の試料は、試料交換時イオン源の真空度の下がりが悪く、測定中のイオン源内（図 5）はガスがかかって見えた。また、1～2 週間真空引きしたら再測定できたことから、真空度を悪くする要因が試料にあったと推測される。イオン源の大掛かりなクリーニングは、各ビームラインの切替時に行っているが、測定精度に影響するアライメントに係る場所のクリーニングは、測定が立て込んでいると行わないため、Cs が大分付着している。真空度が悪くなったことで付着した Cs が蒸気化し充満して導通が起こったと考えられる。原子力機構内部や測定実績のある機関の試料ではこのような事象は起きていない。

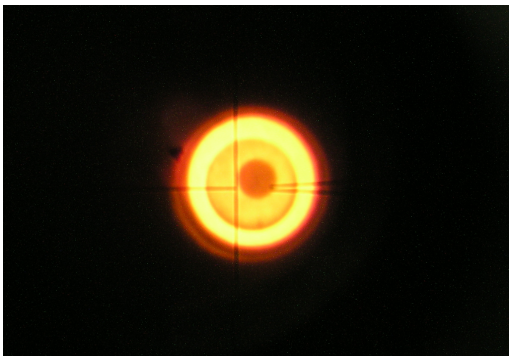


図 5　測定中の炭素イオン源内部

５．測定パターンの変更

H19 年度から炭素測定パターンを 30 秒／1 ブロック×90 の 45 分測定から 60 秒／1 ブロック×50 の 50 分測定に変更した。従来、2mm 径の試料面を 9 ポイント測定していたが、5 ポイントへ変更することでブロックの切替時間を短縮し、45 分測定と同程度のリアルタイムで 50 分の測定が可能となった。測定時間を 1 割長くした分 ^{14}C カウントが増え、測定精度も若干向上している。

６．装置の整備状況

装置等は大分整備、改良がなされている。また、測定が立て込んでいるので長時間マシンを停止できる余裕がない。H19 年度は、SF6 ガス回収装置について吸着フィルタ、吸着材、コンプレッサオイル交換等の整備を 4 月に行い、7 月に SF6 ガスの循環乾燥運転を行った。H18 年度に循環乾燥を行ったとき、SF6 ガスの露点は循環開始前-59℃で終了後は-63℃であった。H19 年度は循環開始前-62℃で終了後は-73℃であった。1 年間運転して露点はさほど悪くなっておらず、整備の効果で露点は H18 年度より大きく下がっている。加速タンクの開放は H12 年 9 月に行って以来開放していない。

７．AMS-MUTSU の運転に関する課題

本 AMS の制御は全てコンピュータで行われる。コンピュータの機種が古いため、部

品の入手が困難であり、コンピュータを更新したいが OS の更新が伴うため高額になるのでこちらも困難である。コンピュータの手当てが急務である。また、タンデトロンの真空系にはクライオポンプ（COOLVAC800：2 台、COOLVAC400：4 台）を使用しており、2 台のコンプレッサ（RW4000）で 6 台のクライオポンプを運転しているが、COOLVAC400 と RW4000 は販売が中止され、部品の供給も停止しされた。なんとか中古の予備で故障に対処できているが、今後は修理ができないため、新タイプへ切替たいがブレーカー容量、冷却水系の能力及びコンピュータ制御等の検討が必要と思われる。

８．まとめ

共用施設となって以降、むつタンデトロン AMS は概ね順調に稼動している。H19 年度は試料が原因と思われるイオン源トラブルが数回発生しているが、9 月現在過去最高を記録した H18 年度の測定試料数を上回る測定ができる見込みである。

ユーザーの方々には試料によって運転効率に影響を与えるということを知っていただいた上で今後も試料の提供をお願いしたい。

参考文献

［1］水島俊彦、外川織彦、水谷義彦、甲昭二、山本忠利、タンデム型加速器質量分析装置の整備、JAEA-Tech 2000-004(2000)

［2］北村敏勝、甲昭二、鈴木崇史、天野光、番場滋、磯貝啓介、北田慶信、渡部幸也、原子力機構むつ・タンデトロン加速器の現状、第 18 回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会報告集 pp.31-35(2005)

［3］鈴木崇史、北村敏勝、甲昭二、外川織彦、木下尚喜、天野光、加速器質量分析装置ヨウ素ラインの性能、JAEA-Tech 2006-18(2006)

［4］天野光、甲昭二、木下尚喜、鈴木崇史、田中孝幸、乙坂重嘉、桑原潤、北田慶信、渡部幸也、北村敏勝、原子力機構むつ・タンデトロン加速器の現状、第 19 回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会報告集 pp.1-4(2006)

Operational Status of the JAEA-Mutsu Tandetron AMS

Shoji Kabuto[1)], Naoki Kinoshita[1)], Yukiya Watanabe[2)], Masami Baba[2)] and Hikaru Amano[1)]

1) AMS Management Section, Mutsu Establishment, Japan Atomic Energy Agency

2) Mutsu Marine Laboratory, Japan Marine Science Foundation

A Tandetron AMS (Accelerator Mass Spectrometer) had been set up at the Japan Atomic Energy Agency (formerly the Japan Atomic Energy Research Institute), Mutsu in 1997. The AMS features 3MV Tandetron accelerator and two independent beamlines for ^{14}C and ^{129}I measurement. In this paper, we describe the current status and troubles for the Tandetron AMS with the showing of examples from the last year.

1.4 JAEA ペレトロン年代測定装置の現状と研究活用の例

石丸 恒存(1)、齋藤 龍郎(1)、鈴木 元孝(1)、西澤 章光(2)

(1) 日本原子力研究開発機構　地層処分研究開発部門　自然事象研究グループ
(2) 株式会社ペスコ

1. はじめに

日本原子力研究開発機構 東濃地科学センターでは、平成 9 年 3 月に岩石や地下水など天然試料の同位体分析を目的としてタンデム型加速器質量分析計（NEC 製 15SDH-2 ペレトロン）を導入した。平成 9 年 8 月より試験運転を開始し、平成 10 年 9 月より ^{14}C のルーチン測定を実施している。その後、運転開始から 6 年を経過した頃から装置の経年劣化による不具合が出始め、その都度対処しながら測定を行ってきている。機構の保有する施設・設備の広範な外部活用を目的とした、施設共用制度による外部利用については平成 18 年 10 月より実施している。ここでは、JAEA ペレトロン年代測定装置の主な仕様、装置の最近の運転状況、内外の研究活用例などについて紹介する。

2. 装置の主な仕様など

- ■ 最大加速電圧　500万Ｖ（通常は450万Vで運転）
- ■ 最大電流　1μA
- ■ 測定可能な同位体　^{14}C
- ■ 測定可能な試料形態　貝、木片、土壌、地下水（炭酸塩）、CO_2ガス、グラファイト
- ■ 最小試料量　約1mg（ホイールには40試料が装填可能）
- ■ 年代測定範囲　最大約 6 万年前まで

3. 装置の最近の運転状況など

図1にこれまでのペレトロン年代測定装置の運転実績を示す。平成9年に装置を導入以後、平成16年頃より経年劣化などによる不具合の発生によって、その都度、修理・補修を繰り返しており、平成17年から平成18年8月までは加速器本体の補修によって運転を停止していた(1)。平成18年9月より運転を再開したが、平成19年1月まではメンテナンスと試験測定を実施しており、実試料測定の再開は平成19年2月からである。平成19年4月までに169試料の測定を行ったが、4月末には微量同位体ビームラインを構成する静電アナライザの電源などに不具合が生じたため8月末までの約4ヶ月間メンテナンス・試

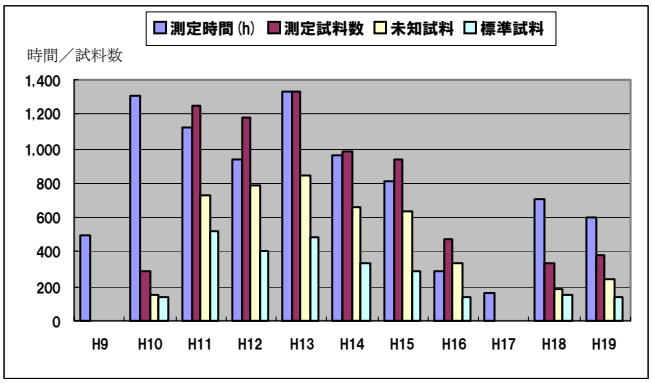


図１　ペレトロン年代測定装置の運転実績

験測定を行い、平成19年9月10日より実試料測定を再開している。平成9年の運転開始から平成19年10月までのトータルの延べ測定時間は8,737時間、延べ測定数は7,159試料である。

表１　測定時間と試料数
（平成 19 年 1 月～10 月）

H19年	測定時間	全測定試料数	うち未知試料数
１月	8.0	0	0
２月	188.8	108	75
３月	162.2	98	61
４月	91.6	61	33
５月	0	0	0
６月	0	0	0
７月	10.1	0	0
８月	34.1	14	0
９月	255.5	156	97
１０月	212.6	155	115
計	957 時間	592 試料	381 試料

表１および図２に平成19年1月以降の実績について示す。試料測定は最近10ヶ月間の全測定数は592試料で、うち未知試料は全測定数の64％にあたる381試料である。

なお、施設共用制度による外部利用では、平成 18 年度下期に課題３件（計 107 試料）、を受け入れており、平成 19 年度には平成 18 年度の継続課題を含むかたちで、上期に課題１件（計 10 試料）を受け入れ、平成 19 年度下期には課題５件（計約 130 試料）を受け入れる予定である。

4.　装置の研究活用例

4.1　施設共用制度に基づく実施課題

平成18年度下期の施設共用制度に基づく実施課題は３件であり、概要は以下のとおりである。

○海岸平野の沖積層形成過程と地盤特性－大阪平野を中心として－

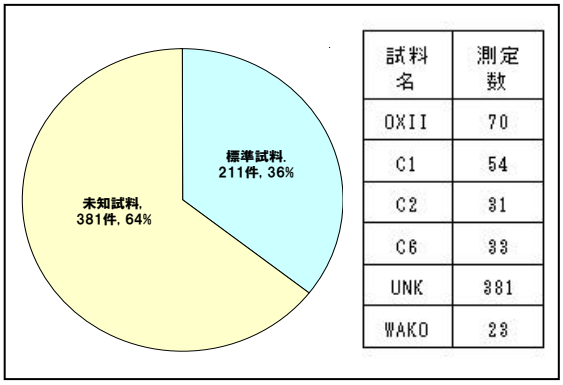
主目的：大阪平野の沖積層形成過程の解明
測定試料：ボーリングコア中の貝、木片
研究機関；大阪市立大学

○水戸台地の地下水年代測定

主目的：水戸台地の地下水の水収支解析
測定試料：地下水
研究機関；水戸市環境保全会議

○森林内炭素循環観測試料の炭素14同位体比測定

主目的：森林内の炭素循環の評価
測定試料：土壌空気中のCO_2、土壌中の有機物・生根
研究機関；名古屋大学



試料名	測定数
OXII	70
C1	54
C2	31
C6	33
UNK	381
WAKO	23

図２　測定試料数内訳
（平成 19 年 1 月～10 月）

4.2　内部利用における研究事例

自然事象研究グループにおけるペレトロン年代測定装置を活用した^{14}C年代測定による最近の研究事例としては次のような３テーマがある。

①気候変動と河岸段丘形成等に関する研究（試料：段丘堆積物中の木片、植物片）
②濃尾平野の形成過程に関する研究（試料：ボーリングコア中の貝類、植物片）
③活断層の発達過程に関する研究（試料：段丘堆積物中の土壌、木片）

①及び②は「古地形・古環境の復元調査技術」の整備の一環で実施している研究テーマ

で、東濃地科学センターのある岐阜県の東濃地域から濃尾平野にいたる地域を対象に事例的に研究を実施している。^{14}C年代測定を行う目的は、過去数万年の気候変動を把握するために、気候変動の指標となる花粉などが堆積した時期を明らかにすることや、温暖期と寒冷期の繰り返しにより形成された河岸段丘の形成時期を明らかにすることである。岐阜県瑞浪市のボーリング試料を用いた気候変動の調査結果を例として図３に示す。この調査により、対象地域の過去約4万年の古気温変化と詳細な年代を明らかにした。

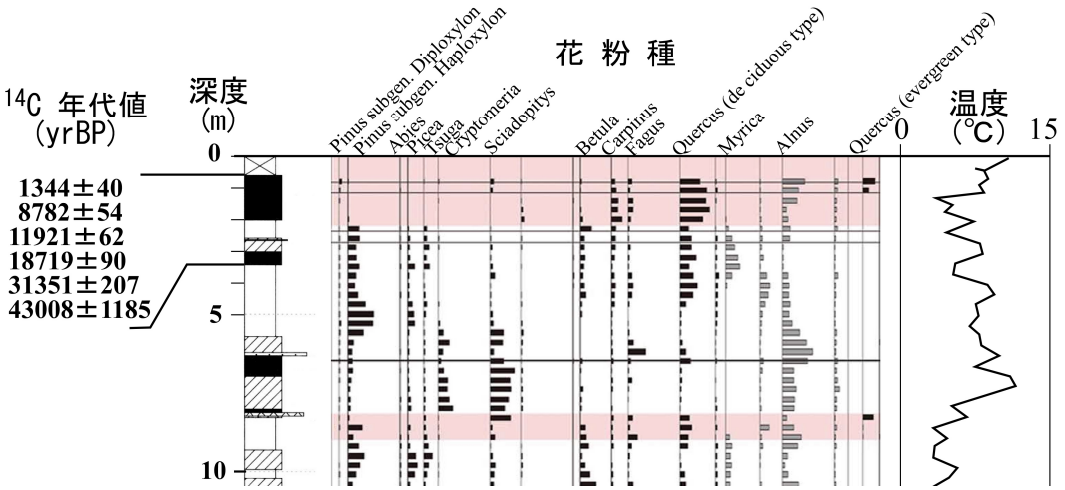


図３　ボーリング試料の花粉分析結果に基づく古気温変化と堆積物の ^{14}C 年代値

③では、秋田県横手盆地東縁断層帯（千屋断層）を対象として、活断層による変位が観察できる露頭において、断層で切られた堆積物の年代を把握することによって断層が活動した年代すなわち地震を引き起こした年代を推定している(2)。図４に示すように、断層露頭の腐植土の^{14}C年代測定により、段丘堆積物の堆積年代は西暦1000年～1300年前後であり、断層が活動したのは西暦1300年以降であることが判明した。歴史記録によれば、西暦1000年以降で断層が活動したのは1896年陸羽地震と特定できるため、露頭で見られる断層変位は陸羽地震の活動によるものと結論づけられる。

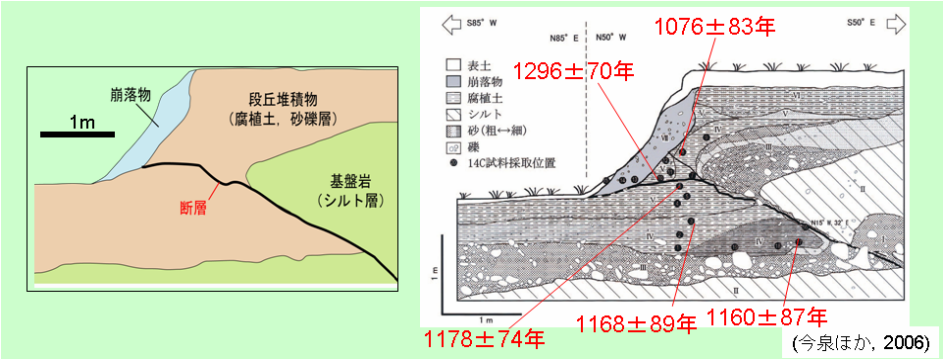


図４　千屋断層の露頭スケッチと段丘堆積物の ^{14}C 年代値

(1)　笹尾英嗣、鈴木元孝、西澤章光：JAEA-AMS-TONO の現状、第 19 回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会　報告集、pp.35-37 (2006)

(2)　今泉俊文、楮原京子、大槻憲四郎、三輪敦志、小坂英輝、野原 壮：秋田県・千屋断層の陸羽地震断層露頭、活断層研究、26、pp. 71-77 (2006)

The current condition and utilization of JAEA-AMS-TONO

Tsuneari Ishimaru[(1)], Tatsuo Saito[(1)], Mototaka Suzuki[(1)], Akimitsu Nishizawa[(2)]

(1) Neotectonics Reserch Group, Geological Isolation Research and Development Directorate, Japan Atomic Energy Agency

(2) PESCO Co. Ltd.

JAEA-AMS-TONO, a tandem accelerator mass spectrometry (manufactured by NEC, Type 15SDH-2) was installed at JAEA Tono Geoscience Center for the purpose of sensitive dating of natural samples: rocks, underground water and so on using radioisotope, in March 1997. Test operation was started in August 1997, and routine operation was started from September 1997. Some machine troubles with aging occurred after 6 years passed from the installation, but these troubles are repaired and routine operation has been continued. From October 2006 JAEA-AMS-TONO started to permit to use for researchers of universities and other institutes under the Common-Use Facility Program of JAEA aimed at propagation to utilize JAEA facilities. In 2006, 3 proposals and 107 samples were accepted under this Program at JAEA-AMS-TONO.

1.5 むつ AMS における C-14 データ処理と質評価について

乙坂 重嘉[(1)]、天野 光 [(1)]、甲 昭二 [(1)]、木下 尚喜 [(1)]、田中 孝幸[(2)]

(1) 日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　むつ事務所　AMS 管理課
(2) 日本原子力研究開発機構　原子力基礎工学研究部門　環境動態研究グループ

1. はじめに

JAEA-Mutsu AMS では、平成 18 年 4 月より施設共用を開始しており、原子力機構内のみならず、外部機関から受け入れた試料の ^{14}C 同位体比を測定している。利用者への計測データの報告にあたっては、国内外の多くの機関と同様に、国際的に承認された方法[(1)] で pMC (per cent of modern carbon) 値を算出し、独自に定めた基準に基づき測定の不備がないことを確認している。本報では、JAEA-Mutsu AMS による ^{14}C 測定データの質的評価基準についての概要と、データレポートの記載内容を紹介する。

2. データレポート記載項目

利用者に報告する項目は、下記のとおりである。

(1) 測定日時、測定試料名

(2) 試料中の $^{14}C/^{12}C$ 比

(3) 試料中の$\delta^{13}C$ 値

JAEA-Mutsu AMS では、試料量が不十分な場合を除き、試料から抽出した CO_2 ガスの一部を、安定同位体質量分析装置による ^{13}C 値分析用に供している。^{13}C 同位体比を他の機関での計測した場合や、上記以外の方法で決定した場合は、報告書にその旨を記述する。

(4) pMC 計算で用いる標準試料 $^{14}C/^{12}C$ 比（1950 年に壊変補正）

標準試料は、米国標準技術局（NIST: National Institute of Standards and Technology）が領布するシュウ酸標準試料 SRM 4990C を、測定対象となる試料とできる限り同一の条件で処理・計測する。pMC 値の算出の際の基準値への $^{14}C/^{12}C$ 比の補正係数は、Stuiver (1983) の報告値[(2)]を用いる。

(5) 試料中の $^{14}C/^{12}C$ 比（$\delta^{13}C$ = -25‰に補正）と pMC 値

Stuiver and Polach (1977) の計算式[(1)]で、試料中の pMC 値を算出する。

(6) バックグラウンド試料の計数値を減じた、試料中の $^{14}C/^{12}C$ 比と pMC 値

原則として、バックグラウンド試料は、dead carbon 起源のグラファイト粉末とする。利用者からの希望に応じて、代わりとなる試料を使用する場合もある。

(7) データの質的評価で使用した標準試料の$\delta^{13}C$ 値および pMC 値

利用者側で用意した圧着処理を行った試料を測定する場合でも、原子力機構で処理・圧着した標準試料（通常は IAEA-C6）を測定し、試料性状に起因する異常の有無を評価する。

(8) データの質的評価の結果

3. データの質的評価基準

前節の (8) で記した測定データの質的評価基準は、下記のとおりである。下記の基準にある数値は、JAEA-Mutsu AMS の最良の状態でのパフォーマンスを示すものではなく、あくまでも測定の異常を抽出するための基準である。

(1) 当該試料について、全測定ブロックのデータが得られていること
(2) NIST 標準試料を複数回測定したときの $^{14}C/^{12}C$ 比の繰り返し誤差が、0.94% 以内であること
(3) バックグラウンド試料の pMC 値が、1.0% 以内であること
(4) 標準試料（IAEA-C6）の pMC 値の相対誤差が、0.94% 以内であること
(5) 標準試料（IAEA-C6）の pMC 計測値が、誤差範囲内で保証値と一致すること
(6) 測定試料の pMC 値の相対誤差が、1.0% 以内であること
(7) その他依頼者が指定する標準試料の計測値が、誤差範囲内で保証値と一致すること

上記の基準に対して、以下の評価結果（フラグ）を、計測結果とともに報告書に記載する。

フラグ A: 全ての基準を満たす「推奨値」。

フラグ B: 測定上は異常が見られないが、上記 (4)〜(7)のいずれかの基準を満たさない「参考値」。計測結果は利用者に報告し、データ公表の可否についての判断は、利用者側に委ねる。原則として、再測定は行わない。

フラグ B2: 測定上は異常が見られないが、上記 (2) および (3) の基準を満たさない「疑わしい値」。データ公表の可否については、AMS 管理課-利用者間で協議する。原則として、再測定は行わない。

フラグ C: AMS 管理課側の過失や装置の故障により基準を満たさない値。特別な場合を除き、データ公表を推奨しない。可能な限り、契約期間内に再測定を行うが、再測定が困難な場合は、AMS 管理課-利用者間で協議する。

4. おわりに

上記以外の方法による計算処理や、未処理の計測データ（生データ）の報告も可能であるため、今後も利用者との緊密な情報交換を心がけたい。本報で紹介したデータの質的評価の指針は、当面、暫定版として運用するが、各項目の計算の詳細や、利用者からのご意見を反映させた改訂版を近日中に発行し、利用者に配布する予定である。

謝辞

データ処理指針の作成に当たり、（独）日本原子力研究開発機構 安藤麻里子博士、小嵐淳博士、外川織彦博士には貴重なご意見をいただいた。記して謝意を表します。

参考文献

1) M. Stuiver and H.A. Polach: “Discussion: Reporting of ^{14}C data” Radiocarbon, 19, pp.355-363 (1977).
2) M. Stuiver: “International agreements and the use of the new oxalic-acid standard” Radiocarbon, 25, pp.793-795 (1983).

Quality policy on radiocarbon measurement at the JAEA-Mutsu AMS

Shigeyoshi Otosaka[(1)], Hikaru Amano[(1)], Shoji Kabuto[(1)], Naoki Kinoshita[(1)] and Takayuki Tanaka [(2)]

(1) AMS Management Section, Japan Atomic Energy Agency
(2) Research Group for Environmental Science, Japan Atomic Energy Agency

Since April 2006, a common use of the JAEA-Mutsu AMS has been available for researchers inside/outside JAEA. Before the receiving ^{14}C data to the researchers, we calculate pMC (per cent modern carbon) value and accuracy/precision of the measurement is confirmed according to the JAEA-Mutsu's quality policy. In this paper, an outline of the quality policy is described.

2. AMS による ^{129}I 測定とその応用

2.1 JAEA AMS Mutsu による ^{129}I 測定及びヨウ素循環研究への応用

鈴木　崇史(1)、甲　昭二(1)、木下　尚喜(1)、天野　光(1)、外川　織彦(2)

(1) 日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　AMS 管理課
(2) 日本原子力研究開発機構　原子力基礎工学研究部門　環境動態研究グループ

1. はじめに

日本原子力研究開発機構青森研究開発センターAMS 管理課に設置してある加速器質量分析装置(AMS)にはヨウ素 129 測定専用のビームラインが取り付けてある。このビームラインは平成 12 年にアクセプタンステストを終了し、平成 15 年から定常測定を開始し(1)、平成 18 年度から共用施設として原子力機構内外の研究に供している。ここではヨウ素ラインによる測定に関すること及びヨウ素循環研究の一端を紹介する。

2. 標準物質

現在市販されている ^{129}I に関する標準物質の中で、濃度レベルが AMS 測定に適しているものは NIST SRM 3230 Low Level のみである。この標準物質は 1 バイアル当たり数試料しか得ることができない。AMS 管理課では主に NIST SRM4949C から市販のヨウ化カリウムで希釈したものを標準物質として使用している。またその他に使用している標準物質を表 1 にまとめた。それぞれの標準物質は他の 2 機関の協力を得て AMS で測定した結果も合わせてまとめた。

表 1、標準物質のヨウ素同位体比

Sample ID	^{129}I/^{127}I (× 10^{-12})			
	Certificated	JAEA	A	B
Std #3k		62.3±0.3	62.1±1.9	62.5±1.0
Std #3i	23.7	23.9±0.2	23.3±0.3	23.82±0.01
Iso Trace	110	104±1	102±3	105.0±0.1
NIST 3230 L1	492±6	422±3	405±15	420±4
NIST 3230 L2	0.985±0.012	0.98±0.04	0.99±0.05	
SUERC Z94-0596	63.6	62.6±1.4		
SUERC Z94-0595	450	444±8.1		

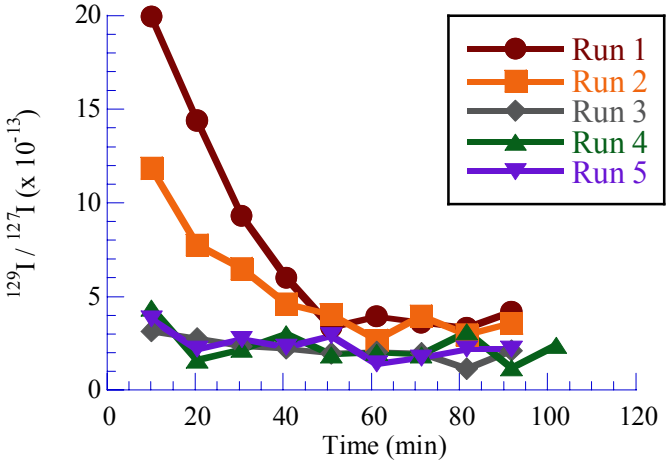


図1、測定時における^{129}I/^{127}Iの変化

3. メモリー効果

図 1 に市販のヨウ化銀を測定した時のヨウ素同位体比の時間変化を示す。ここに示す 5 回の測定結果はそれぞれ異なったカローセルで得られたものである。Run1 測定時では同一カローセル内にヨウ素同位体比が 10^{-10} 以上の試料が全 27 測定試料中 18 個あり、Run2 では全 27 測定試料中 12 個であり、Run3、4、5 では 10^{-10} 以上の試料は無く標準試料を除いて全て 10^{-12} 以下であった。このことから同一カローセル内に濃度の高い試料が存在すると、その試料をセシウムで叩いた際に飛散した試料の一部がイオン源内及び他のターゲットに付着したためではないかと考えている。そこで JAEA AMS Mutsu ではヨウ素同位体比が 10^{-10} 以上のサンプルは測定しないようにしている。

4. 環境中の ^{129}I の起源

環境中の ^{129}I は天然起源と人為起源に大別される。天然起源の ^{129}I は大気中の ^{129}Xe と宇宙線との核反応や ^{235}U の自発核分裂によって生じる。一方、人為起源の ^{129}I は核実験や核燃料再処理工場の稼動によって放出される。またチェルノブイル事故等も微量ではあるが放出源のひとつである。各発生源別の ^{129}I の総量を表 2 にまとめる。

表 2、発生源別 ^{129}I 総量

発生源			kg
天然			240
人為	核実験		50 - 88
	再処理	海洋放出	3690.4
		大気放出	563.9
	チェルノブイル事故		<2

5. 実験方法

海水試料はせきれい 3 号で関根沖(41°23′ N, 141°17′ E)の 2006 年 12 月 15 日及び 2007 年 2 月 20 日に表層海水を採取した。海水を実験室に持ち帰った後、ヨウ素濃度は揮発による濃度減少を防ぐため直ぐに測定した。ヨウ素 129 測定のために海水 1L にキャリアー1mg を加え溶媒抽出法によりヨウ素を抽出した。抽出されたヨウ素は硝酸銀でヨウ化銀として回収し AMS で測定した。詳しい実験方法を図 2 に示す。

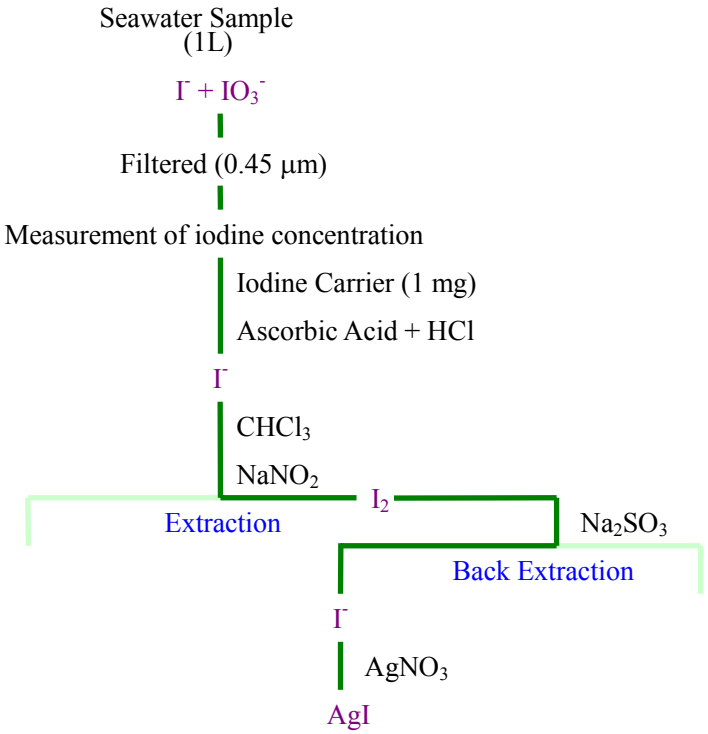


図 2、海水試料からのヨウ素抽出実験

6. 結果及び考察

同じ海水を 3～4 回抽出し AMS で測定した結果を表 3 に示す。繰り返し抽出の結果は誤差範囲内で一致した。

表 3、海水中の ^{129}I ($\times 10^7$ atoms /L)

	2006/12/15	2007/ 2/20
Run 1	1.6±0.2	1.6±0.2
Run 2	1.6±0.2	1.7±0.2
Run 3	1.6±0.2	1.8±0.1
Run 4	1.6±0.3	
Ave.	1.57±0.08	1.77±0.09

この海水中の ^{129}I の起源について考察する。天然起源の $^{129}I/^{127}I=1.5\times10^{-12}$[2]と考えられているので、ヨウ素濃度を掛けることにより天然起源の ^{129}I 濃度を求めた。核実験起源の ^{129}I 濃度は核実験によって同時に核分裂によって発生した ^{137}Cs との比を使うことによって求めた。核分裂収率は 0.21 であり、また堆積物中から 0.29 [3]が観測されているので、$^{129}I/^{137}Cs$ 比を 0.2-0.3 とし、核実験に起源の ^{129}I 濃度を見積もった。海水中の全量から天然起源および核実験起源の ^{129}I を除いたものを再処理工場起源とした。これらの起源別の割合を表 4 に示す。この見積もりによって海水中の再処理工場起源及び核実験起源の ^{129}I の比は 6.3-10.0 となった。人為起源の ^{129}I のうち、大気中に放出された再処理工場起源及び核実験起源の総量の比は 6.4-11 である。我々の見積もり結果と総量から得られた結果は良い一致を示した。大気中のヨウ素は雨水によって取り除かれたり、エアロゾルに付着したりすることにより総量が変化することは考えられるが、大気中のヨウ素は十分混合され、起源別の比率を維持したまま海水に溶け込んだものと考えられる。

表 4、関根沖海水の起源別割合(%)

起源	2006/12/15	2007/2/20
天然	2.3	2.2
核実験	9.7 – 13.3	8.9 – 12.2
再処理工場	84.3 – 88.0	85.6 – 88.9

1) T. Suzuki, T. Kitamura, S. Kabuto, O. Togawa, H. Amano: "High sensitivity measurement of iodine-129 / iodine-127 ratio by accelerator mass spectrometry" J. Nucl. Sci. Technol, 43, (11), p.1431 (2006).

2) U. Fehn, G. R. Holdren, D. Elmore, T. Brunelle, R. Teng, P. W. Kubik: "Determiantion of natural and anthropogenic ^{129}I in marine sediments" Geophys. Res. Lett, 13, (1), p.137 (1986).

3) S. D. Oktay, P. H. Santschi, P. Sharma, J. E. Moran, P. Sharma: "The ^{129}Iodine bomb pulse recorded in Missisippi River Delta sediments: Results from isotopes of I, Pu, Cs, Pd, and C" Geochimi. Cosmochimi. Acta, 64, (6), p.989 (2000).

Measurement of ^{129}I by JAEA AMS MUTSU and application to study of iodine migration.

Takashi Suzuki[(1)], Shoji Kabuto[(1)], Naoki Kinoshita[(1)], Hikaru Amano[(1)], Orihiko Togawa[(2)]

(1) AMS Management Section, Japan Atomic Energy Agency
(2) Research Group for Environmental Science, Japan Atomic Energy Agency

An iodine beam line had been set up at the AMS facility of the Japan Atomic Energy Agency in 2000. After the acceptance test, this beam line has been contributed a variety of research fields. In this paper,

The concentrations of ^{129}I in seawater off Sekine were determined by accelerator mass spectrometry. The fraction of natural origin and anthropogenic ^{129}I is only 2% and 98%, respectively. The nuclear weapons testing origin and nuclear fuel reprocessing origin ratio is estimated to be 6.3 – 10.0 in this seawater. Taking account of its ratio calculated based on total amount of released ^{129}I into the atmosphere, this results indicated a rapid distribution of ^{129}I on a global scale.

2.2 人為起源 ^{129}I の発生源と存在状態

島茂樹[a)]、賀佐信一[a)]、天野光[b)]、長尾誠也[c)]、山本政儀[d)]、百島則幸[e)]、
古川雅英[f)]、木村秀樹[g)]、河村日佐男[a)]
a）（財）日本海洋科学振興財団むつ海洋研究所、
b)日本原子力研究開発機構青森研究開発センターむつ事務所ＡＭＳ管理課、
c)北海道大学大学院、d)金沢大学自然計測応用研究センター、
e)九州大学アイソトープ総合センター、f)琉球大学理学部、g)青森県原子力センター

１．　緒言

来年春には、我が国初の商用大型再処理施設が青森県六ヶ所村で本格操業を迎える。これに伴ない海洋へ放射性核種が定常的に放出される。しかし、Moran ら[1)]によると、米国では、欧州の再処理施設から大気を経由して輸送された ^{129}I が降下しているとされている。こため、日本各地における天水中の ^{129}I 濃度レベルおよび季節変動を明らかにし、その寄与のを明らかにすることは、六ヶ所村からの影響を正しく見積もる上で重要である。一方、全球的なヨウ素の循環モデルによれば、海洋の混合層内に存在するヨウ素の一部(1％程度)は、I_2 あるいは有機態ヨウ素として海洋上の大気へ供給されると言われており、海洋での人為起源のヨウ素の挙動を考える上でも、^{129}I の海洋中での化学形を明らかにすることも必要となる。

本報告では、主として海洋における ^{129}I に関する文献調査を実施し、その発生源の可能性の検討を行うとともに、予備的に実施した測定結果について述べる。

２．　解析方法および分析方法

文献調査は、天水関係並びに日本周辺海洋を対象に実施した。ヨーロッパの再処理工場からの大気を経由した ^{129}I 輸送経路解析は、アメリカ海洋大気管理局（NOAA）より公開されている、HYSPLIT4 model を用いて行った。2000 年 1 月 1 日から 1 年間、毎日 10 時に英国 Windscale とフランス 1 a　Hague の再処理工場から ^{129}I が放出されるものとし、それぞれ 10 日後の移動位置を調べた。

海水試料は六ヶ所村沖合にて、雨水試料はむつ市にて採取した。^{129}I は、賀佐ら[2)]の方法によってΓに還元し濃縮し、前処理を行い、AMS 測定用ターゲットピースに詰め、JAEA-AMS-MUTSU で測定した。海水試料では、上記のような前処理を行った AMS 測定用試料と、ヨウ素をΓに還元せずに濃縮し前処理を行った AMS 測定試料も併せて調整した。この両者の測定結果およびその差から、IO_3^- 並びにΓとした。安定ヨウ素はイオンクロマトグラフ法によって定量した。

３．　結果と考察

Shima ら[3)]よると、2000-2001 年に六ヶ所村周辺海域で採取された再処理施設操業前の海洋における ^{129}I の鉛直分布は、表層から 27.0 σ_T 付近（水深では約 600 m）まで、約 2×10^7 atoms/l とほぼ均一な分布を呈していた。この分布パターンはグローバルフォールアウトのひとつである ^{14}C とほぼ同様な傾向を示しており、^{129}I の海洋への供給が主として大気からによるものと考えられる。一方、日本海でも、^{129}I 濃度レベルは六ヶ所村沖と同じレベルであるが、水深 3000 m 近くまで達している[4)]。これは冬季に表層海水が冷却され、深層へ沈み込むことによる。

日本周辺の北西太平洋およびグローバルフォールアウトの起源となった米国の核実験場（ビキニ環礁）周辺での海水中 ^{129}I 濃度は、表層では六ヶ所村沖とほぼ同じであるが、実験場周辺では、六ヶ所村沖とは異なり水深数千メートルまで ^{129}I が達しており、実験時に発生した粒子とともに沈降したことを示しているようである[5)]。

一方、グローバルフォールアウトの代表核種である ^{137}Cs の原子数に対する ^{129}I の比を計算すると、六ヶ所村沖では表層で約 5、下層で約 10 近い値となり、Beasley ら[6)]によって評価されたグローバルフォールアウトの値(1994 年時点で 0.49)より一桁高かった。その他の海域でも六ヶ所村沖と同じような I/Cs 比の傾向が見られ、核実験起源以外のソースの可能性が伺える。

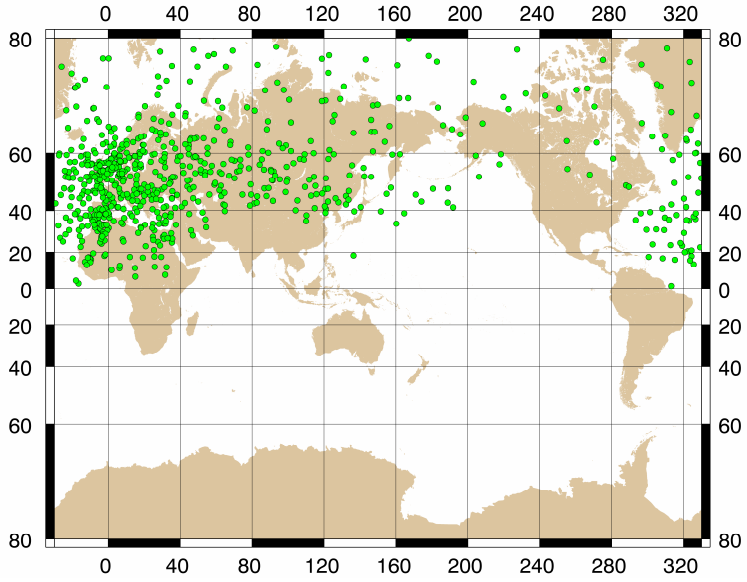


図 1　英国およびフランス大の再処理施設から大気中に放出された空気の 10 日後の前方流跡線解析による到達地点(1 年間)

核実験による負荷量を上回る ^{129}I が、英国およびフランスの再処理施設から大気並びに海洋に放出されている(2000 年時点)[7)]。核実験および 1952 年から 2000 年までに再処理施設から大気に供給された ^{129}I（$3. \times 10^{27}$ atoms）がほぼ全球に均一に分散した仮定した場合、地球表面へのインベントリは約 6×10^{12} atoms/m^2 となる。この値は、六ヶ所村沖水深 1500 m 地点までの水中および堆積物中への全インベントリとほぼ一致した。ビキニ環礁周辺では、水中インベントリのみでこの値の 2 倍となり、核実験時の直接的な寄与が考えられる。一方、ヨーロッパの施設から海洋への放出量は、大気に比べ数から数十倍多く、その影響は北極海などで観測されており、表層海水循環などのトレーサとして利用されている。太平洋と北極海はベーリング海峡によってつながっているが、そこでの基本的な流入出状況は太平洋の海水が北極海へ流入する状態である。このことは、Copper らのベーリング海峡周辺における ^{129}I 測定結果からも太平洋側の ^{129}I 濃度が上昇していないことから伺える[4)]。このため、主たる I の寄与は大気を経由してきたものと考えら得る。そこで、NOAA が提供する空気の流跡線解析プログラムによる経路解析を実施した。図 1 は英国およびフランスから放出された 10 日後の大気の位置を 1 年間分示したものである。この結果から明らかなように日本周辺へもヨーロッパの再処理工場からの影響を少なからず受けているが理解できる。

予備的に測定した雨水中の ^{129}I 濃度を、諸外国で測定された事例も併せて表 1 に示す。一例ではあるが、我が国の雨水中の濃度は表層海水中に比べ一桁高く、その結果は、先に示した大気の流跡線解析とも概ね一致しているようである。

表１　雨水中の ^{129}I 濃度

地域	^{129}I 濃度　(atoms/L)	備考
むつ	$13\pm0.3\times10^{7}$	本研究, 2006
北欧	10^{8}～10^{10}	Buraglio et al.[8], 2001
米国	$0.6\sim7\times10^{7}$	Moran et al.[1], 1999

海水のヨウ素は、IO_3^-として存在することが熱力学的には安定であるが、微生物の活動、化学反応などによってかなりの量の I^-として存在する。また、I^-は海水中の有機物と反応して揮発性の有機ヨウ素化合物を生成し、大気へ揮散すると言われている[9]。このため、海水中に放出された ^{129}I の化学形が問題となる。今回は、ヨウ素の無機態の化学形について予備的な測定を行い、表２に示すような結果を得た。表層海水中の ^{129}I はほぼ I^-として存在しており、海水中から大気への揮散の可能性も考えられる。

表２　表層海水中の ^{129}I の存在形態

No.	形態	^{129}I 濃度　(atoms/L)	備考
①	無機態	$1.7\pm0.2\times10^{7}$	試料を還元し濃縮、測定（IO_3^-+I^-）
②	I^-	$1.3\pm0.3\times10^{7}$	試料を還元せずに濃縮
③	IO_3^-	$4\pm4\times10^{6}$	①-②

４．結言

我が国初の商業再処理施設の本格稼動に向け、その施設が建設されている六ヶ所村周辺海域あるいはその海域に影響を与える海水中 ^{129}I 濃度について、文献調査を実施し、その現状などについて検討した。さらに、ヨーロッパを発生源とする人為起源 ^{129}I の飛来の可能性について、大気の前方流跡線解析を行った。また、雨水中の ^{129}I 濃度および海水中での無機態ヨウ素の化学形について、予備的な測定も行った。

これらの予備的な結果から六ヶ所村沖の海水中の ^{129}I は、英仏の再処理施設の影響を受けていること、雨水中の ^{129}I 濃度は、海水より 1 桁高いこと、表層海水中の ^{129}I はほぼ I^-として存在が明らかとなった。今後、このような測定事例を増すとともに、有機態ヨウ素を含めた人為起源の ^{129}I の挙動を明らかにする必要がある。

本研究の一部は、青森県からの基金の運用益により行われた。

参考文献

１) J. E. Moran, S. Oktay, S., P. H. Santschi, D. R. Schink, Atmospheric dispersal of ^{129}Iodine from nuclear fuel reprocessing plants, Environmental Science and Technology 33, pp.2536-2542 (1999).

２) 賀佐 信一; 澤藤 奈都子; 甲 昭二; 木下 尚喜; 天野 光; 河村日佐男、溶媒抽出法を用いた加速器質量分析法による海水中 ^{129}I の定量 Radioisotopes 56(4), pp.155-162 (2007).

3) S. Shima, S. Gasa, K. Iseda, T. Nakayama, H. Kawamura, Distribution of anthropogenic in the water column off Rokkasho, JAPAN. In: P.P. Povinec, J.A. Sanchez-Cabeza, (Eds) Radionuclides in the environment: International Conference in Isotopes in Environmental Stuides - Aquatic forum 2004,

25-29 Oct, Monaco. Elsevier. Amsterdam, pp. 83-95 (2006).
4) L.W. Coopper, G.H. Hong, T.M Beasley, J.M. Grebmeier, Iodine-129 Concentrations in Marginal Seas of the North Pacific and Pacific-influenced Waters of the Arcitc Ocean. Marine Pollution Bulletin 12, pp.1347-1359 (2001).
5) IAEA-MEL, 2001. Cruise report of IAEA-MEL 1995-1999. IAEA-MEL01/2001.
6) T. Beasley, L.W. Cooper, J. M. Grebmeier, K. Aagaard, J.M. Kelley, L.R. Kilius, $^{237}Np/^{129}I$ Atom Ratios in the Arctic Ocean: Has ^{237}Np from Western European and Russian Fuel Reprocessing Facilities Entered the Arctic Ocean? Journal of Environmental Radioactity, 39(3), pp.255-277 (1998).
7) V. Alfimov, Accelerator Mass Spectrometry of ^{36}Cl and ^{129}I: Analytical Aspects and Application, Digital Comprehensive Summaries of Uppsala Dissertations from the Faculty of Science and Technology 1, pp.90 (2005).
8) N. Buraglio, A. A. Aldahan, G. Possnert, I. Vintersved 129I from the Nuclear Reprocessing Facilities Traced in Precipitation and Runoff in Northern Europe, Environ. Sci. Technol.35, pp.1579-1586 (2001).
9) Chester, R., 2003. 2nd ed. Marine geochemistry. Blackwell Publishing, Oxford, UK, pp.506. (2003).

Origin and Chemical Speciation of Anthropogenic Iodine-129

S. Shima[a)*], S. Gasa[a)], H. Amano[b)], S. Nagao[c)], M. Yamamoto[d)], N. Momoshima[e)],
M. Furukawa[f)], H. Kimura[g)], H. Kawamura[a)]
a） Japan Marine Science Foundation, b)Japan Atomic Energy Agency,
c) Hokkaido University, d) Kanazawa University, e) Kyushu University,
f)University of Ryukyus, g) Aomori Prefectural Nuclear Power Safety Center

* Corresponding author: e-mail; hima@jmsfmml.or.jp

Concentrations of ^{129}I in surface seawater around Japan were approximately 2×10^7 atoms/*l* in literatures. However, the atomic ratio of iodine to cesium was ten times as high as that of the global fallout. The origin of ^{129}I in the water columns seems to be difficult to be explained by only the global fallout. Discharge from European plants was one of possible origins of iodine from the standpoint of air mass trajectory analysis. Concentration of ^{129}I in rain water was 10 times higher than that in surface seawater. Anthropogenic inorganic iodine in surface seawater predominantly dissolved as an iodide ion (I^-).

2.3 AMS を用いた土壌中 ^{129}I 濃度分析法に関する検討

國分　祐司、中野　政尚、武石　稔

日本原子力研究開発機構　東海研究開発センター　核燃料サイクル工学研究所
放射線管理部　環境監視課

１．はじめに

^{129}I は、半減期約 1570 万年、再処理に伴って環境中へ放出される。東海再処理施設の安全審査にて、20 年間土壌に蓄積したとしても環境中の濃度は極めて小さく、放射化学的分析法では検出出来ない濃度であるとの評価を得た。しかし、原子力安全委員会から補足的調査として、分析法の開発も含めた環境中 ^{129}I の挙動等に関する調査が要請された。そこで、核燃料サイクル工学研究所では、中性子放射化分析（以下 NAA と記す）による分析法を開発、土壌中 ^{129}I 濃度を定期的に測定し、同委員会に報告してきた。土壌中 ^{129}I 濃度は最大でも 10^{-2}Bq/kg 乾土のレベルと極めて低いことが確認されたが、安全審査のモデルでは想定していない減少効果が示唆された。このため土壌間隙水中の ^{129}I 濃度や鉛直分布、水平分布を更に調査し、安全審査モデルの高度化に資することが重要となった。しかし、間隙水やコア試料中の ^{129}I 濃度は更に低く、NAA による測定では検出感度が十分とは言えない。加速器質量分析法[1)]（以下 AMS と記す）は NAA に比べて、3 桁程度検出感度が良く同時に多試料の測定が可能と報告されている。そこで、AMS 測定用試料作製法を検討するとともに、AMS で得られた測定値と NAA で得られた測定値を比較、検討したので報告する。

２．AMS と NAA の特徴の比較

AMS と NAA の特徴の比較を表 1 に示す。NAA の検出限界は、^{129}I／^{127}I 原子数比で 10^{-9} から 10^{-10}、最適条件は、燃焼時の安定ヨウ素量が 0.5～1.0mg 以上必要である[2) 3)]。また、試料を作成する際に、石英アンプルに封入するなど分析技術者の熟練が必要である。加えて、1 度に数試料程度しか原子炉にて中性子照射できないことから、多数の試料の分析に時間を要するとともに、NAA は被ばくのおそれもある。一方、AMS は、検出限界が ^{129}I／^{127}I 原子数比で 10^{-13} 以下と NAA と比較して約 1000 分の 1 以下である。さらに、試料作製が比較的簡便であり、また同時に多試料の測定が可能である。ただし、最適測定範囲が 10^{-10}～10^{-12} であり、表土等の試料（10^{-8}～10^{-9}）を測定するには、安定ヨウ素（^{127}I）によって原子数比を希釈する必要がある。

表 1. AMS と NAA の特徴比較

	AMS	NAA
検出限界（^{129}I／^{127}I 原子数比）	10^{-13} 以下	10^{-9}～10^{-10}
最適条件	原子数比で 10^{-10}～10^{-12}	0.5～1.0mg 以上（燃焼時の安定ヨウ素量）
試料作製	比較的簡便	熟練した技術が必要
1 回当たり測定数	最大で 59 試料	数試料程度
作業員の被ばく・汚染	なし	可能性あり

３．分析および測定方法

3.1 [中性子放射化分析法]

NAA による土壌中 ^{129}I の分析フローの概略を図 1 に示す。採取した土壌を 70 度で乾燥、2mm メッシュでふるいかけ後、土壌約 100 g を採取し、専用の燃焼装置内で燃焼、ヨウ素を活性炭に捕集後、溶媒抽出により精製、石英サンプル内に捕集した。その後、石英アンプルを原子炉（JRR-3 又は JRR-4）にて中性子を照射、安定ヨウ素である ^{127}I を ^{126}I へ、分析対象である ^{129}I を ^{130}I へ変換した。再度、溶媒抽出で精製後、AgI 沈殿を作製、^{126}I からの 389keV および ^{130}I からの 536keV のγ線を Ge 半導体検出器で測定した[4]。本法を用いての検出限界は、$^{129}I/^{127}I$ 原子数比で 10^{-9} から 10^{-10} であった。

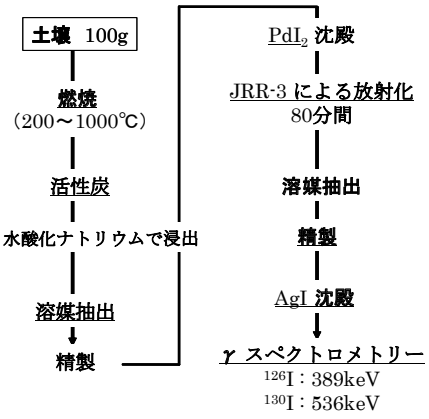


図 1. NAA の分析フロー（概略）

3.2 [加速器質量分析法]

AMS による土壌中 ^{129}I の分析フローの概略を図 2 に示す。3.1[NAA]同様に、土壌を前処理後、約 10 g を NAA 同様専用の燃焼装置内で燃焼、ヨウ素を活性炭に捕集した後、水酸化ナトリウムで浸出した。$^{129}I/^{127}I$ 原子数比を 10^{-10} から 10^{-12} の最適条件の範囲に調整するため浸出液に原子数比希釈用 ^{127}I を添加した。その後、溶媒抽出により、ヨウ素を精製し、最終的に AgI 沈殿とした。乾燥後、熱伝導度と電気伝導率をあげるため、重量比で約 2.5 倍の Nb と混合、ターゲットピースに充填し、原子力機構むつ事務所に設置されているタンデトロン加速器質量分析装置で測定した。

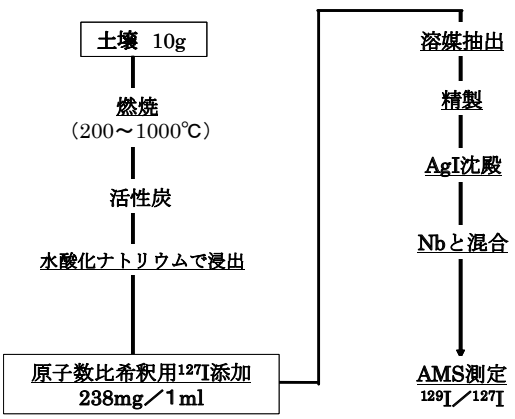


図 2. AMS の分析フロー（概略）

４．$^{129}I/^{127}I$ 原子数比計算方法

AMS で測定された希釈後試料の $^{129}I/^{127}I$ 原子数比から希釈前の $^{129}I/^{127}I$ 原子数比計算方法を図 3 に示す。未知数である希釈前試料の ^{129}I 量は、ICP-MS 測定で得られた試料の ^{127}I 量と添加した原子数比希釈用 ^{127}I 量の合計に AMS 測定で得られた希釈後試料の $^{129}I/^{127}I$ 原子数比をかけて求めた希釈後試料中 ^{129}I 量から B.G として含まれる原子数比希釈用 ^{129}I 量を

^{129}I量の計算方法

AMS測定による希釈後試料の$^{129}I/^{127}I$原子数比 ：Xs
AMS測定による原子数比希釈用ヨウ素の$^{129}I/^{127}I$原子数比 ：Xc
ICP-MS測定による試料の^{127}I量 ：Ms_{127}（mg）
原子数比希釈用 ^{127}I量 ：Mc_{127}（mg）
原子数比希釈用ヨウ素中の^{129}I量 ：Mc_{129}（mg）
試料中の^{129}I量（未知数） ：Ms_{129}（mg）
とすると、

$$Xs = \frac{Ms_{129} + XcMs_{127}}{Ms_{127} + Mc_{127}}$$

ゆえに、未知数である希釈前試料の^{129}I量（mg）は、

$$Ms_{129} = Xs(Ms_{127} + Mc_{127}) - XcMs_{127}$$

$$^{129}I/^{127}I\text{原子数比} = \frac{Xs \cdot (Ms_{127} + Mc_{127}) - XcMs_{127}}{Ms_{127}}$$

図 3. $^{129}I/^{127}I$ 原子数比計算方法

引いて求めた。従って、$^{129}I/^{127}I$ 原子数比は、希釈前試料の ^{129}I 量（mol）を ICP-MS で測定した試料の ^{127}I 量（mol）で割ることにより算出した。

５．AMS と NAA 結果比較

AMS で測定した東海再処理施設周辺の土壌中 $^{129}I/^{127}I$ 原子数比は、1.2×10^{-8}～8.2×10^{-8}、^{129}I 濃度は（3.4～17）$\times10^{-3}$（Bq/kg）であった。これらの濃度は、安全審査の評価式を用いた予測濃度の範囲内であり、また、大気圏内核実験フォールアウト起源の土壌中 ^{137}Cs 濃度と比べると数 100 分の 1 と極めて小さく環境安全上問題となるような濃度ではなかった。

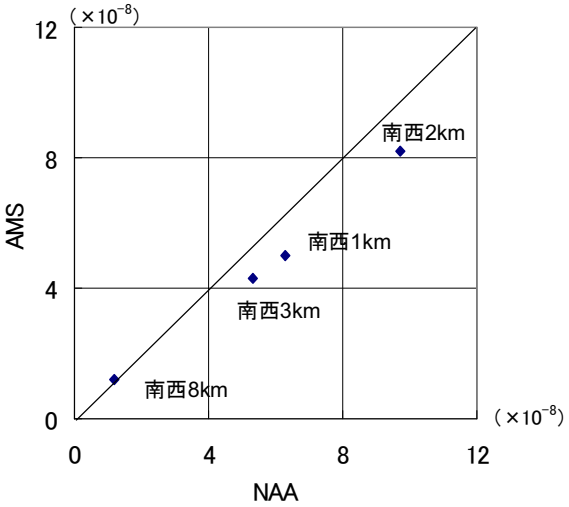


図 4. 分析法による土壌中 $^{129}I/^{127}I$ 原子数比の比較

分析法による土壌中 $^{129}I/^{127}I$ 原子数比の比較（主排気筒からの方位・距離）を図 4 に示す。$^{129}I/^{127}I$ 原子数比は、概ね一致したが、NAA に比べて最大で 2 割程度小さな値となった。これは、（１）燃焼後に原子数比希釈用 ^{127}I を加えたため、燃焼前のヨウ素回収率を 100%と仮定したこと、（２）水酸化ナトリウムで浸出後に原子数比希釈用 ^{127}I を添加したことなどによると考えられる。

６．回収率の検討

1985 年に報告した“環境試料中の ^{127}I 及び ^{129}I の中性子放射化分析法”[3)]における ^{129}I 分析工程の回収率を表 2 に示す。燃焼工程は試料を酸素気流中で燃焼し活性炭に吸着した時点までの回収率を示す。33 件の試料について集計した結果、回収率の範囲は 74～100%であり平均 91.3%を示していた。浸出工程は、焼き出し後の活性炭を水酸化ナトリウムで溶離する時点までの回収率を示す。超音波洗浄器で 3～4 時間浸出することにより平均 97%と良好に浸出出来ることが確認されている。

表 2. NAA における回収率[3)]

分析工程(NAA)	回収率(%)
燃焼工程	74～100 (91.3±5.8)
浸出工程 (20% NaOHaq)	94～99 (97.3±2.3)

表 3. AMS における回収率

分析工程(AMS)	回収率(%)
全工程	79～100

本検討結果から計算された、AMS の回収率を表 3 に示す。試料数が 4 件と少ないが 79～100%となり、1985 年の結果と概ね一致した。また、浸出工程では、ほとんど減少がないことから、本条件で分析、計算した結果では、５．AMS と NAA 結果比較で示した燃焼時の回収率が 100%でないとの推察が正しい可能性が示唆された。

７．まとめ

AMS を用いた土壌試料中 ^{129}I 濃度の分析法について検討した結果を以下に示す。

(1) AMS の測定結果から計算された $^{129}I/^{127}I$ 原子数比は（1.2～8.2）$\times 10^{-8}$、^{129}I 濃度は（3.4～17）$\times 10^{-3}$（Bq/kg）であり、大気圏内核実験フォールアウト起源の ^{137}Cs 濃度と比べると数 100 分の 1 と極めて小さい値であった。

(2) AMS と NAA から得られた $^{129}I/^{127}I$ 原子数比を比較した結果、概ね一致したが、AMS の原子数比は NAA に比べて最大で 2 割程度小さな値となった。

(3) AMS 測定では、ターゲット試料作成工程の回収率を用いて補正することで、より正確な原子数比を計算できることが示唆された。

今後、AMS を用いて土壌間隙水中 ^{129}I 濃度や鉛直分布、水平分布を調査し、安全審査における環境評価モデルの高度化に資する予定である。

[参考文献]

1）鈴木崇史、北村敏勝、甲昭二、外川織彦、木下尚喜、天野光、「加速器質量分析装置ヨウ素ラインの性能」、JAEA-Technology 2006-018（2006）.

2）L. L. OLIVER, R. V. BALLAD and O. K. MANUEL, “^{129}I IN MISSOURI THYROIDS”, Health Phys., Vol.42, No.4, pp.425-432（1982）.

3）武石稔、並木篤、片桐裕実、石田順一郎、野村保、岩井誠、「環境試料中の ^{127}I 及び ^{129}I の中性子放射化分析法」、PNC-TN843 85-39（1985）.

4）渡辺均、清水武彦、住谷秀一、森澤正人、森田重光、吉田美香、中野政尚、飛田和則、「東海事業所標準分析作業法－周辺環境管理編－」、PNC-TN8520 94-009（1994）.

A study on analysis of ^{129}I concentration in soil by AMS

Y. Kokubun, M. Nakano and M. Takeishi

Environmental Protection Section, Radiation Protection Department,
Japan Atomic Energy Agency

Iodine-129 concentration and $^{129}I/^{127}I$ atom ratio in soil sample were used to be carried out by the neutron activation analysis (NAA). The recent development of the accelerator mass spectrometry (AMS) in JAEA Mutsu makes it possible to measure about 3~4 digits lower level of ^{129}I. Additionally, the AMS has great advantages, such as the number of sample measurement, the easier sample preparation, etc., comparing with NAA. The trial measurement for soil sample by AMS confirmed that the atom ratio by AMS reasonably agreed with that by NAA , nevertheless it was about 20% lower than that of NAA at maximum.

2.4 地下水のヨウ素同位体比分析のためのヨウ素抽出法の検討

窪田卓見[(1)]、中野(太田)朋子[(1)]、天野光[(2)]、鈴木崇史[(2)]、馬原保典[(1)]

(1) 京都大学 原子炉実験所
(2) 日本原子力研究開発機構 青森研究開発センター AMS 管理課

1. 序論

環境中のヨウ素分析において、年代が古く I-129 の同位体比の低い試料を取り扱う際には、人工起源(核実験や再処理工場など)由来の汚染の影響を考慮する必要がある。さらに地下水試料などヨウ素濃度が低いものは採取量が増加するため汚染を受けやすくなる。先行実験として、I-129 の同位体比が低いとされる千葉県茂原市のかん水試料(高ヨウ素濃度)を京都大学原子炉実験所(京大炉)内の実験室で処理を行ない分析したところ、予測される同位体比の数十倍程度の値を得た。この汚染の原因が塩素含有試薬であることが示唆されたため、ハロゲンを含有しない抽出法の検討を行なった。また、他の汚染源についての検討を行なうため、複数の処理条件下にて測定試料を調製し分析を行なった。

2. 実験方法

2.1 汚染源の探索

実験室環境の影響を検討するため、京大炉の化学実験室および総合地球環境学研究所(地球研)のクリーンルームにて AgI 調製を行なった。京大炉では、窒素雰囲気下の簡易グローブボックス内で処理を行ない、その効果を調べた。図 1 に京大炉および地球研の所在地を示す。京大炉は、海岸より約 5km 離れた場所にある原子炉施設で、化学実験室は建築後 43 年経過した建物の中にある。一方、地球研は海岸より約 50km 離れた山林の中にあり、クリーンルームは建築後 3 年未満の建物の中にある。

和光純薬の NaI および千葉県茂原市にて採取したかん水試料を用いて AgI を調製した。調製手順に由来する汚染の影響を検討するため、以下 3 通りの手法によりヨウ素を精製した。(1)イオン交換処理、溶媒抽出処理、AgI 調製。(2)溶媒抽出処理、AgI 調

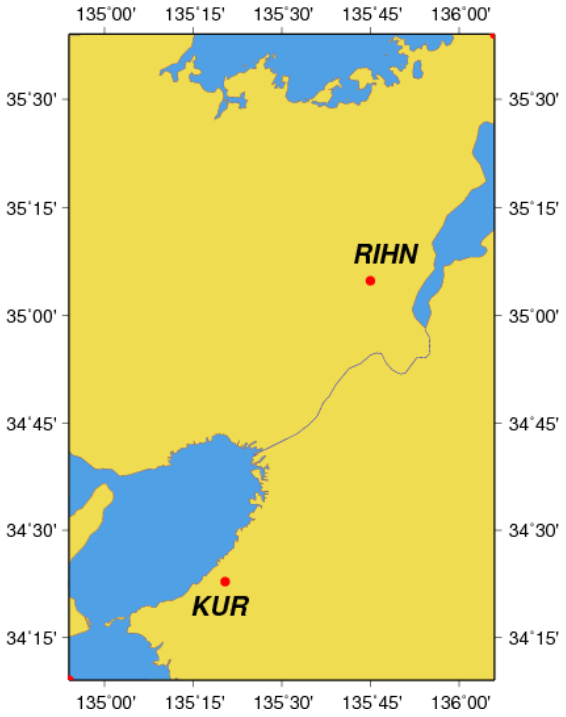


図 1 京大炉(KUR)および地球研(RIHN)の所在地

製。(3)精製処理をせずに AgI 調製。抽出処理に使用した試薬を表 1 に示す。調製した AgI を Nb 粉末と混合し、JAEA AMS Mutsu にてヨウ素の同位体比測定を行なった。

2.2 ハロゲンを含有しない抽出系の検討

ハロゲンを含有しない抽出系の検討において、ヨウ素の挙動を容易に把握するために、γ 放射体の I-126(半減期 13.1 日)を用いた。この核種は、京大炉 LINAC において、安定ヨウ素(NaI)に光子を照射することで製造した。ハロゲンを含まない抽出法において使用した試薬を表 1 に示す。各処理におけるヨウ素の回収率を測定するため以下の実験を行なった。陰イオン交換樹脂を NO_3 型に調製し、0.4% NaI 溶液または 3.3% NaCl - 0.4% NaI 溶液からのヨウ素の吸着および 3.3% NaCl 溶液または 5 M $NaNO_3$ 溶液によるヨウ素の溶離について検討を行なった。溶媒抽出における有機相としてドデカンとクロロホルムの比較を行なった。水相中の NaI を $NaNO_2$ および HNO_3 により I_2 に調製することで有機相への正抽出を行ない、0.1 M NaOH によりヨウ素の逆抽出を行なった。水相および有機相の体積はそれぞれ 10 ml とした。有機相から逆抽出したヨウ素に $AgNO_3$ を添加し、生成した沈殿中に共存する Ag_2O を HNO_3 で溶解し AgI を調製した。沈殿物中のヨウ素回収率を測定するため、AgI 沈殿を $Na_2S_2O_3$ 溶液で溶解して放射能測定に供した。

表 1 抽出処理に用いた試薬の比較

	同位体比分析 汚染源の探索	I-126 を用いた実験での手法 抽出法検討
陰イオン交換樹脂	Cl 型	NO_3 型
溶離剤	NaClO+$NaNO_3$	5 M $NaNO_3$
I_2 調製	H_2O_2, NH2OHHCl	$NaNO_2$
有機溶媒	$CHCl_3$	ドデカン($C_{12}H_{26}$)
水相	$NaHSO_3$, NaCl	0.1M NaOH
AgI 調製	$AgNO_3$, NH_4OH	$AgNO_3$, HNO_3

3. 結果と考察

3.1 同位体比測定と汚染源の探索

京大炉にて複数の条件下にて調製した AgI の同位体比を図 2 に示す。和光純薬のヨウ素およびかん水のヨウ素同位体比として、これまでに報告された値はそれぞれ 1.88×10^{-13}[1](ただし、文献中では KI を分析)および 1.70×10^{-13}[2]であるのに対し、京大炉で処理した試料では、十～数十倍高い値となった。イオン交換処理を施した場合の値が高いことより、Cl 型に樹脂を調製することが原因であると推測し、新たにハロゲンを含有しない抽出系の検討を行なったが、その結果については後述する。また、簡易グローブボックスの使用により汚染が低減することはなかった。

京大炉と地球研における処理の結果の比較を図 3 に示す。出発物質が NaI である場合は、地球研での結果は、京大炉での結果と同じように、イオン交換樹脂の処理を施すことで同位体比が増加する結果を得た。また、処理工程が同じ場合には、地球研で処理を行なったものの方が低い同位体比を示すことより、京大炉の実験室環境も汚染の原因の一つであることが分かった。出発物質

をかん水とした場合は、処理方法・実験室環境に係らず高い同位体比を示し、保管中にかん水が汚染したものと推測できる。

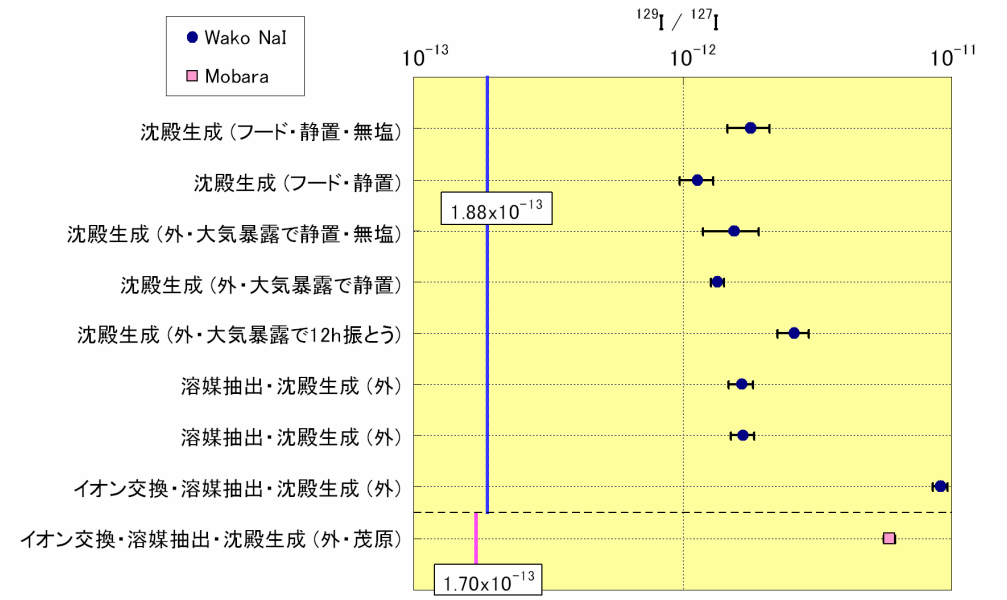


図 2 京大炉での結果

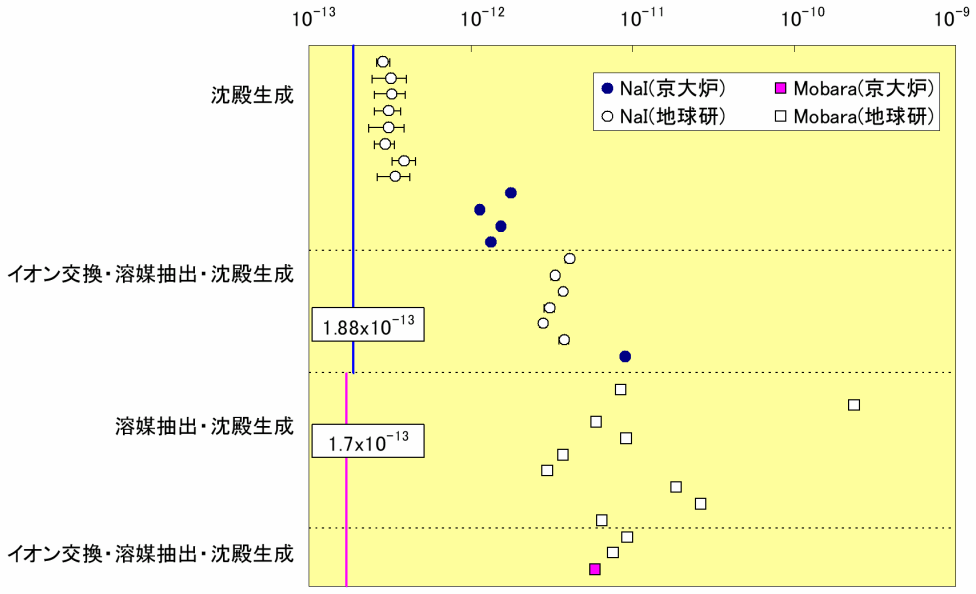


図 3 地球研と京大炉との比較

3.2 ヨウ素抽出法の検討

各処理における回収率を表2に示す。NO_3型陰イオン交換樹脂のヨウ素の吸着・溶離挙動は、バルク溶液の塩化物濃度が海水程度（3.3% NaCl）であっても影響を受けなかった。ドデカンによる溶

媒抽出は、クロロホルムによる溶媒抽出と同等の結果を得た。逆抽出後の NaOH 溶液からの AgI 調製では、90%弱のヨウ素を回収できた。これらのことより、ハロゲンを含有しない試薬を用いたヨウ素抽出法において、総ヨウ素量の 80%以上を AgI として回収できる。

今後は、本手法の適性を確認するために大体積の溶液からのヨウ素抽出を行ない、海水および地下水の実試料中のヨウ素分析を行なう計画である。

表 2 各抽出処理工程における回収率

	回収率
イオン交換	~100%
正抽出	97%
逆抽出	93%
AgI 生成	82~88%

[1] Y. Takada, Y. Muramatsu, H. Matsuzaki, K. Kato: "Analysis of I-129 by AMS in soils samples collected from Japan", Proc. of the Seventh Workshop on Environmental Radioactivity, pp.235-241 (2006)

[2] Y. Muramatsu, S. Yoshida, U. Fehn, S. Amachi, Y. Ohmomo: "Studies with natural and anthropogenic iodine isotopes: iodine distribution and cycling in the global environment" Journal of Environmental Radioactivity 74 pp.221–232 (2004)

Investigation on extraction methods of environmental iodine

Takumi Kubota(1), Tomoko Nakano-Ohta(1), Hikaru Amano(2), Takashi Suzuki(2), Yasunori Mahara(1)

(1) Research Reactor Institute, Kyoto University,
(2) AMS Management Section, Japan Atomic Energy Agency

In analysis of environmental iodine, samples containing low I-129 and low iodine amount are subject to contamination from reagents and apparatus. We measured the isotopic ratio of I-129/I-127 in brine that was collected at Mobara in Chiba prefecture and was characterized as having a high iodine concentration and a low isotopic ratio. The results, however, showed high isotopic ratios. We suspected that the contamination was caused by using halogen containing reagents because the samples treated with Cl-form anion exchange resin in iodine extraction process were strongly contaminated. In this study, we have conducted halogen-free extraction processes such as ion exchange and solvent extraction whose recovery has been investigated with gamma spectrometry of I-126 produced through photonuclear reaction with the KURRI LINAC. The total iodine recovery through ion exchange with NO_3-form anion exchange resin and solvent extraction with dodecane was more than 80%. To investigate contamination from laboratory environment, we have compared AgI samples prepared at KURRI and at another laboratory apart from KURRI.

3. AMS による ^{14}C 測定とその応用

3.1 下北半島における完新世の海水準微変動
－主に田名部平野の縄文海進と自然環境－

奈良　正義

下北自然史研究会

１．はじめに

日本の海水準は約 2 万年前の最終氷期極相期（ステージ 2）にもっとも低下し、晩氷期から後氷期の急速な温暖化にともなって急速に上昇した。その速さは約 6000 年前までは 1m／100 年にも達する。このような急速な海水準上昇は、下北半島北部海岸の隆起地域でさえも海底林が形成されている。（藤井・奈良他 2006）

しかし、この急速に上昇した海面は、現在が最高海面であるという説と約 6000 年前に現在に近い高さに達したという説がある。さらに後者は海進高頂期以降に何回かの小さな変動があるというのとそうでないものとに分かれる。そして各地域ごとに異なる後氷期の海水準変化曲線が描かれている。

田名部平野の地下にみられる海成沖積層から採取された貝化石の ^{14}C 年代測定を行った結果約 6400～5500 年前の縄文海進最盛期のものであることがわかり、当時の海水準を知ることができた。あわせて生息年代の明らかになった貝化石の示す貝類群集組成や同時期に田名部平野周辺の台地上につくられた縄文貝塚の貝類組成を対応させ、田名部平野の環境変化についても述べる。

２．田名部平野における貝化石の ^{14}C 年代

田名部平野は奥羽脊梁山脈の延長である西部山地（恐山山地）と東部の低い山地からなる下北丘陵との間にある低地帯である。この低地帯には下北丘陵に水源をもつ田名部川流域で半島でもっとも大きい沖積平野である。

田名部川は感潮河川でかつては洪水等による氾濫常習河川であった。そのため放水路である新田名部川がつくられたり、河川改修工

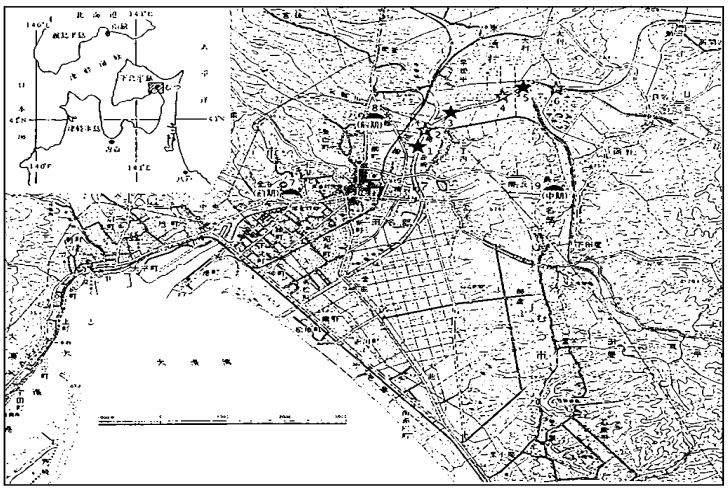


図1　下北半島田名部平野における海成沖積層貝化石の産出地点と縄文貝塚
★：14C年代試料採取地点(Sites 1,3,5),
☆：貝化石採取地点(Sites2,4,6),
●：縄文貝塚遺跡(7：金谷貝塚,8:女館貝塚,
9：最花貝塚)
（松島・奈良 1987）

事が行われてきた。平野の地下には海成沖積層が、広く分布し貝化石が産出する。

田名部平野からの貝化石採取地点は図 1 の Sites1～6、そのうち Sites1、3、5 は ^{14}C 年代試料採取地点でもある。

それぞれの ^{14}C 年代測定値は

Ｓｉｔｅｓ１　５，４８０±１２０ｙ．Ｂ．Ｐ
３　５，９２０±１３０ｙ．Ｂ．Ｐ
５　６，３７０±１９０ｙ．Ｂ．Ｐ

Sites1 は新田名部川河口から約 4.5km 上流、3 は 5.5km、5 は 6.8km 上流に位置する。低地の奥地ほど古くなり、これらの貝層は縄文海進最盛期のものである。現在の大湊湾に対して、縄文海進によって田名部川低地に海水が進入して、形成されたおぼれ谷型の内湾を古大湊湾と名付ける。復元された古大湊湾は ^{14}C 年代値と地理的な位置から、湾奥より徐々に縮小してきた。

３．田名部平野における海成沖積層の高度について

田名部川河川改修工事によって出現した河川法面・河床などの地質断面から、田名部平野の地質は上から表土の黒褐色土・黒色泥炭～暗褐色泥炭質泥層（木片等含む）～暗灰色泥層（横への変化がある）その下に貝化石を含む青灰色～暗灰色砂質シルトからなる。この砂質シルト層はボーリング資料から 12m 以上ある。

図 2 は図 1 で示した Sites1,3,5 の地質柱状図である。Site1 から貝化石を含む海成層の上限高度は海抜 1.8m、Site3 は 2.3m、Site5 からは 1.8m であるから、海成層の上限高度は約＋2.0m 付近にあったと考えられる。

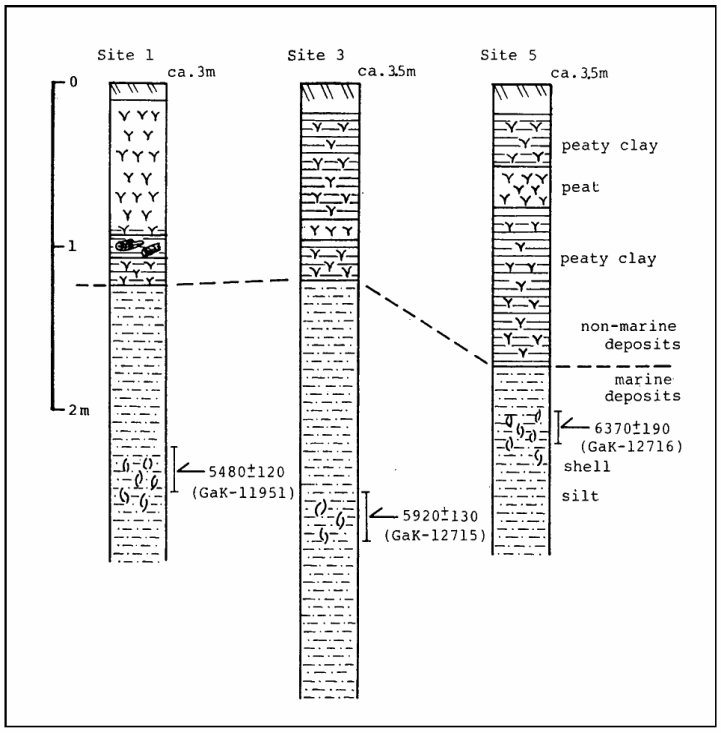


図2　下北半島田名部平野における海成沖積層貝化石 14C年代試料採取地点の地質柱状図
Site1：橘ほか(1975), Sites3, 5：奈良(1977)

４．田名部平野における海成沖積層産貝化石と縄文貝塚出土貝類について

表 1 にまとめて示した。Site1～6 の貝化石は地表から深さ 2.5m～3.0m ほどの掘削されたシルト層から産出したものである。いずれの地点もカキが多く他はカキ礁に近い位置に生息していたものである。それらの貝化石はいずれも現在の陸奥湾に生息する（感潮域群集

を除いて）種類でマガキを主体にウネナシトマヤガイ、ヒメシラトリ、オオノガイ、ホソウニナなどの湾奥部の潮間帯泥質地に生息した干潟群集構成種が多い。また、古大湊湾の沿岸だった台地上には縄文時代の遺跡が数多く分布している。その中には縄文前期の金谷、女館貝塚、縄文中期の最花貝塚がある。

縄文前期の金谷・女館貝塚はアサリを主体とする貝塚で、中期の最花貝塚はヤマトシジミを主体とする貝塚である。

女館貝塚（5,880±130y.B.P）と金谷貝塚は縄文海進最盛期の古大湊湾がもっとも拡大していた時期と一致する。古大湊湾の干潟には広くカキ礁が生息していたが貝塚近くの砂質底に生息するアサリを採貝したと考えられる。縄文中期の最花貝塚（3,890±80y.B.P）は出土する貝の種類が多いが数量的にはヤマトシジミが圧倒的に多い。この時期の古大湊湾の環境が浜堤ができ汽水性の水域になったことがわかる。

表1　下北半島田名部平野における海成沖積層産貝化石（左）と貝塚産貝類（右）の主要種の産状（松島・奈良1987）

貝類産出地点	1	2	3	4	5	6	金谷	女館	最花	貝塚地点
地表面海抜高度（m）	3	3	3.5	3.5	3.5	3.5	8	21	20	
海成層上限高度（m）	1.8		2.3		1.8					
^{14}C年代測定値（y.B.P.）	5480±120		5920±130		6370±190		前期	前期	中期	時．代
コード番号	GaK-11951		GaK-12715		GaK-12716			5880±130	3890±80 N-4369	
堆積物	sdy silt	sdy silt	silt	silt	silt	silt				
産出貝類総種類数	10	23	18	13	11	10	4	11	22	
A *Glycymeris vestita*		●							●	タマキガイ
G. albolineata									●	ヘンケイガイ
Umbonium costatum		●								キサゴ
Gomphina veneriformis melanaegis							●			コタマガイ
Babylonia japonica								●	●	バイ
Parinopecten yessoensis									●	ホタテガイ
Peronidia venulosa									●	サラガイ
Spisula sachalinensis									●	ウバガイ
B *Meretrix lusoria*					●		●		●	ハマグリ
Dosinorbis japonicus									●	カガミガイ
Mactra veneriformis								●		シオフキ
M. chinensis								●		バカガイ
Tapes philippinarum		●					●	●	●	アサリ
Neverita didyma	●	●	●	●		●		●	●	ツメタガイ
Niotha livescens		●								ムシロガイ
Retcunassa festiva		●	●	●						アラムシロガイ
Scapharca subcrenata	●	●	●	●	●	●		●	●	サルボウ
C *Napana venosa*	●		●	●				●	●	アカニシ
Scapharca broughtonii				●					●	アカガイ
Dosinella penicillata	●	●	●	●	●	●				ウラカガミ
D *Crassostrea gigas*	●	●	●	●	●	●		●	●	マガキ
Trapezium liratum		●	●	●	●	●			●	ウネナシトマトガイ
Macoma incongrua	●	●	●	●	●	●				ヒメシラトリ
Mya arenaria oonogai	●	●	●					●	●	オオノガイ
Cerithideopsis djadjariensis	●	●	●		●	●				カワアイ
Batillaria cumingii	●	●	●	●					●	ホソウミニナ
B. multiformis									●	ウミニナ
E *Stenothyra recondida*			●							ミスゴマツボ
Alvania concinna			●							タマツボ
Fluviocingla elegantula					●					カワグチツボ
Assiminea lutea japonica			●			●				カワザンショウ
Corbicula japonica					●				●	ヤマトシジミ
F *Corbicula leana*									●	マシジミ
Unio douglasiae									●	イシガイ
Cristaria plicata									●	カラスガイ
文　献	桔ほか, 1975	坂本, 1976	奈良, 1977				桃ほか, 1977	江坂, 1955 村越, 1975 村越, 1977	酒詰, 1961 金子, 1967 金子ほか, 1978	文　献

A：沿岸砂底群集、B：内湾砂底群集、C：内湾泥底群集
D：干潟群集、E：感潮域群集、F：淡水性種、●：多産

５．田名部平野の浜堤の形成について

田名部平野には海岸沿いに幅 1～2ｋｍの範囲に３列の浜堤がある。そのことによって古大湊湾の海への出入り口となった湾口がふさがれ古大湊湾は潟湖化していく。浜堤列の形成年代は内側の第Ⅰ浜堤列は 4,470±140y.B.P、　第Ⅱ浜堤列は 2,180±130 y.B.P、第Ⅲ浜堤列は 580±120y.B.P である。第Ⅰ浜堤の内陸側には泥炭層があり、その下部には貝化石を含む砂層がある。その上限高度は海抜＋0.7ｍである。（松本　1984）

６．まとめ

田名部平野の縄文海進時、6,500 年前の海水準は＋2m付近にある。現海岸線から 8km 程奥地まで海水が浸入し、水深 2m程の内湾で多くの海の貝類が生息していた。
その種は、現むつ湾内に生息するものが多いが、ウネナシトマヤガイ、ハマグリ、サルボウ、アカガイなどから海水温は現在より若干温暖だったと考えられる。その後、海退期に入り古大湊湾口に浜堤が形成された。内湾の環境も周辺の河川から流入する水や堆積物で浅くなり、汽水や淡水に生息する貝類がみられる。このことは縄文時代の貝塚からもよくわかる。

第Ⅰ浜堤列が形成された 4,500 年前頃には 0.7m付近まで海水準が低下し、古大湊湾は急速に縮小し、内湾から潟湖そして湿原と変わり、人類も低地で生活するようになった。

1）松本秀明　「海岸平野にみられる浜堤列と完新世後期の海水準微変動」、地理学総論 57（10）pp.720－738、1984
2）松島義章、奈良正義　「下北半島田名部平野の海成沖積層から産出した貝殻の ^{14}C 年代とそれに関連する問題」、神奈川県 pp.57－72、1987
3）奈良正義　「青森県下北半島の現生海水相（第 1 報）」、青森県立田名部高等学校研究集録（1）pp.1－17、1966
4）橘善光、奈良正義　「むつ市金谷貝塚調査報告」、昭和 51 年度むつ市文化財調査報告書（3）pp.2－17、1977

Sea level change in the Holocene epoch at the Shimokita Peninsula
- Jomon transgression and accompanying nature change at the Tanabu plains -

Masayoshi Nara
Shimokita National History Study Society

Jomon transgression and accompanying nature change at the Tanabu plains have been studied from the view point of sea level change in the Holocene epoch at the Shimokita Peninsula. Radiocarbon dating about fossil seashells sampled at the Tanabu plains was done using an AMS. Sea level at the Jomon transgression which occurred around 6,500 years before was estimated to be + 2 m higher than present-day.

3.2 日本海洋科学振興財団における JAEA むつタンデトロンによる AMS 利用経過について

（財）日本海洋科学振興財団むつ海洋研究所
河村 日佐男、賀佐 信一、小藤 久毅、秋濱 奈都子

１．はじめに

加速器質量分析による地球環境中の天然長半減期核種の分析測定手法は、既存の放射化学的分析に比べ高感度等の利点によって、海洋科学、地球科学、考古学のほか環境科学への応用で目覚しい発展を遂げてきた。海洋財団においても、海洋環境及び関連試料、地質、考古学試料中の ^{14}C 等の測定に利用している。当財団の平成 18、19 年度施設共用・成果公開の課題は午前中の ^{129}I に関する発表のみであるが [1)]、ここでは原子力機構タンデトロン AMS 利用の経緯、測定の経過及び過去に行った一、二の例を報告することとする。

２．当財団の AMS 利用経緯

旧原研（現日本原子力研究開発機構）によるタンデトロン加速器質量分析装置の導入に際して、平成 7～9 年当財団では、旧海洋科学技術センター（海洋研究開発機構）の委託により「加速器質量分析計調査・検討委員会(角皆静男委員長)」のもと、主として海洋科学への応用ニーズから、欧米の AMS 施設・前処理設備など調査報告をまとめた経緯がある。現在も原子力機構むつ事務所のタンデトロンについては運転業務に部分的に対応している。ユーザーの立場としては、同施設による ^{14}C 及び ^{129}I 測定を利用することにより、調査研究及び受託測定等の拡大に役立っている。また、原子力機構と協力し、AMS 利用拡大を通じて地域貢献を目指してきた。

３．AMS 測定の経過

海洋環境試料、地球環境試料等については、タンデトロン稼動開始時から、海洋機構等の受託測定等を行ってきた。平成 13 年度以降は、地方自治体の海洋放射能に関する受託調査の中で、海水中 DIC 及び海底堆積物中の ^{14}C の測定、大気連続測定の代替手段として年輪測定を実施した。地質・考古学試料については市依頼による地質試料、遺跡出土の木柱試料などの測定のほか、青森県、市、町の研究者と共同で出土炭化材などの ^{14}C 年代測定を行っている。また、^{129}I については、18 年度、海水中 ^{129}I の溶媒抽出による前処理方法を用いて多数試料の受託分析を行っている。

JAEA むつに測定委託した ^{14}C 試料は 18 年度末現在で合計 716、種類別割合は海水約 65%（前処理を含まない海水受託測定を含め）を、海底堆積物 7%、樹木年輪 21%、海洋地質、地質・考古学試料は約 7%となっている。

^{129}I については、平成 12 年度から海水・海底堆積物試料をトロント大学 IsoTrace ラボに送って前処理を含めて測定を委託してきた。18 年度から、原子力機構の ^{129}I 測定が外部ユーザーにも利用可能となったため、海水試料の測定を開始した。^{129}I 測定試料総数は 301、種類別割合は、海水等分析約 34%、海水委託測定（前処理を含む）は約 53%、海底堆積物約 13%である。

４．前処理および計算法

精製ラインは、排気システムによるガラスラインで、設置後約 10 年を経過しているが、ユーザー側のメインテナンスにより特に問題なく稼動している。海水の二酸化炭素抽出・精製、グラファイト化を含め真空ライン 3 本を運用してきた。ブランク試料は IAEAC1 を、参照試料としては現世及び考古学試料については、IAEA C6 を、地質試料では C4 ほかを用いる。

AMS 測定結果の計算にあたっては、^{14}C の総計数及び ^{12}C の個々の電流値を計数と見なして統計誤差を算出した後、Stuiver らの標準的な方法により ^{14}C 年代を求めている[2)]。NIST 標準試料認証値に伴う誤差は含めていない。暦年較正が必要な試料については、現在 OxCal 4.0.5 によっている。

^{129}I は、後述するようにヘキサンによる溶媒抽出により前処理している。AMS 測定による ^{129}I 対 ^{127}I 原子比から、回収率を補正して ^{129}I 濃度を求める。

５．測定例

過去に実施した測定の例及び進行中の共同研究について紹介する。

５．１木柱の ^{14}C 年代測定（三内丸山遺跡）

三内丸山遺跡傾斜地の第 27 次発掘調査で検出された直径約 50 cm の木柱で外側部分木片の一部厚さ約 1 cm の切片から切り分けた年輪の５年毎計 5 個の AMS 測定とウイグルマッチングを行った[3)]。各 ^{14}C 年代を Calib 5.0.2 で暦年校正した結果は 2,900～2,500 calBC（確率 68%）であった。見かけ上最外側から 3 番目の年輪について、IntCal04[4)]データベースを用い、ベイズの定理を利用したウイグルマッチング[5)]を行った結果は 68%の確率で 2700 calBC と推測された[6)]。比較のため、水浸漬保存中の第 19 次発掘調査で取り上げられた未測定の木柱について同様に測定を行い、最外側から 9 番目の年輪も 27 次木柱と近い年代と推定した[3)]。しかし、部分的な年輪試料という限定条件下の結果であるため確定はしていない。

なお、最近の OxCal 4.0.5 のウィグルマッチング[7)]による 27 次木柱外側年輪の暦年代を検討している（確率 95.4%水準で前者は 2869～2656 calBC、後者は 2872～2635 calBC）。

平成 18 年度第 30 次調査において木柱 6 本が取り上げられ､その年代測定が期待される。

５．２青森スギ年輪中 ^{14}C の測定

大気の長期連続測定の代替法として年輪のコア試料を採取し ^{14}C 測定を行った。参照法として、青森市北方の小橋で採取した通称樹齢 350 年のスギ部分円板を測定した。大気中 ^{14}C 濃度の変化が把握でき、コア試料の 1990 年代の結果とほぼ一致する結果を得た。1962 年に終了した大規模大気圏内核実験の影響を明瞭に認め、国内外の年輪中 ^{14}C 濃度、空気中濃度の文献値と概して良く一致したが、1970 年代には若干の相違があり中国核実験の影響と推定され、地域的差異の可能性が今後の課題であるとした[8)]。

５．３海水中 ^{129}I の測定

海水試料にヨウ素キャリアとしてヨウ化物イオン（ I^- ）を 2 ないし 1 mg を加え、ヨウ素酸イオン（IO_3^-）をヨウ化物イオン（I^-）に還元した後、ヨウ素単体分子（I_2）に酸化し、有機溶媒の一種（ヘキサン）で抽出・分離する。有機溶媒中の I_2 を I^-に還元して水溶液に逆抽出した後、銀イオン（Ag^+）を加え、ヨウ化銀を生成後、ニオブ（Nb）粉末と混合、

ターゲットピース中で圧縮整形し、AMS 測定試料とした。

海水に NIST 標準溶液を添加した結果では、理論値ときわめて良く一致した。また、本法による低濃度レベル海水の分析測定値を、同一試料の前処理を含めたトロント大委託測定値と比較したところ全般的に良く一致することを確かめた後、実用化している[9)]。

５．４考古学への応用

今年度上期から、県埋蔵文化財調査センター中村哲也氏を中心に、縄文中期後葉の文化変容の基礎データを得る目的で、三沢市教育委員会長尾正義氏、東北町歴史民俗資料館古屋敷則雄氏、工藤司氏、鰺ヶ沢町教育委員会中田書矢氏の試料提供も加わって、遺構の出土炭化材、炭化種子、炭化果皮及び一部土器付着炭化物の ^{14}C 年代測定を共同で実施中である。本課題は複数の縄文遺跡を横断的に調査するという点に特徴がある。

６．おわりに

上述した海洋財団の原子力機構タンデトロン AMS の利用経過から、緊密な連絡が可能という好条件で実施される AMS 測定が、調査研究、受託測定の実施上きわめて有効であることが認識された。この場を借りて関係者の方々に感謝したい。

今後、JAEA むつ AMS が各ユーザーの測定目的に応じてさらに広く利用されるものと期待される。

引用文献

1) 島茂樹他：人為起源 ^{129}I の発生源と存在状態、本報告書 (JAEA-Conf 2008-003).
2) M. Stuiver and H. A. Polach: Discussion Reporting of ^{14}C data, Radiocarbon **19** (3), pp.355-363 (1977).
3) 河村日佐男、賀佐信一：木柱の C-14 測定による年代の推定、特別史跡三内丸山遺跡年報 ―9―, pp.74-77（2006.3）.
4) M. Reimer, M.G.L. Baillie, E. Bard et al.：IntCal04 Terrestrial radiocarbon age calibration, 0-26 cal kyr BP, Radiocarbon **46** (3), pp.1029-1058 (2004).
5) T. Goslar and W. Madry : Using the Bayesian method to study the precision of dating by Wiggle-Matching, Radiocarbon **40** (1), pp.551-560 (1998).
6) 賀佐信一、河村日佐男：AMS による三内丸山遺跡木柱の C-14 測定、「環境科学シンポジウム―むつからのメッセージ―」要旨集、(独) 日本原子力研究開発機構むつ事業所、(独) 海洋研究開発機構むつ研究所、(財) 日本海洋科学振興財団むつ海洋研究所 (2005)、pp.27-28.
7) C. Bronk Ramsey, C, J. van der Plicht and B. Weninger : 'Wiggle matching' radiocarbon dates, Radiocarbon **43** (2A) pp.381-389 (2001). C. Bronk Ramsey： Development of the radiocarbon calibration program OxCal, Radiocarbon **43** (2A) pp.355-363 (2001).
8) H. Kawamura, H. Kofuji, S. Gasa, M. Kamamoto, N. Sawafuji and M. Mori： Carbon-14 measurements of tree rings of a Japanese cedar during 1945 to 2000 and core sampling for environmental studies, Radiocarbon **49** (2), pp.1045-1053 (2007).
9) 賀佐信一、澤藤奈都子、甲 昭二、木下尚喜、天野 光、河村日佐男：溶媒抽出法を用いた加速器質量分析法による海水中 ^{129}I の定量、Radioisotopes **56** (4), pp.155-162 (2007).

Use of JAEA Mutsu AMS facility at Japan Marine Science Foundation – a history and current situation

Hisao Kawamura, Shinichi Gasa, Hisaki Kofuji and Natsuko Akihama
Mutsu Marine Laboratory, Japan Marine Science Foundation
4-24 Mutsu-shi, Aomori 035-0064

AMS measurements on samples for marine environmental studies as well as small number of geological and archeological samples were made at Japan Marine Science Foundation by using the Tandetron AMS facility of Japan Atomic Energy Agency at Mutsu, Aomori Prefecture for ^{14}C since 2001, and ^{129}I since 2006. In this report, an early historical relationship of this institute to JAEA Mutsu AMS, past applications until 2006 and a few examples of obtained results are described. Approximately seven hundred ^{14}C measurements were carried out for seawater, marine sediment and tree-ring samples as well as geological and archeological materials. About one hundred ^{129}I measurements were made for seawater samples in 2006.

Three glass-made vacuum lines are in operation for seawater DIC, preparation and purification for the general purpose, and graphitization. Dating calculations are made on the total ^{14}C count and individual ^{13}C current measurements following Stuiver and Polach.

Two wooden pillars excavated at Sannai Maruyama Jomon site were dated using small parts from them and by wiggle matching methods first based on Pearson's and later being based on a Bayesian method, respectively and more recently by OxCal 4.

As an alternative means for a long-term measurement of atmospheric ^{14}C concentrations and as part of marine environmental studies, tree-rings were analyzed using core samples from standing, live, Japanese pine trees. In parallel, ^{14}Cconcentrations were measured for rings from a partial disk of an old Japanese cedar tree near Aomori City. Both results were in agreement during the period 1990-2000. The latter data during 1945-2000 showed influences of the large-scale atmospheric nuclear weapons tests; small differences being found between the present and literature data in 1970s suggesting need for further study on possible local effects.

Iodine-129 with added carrier in sweater was extracted as molecular iodine with hexane after reducing iodate to iodide. Iodine was back-extracted into aqueous phase and precipitated as silver iodide which finally mixed with niobium metal powder and pressed into a target piece for AMS measurement. Stable iodine was determined by an ion chromatograph with a UV detector. Addition tests using NIST standard solutions agreed well with theoretical values. Analytical results by the present method were generally in agreement with the reported data on the same samples that were analyzed by IsoTrace Laboratory of Toronto University, including preparation.

3.3 日本産樹木年輪試料の ^{14}C 測定

尾嵜　大真(1)、坂本稔(1)、今村峯雄(1)、光谷拓実(2)
(1) 国立歴史民俗博物館、(2)奈良文化財研究所

1. はじめに

^{14}C 年代値は、$^{14}C/^{12}C$ 比の初生値を大気中の $^{14}C/^{12}C$ 比として、過去から現在までにおいて一定であったという仮定のもとに、試料中の $^{14}C/^{12}C$ 比までに減少する時間を、^{14}C の半減期を 5568 年（現在は 5730±40 年が正確なものとされている）として算出される仮想的な年代値である。この仮想的な年代値を実際の年代に換算するために（暦年較正などと呼ばれる）、年代既知の樹木年輪試料や年稿堆積物などの ^{14}C 測定値によって ^{14}C 年代較正曲線が作成されている。現在、一般的に用いられている較正曲線として、欧米の樹木年輪試料や年稿堆積物などの ^{14}C 測定値をもとにした IntCal と呼ばれる較正曲線が作成されており、北半球の試料に対して利用可能とされている（Reimer et al., 2004）。

このような国際的な較正曲線が作成される中、^{14}C 測定法として加速器質量分析計（AMS）が発達してきたことによって年輪試料などについて多くの ^{14}C 測定が行われるようになってきた。その結果、いくつかの地域の一部の年代範囲では、年輪試料の ^{14}C 測定値が必ずしも IntCal とは一致しないことが示されつつあり（Kromer et al., 2001; Sakamoto et al., 2003）、地域効果などと呼ばれている。つまり、北半球において汎用的なものとされる較正曲線 IntCal は、地域あるいは時期によっては必ずしも最適なものではないことが明らかとなってきたのである。したがって、高精度な実年代を得るためにはそれぞれの地域での地域効果を検討する必要がある。IntCal の作成のために用いられている測定値のほとんどが欧米の樹木年輪試料によるものであることを考えると、それらの地域から最も遠い日本においては独自に樹木年輪試料の ^{14}C 測定を高精度で行い、IntCal と比較することが強く望まれる。

現在、我々は日本版とも言える ^{14}C 年代較正曲線の作成を目指して、年輪年代法により年代付けされた日本産樹木年輪試料について ^{14}C 測定を進めている。これまで紀元前（BC）10 世紀から紀元後（AD）10 世紀にわたる試料について ^{14}C 測定を行っている。その結果から、日本産樹木年輪試料の ^{14}C 測定値が IntCal とは有意に異なる時期のあることがわかってきている。その違いは、ある程度の期間、一定な差が保たれるような場合や、^{14}C 年代が古くなったり、新しくなったりとランダムに異なる場合などがある。また、その年代差は大きな場合では ^{14}C 年代にして 50 年以上にもなる。測定誤差のために小さな地域効果を議論することは難しいが、^{14}C 年代にして 10〜20 年程度の違いでも、それを較正曲線に反映させた場合、得られる実際の年代に 100 年ほどの違いをもたらす場合もある（Imamura et al., 2007）。地域効果を明らかにするためにより高い精度および確度での ^{14}C 測定が求められる。

これまでの日本産樹木年輪試料についての ^{14}C 測定から、AD500 年前後において IntCal04 と必ずしも一致しない結果が得られている（図 1）。本研究では、この AD500 年付近の不一致の真偽を確認するべく、同年代の複数個体の年輪試料について ^{14}C 測定を試みた。

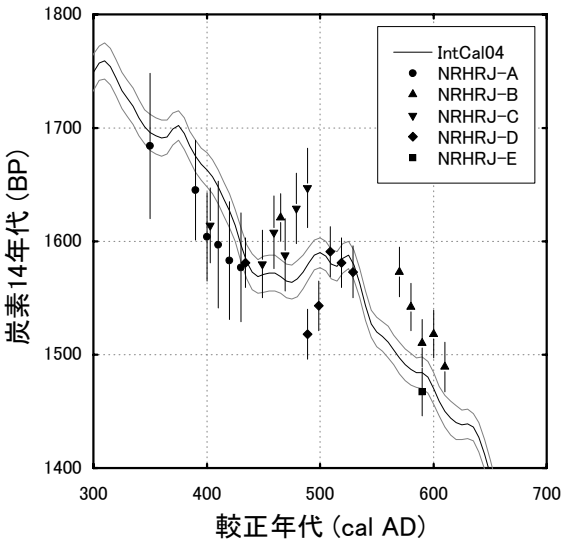


図 1 法隆寺古材の紀元後 500 年付近の ^{14}C 測定結果

2. 実験

本研究で用いた年輪試料は法隆寺の古材の一つ（NRHRJ-B）、長野県宮田村のスギ埋没樹幹（MT）、南信濃郡遠山川河床のヒノキ埋没樹幹（NNMSM）の3個体で、それぞれの試料からAD460から560年にあたる部分を用いた。

試料はまず5年輪（NRHRJ-B、NNMSM）あるいは10年輪（MT）ごとに切り分けた後、カッターを用いて薄片状にした。この薄片状の試料を（有）光信理化学製作所製自動AAA処理装置（Sakamoto et al., 2004）にて酸-アルカリ-酸（AAA）処理し、埋没中に付着した不純物などを取り除いた。これを超純水にて十分洗浄した後、110℃にて乾燥し、二酸化炭素精製処理用の試料とした。洗浄した試料を酸化銅とともに石英管に真空封入し、850℃にて3時間加熱し完全に燃焼させた。その後、燃焼して生成した気体を真空ラインに導き、液体窒素および冷却エタノールなどの寒剤を用いて二酸化炭素を分離・精製した。精製した二酸化炭素を鉄粉および水素ガスとともに石英管に封入し、600℃にて10時間加熱することによって、グラファイトを生成させ、Al製のターゲットホルダーに充填し、加速器質量分析（AMS）用の試料とした。AMS測定は日本原子力研究開発機構青森研究開発センタータンデトロン加速器にて行った。

3. 結果および考察

得られた結果をIntCal04とともに図2に示した。ここに示した誤差は^{14}C測定の計数誤差（1σ）である。三つの試料の^{14}C測定結果についてはNRHRJ-B試料のAD500から560年の部分のみが必ずしも一致しているとはいえないものの、ほぼ一致していると言えよう。

また、IntCalとの整合性については、三つの試料の中でも不一致が認められたHRNRJ-BのAD500

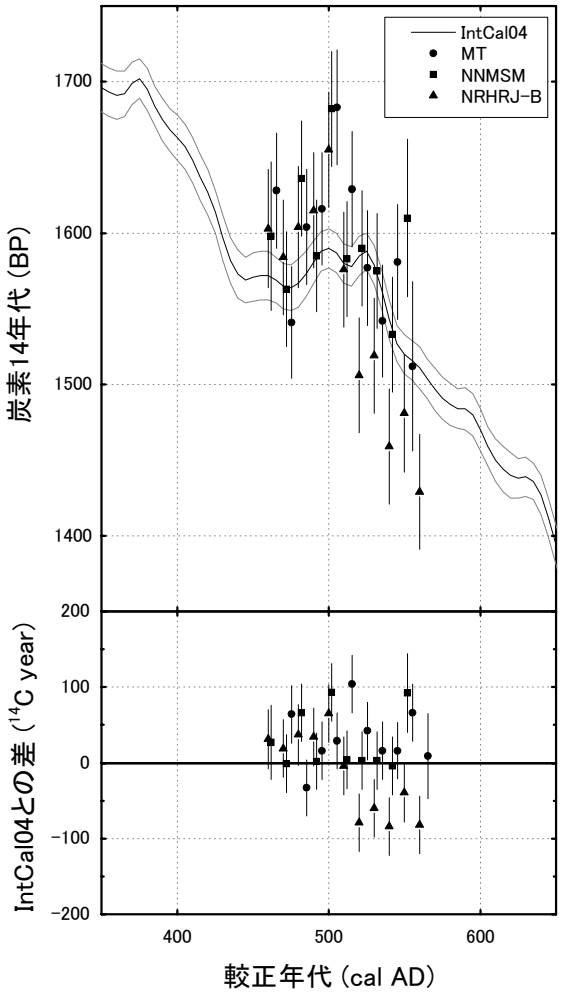


図2 日本産樹木年輪試料の紀元後500年付近の^{14}C測定結果

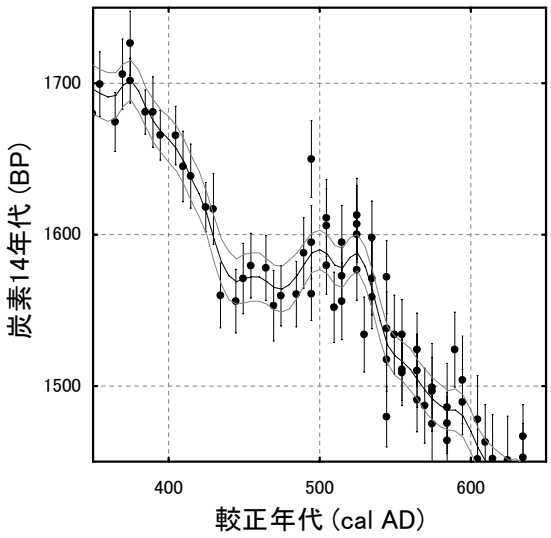


図3 IntCal04の構築に用いられたのデータ

から 560 年がやはり IntCal04 とも一致しているとは言い難い。また、AD510 年のところで他と比べて大きな違い、それも誤差よりも大きな違いが認められる。これは、IntCal の構築に用いられたデータ(図 3)を見ると同様に IntCal04 からははずれたデータがあることから、IntCal04 が構築の際に用いられた Ramdom Walk Model という計算法により必要以上に平滑化されてしまったのではないかと考えられる。このような違いは我々のこれまでの日本産樹木年輪試料の ^{14}C 測定からもいくつか見つかっており、IntCal04 の計算法に疑問を投げかけるものであると考えている。

参考文献

1）P J Reimer, M G L Baillie, E Bard, A Bayliss, J W Beck, C J H Bertrand, P G Blackwell, C E Buck, G S Burr, K B Cutler, P E Damon, R L Edwards, R G Fairbanks, M Friedrich, T P Guilderson, A G Hogg, K A Hughen, B Kromer, G McCormac, S Manning, C B Ramsey, R W Reimer, S Remmele, J R Southon, M Stuiver, S Talamo, F W Taylor, J van der Plicht, C E Weyhenmeyer “INTCAL04 terrestrial radiocarbon age calibration, 0–26 cal kyr BP” Radiocarbon, 46(3), pp.1029-1058 (2004)

2）B Kromer, S W Manning, P I Kuniholm, M W Newton, M Spurk, I Levin “Regional $^{14}CO_2$ offsets in the troposphere: magnitude, mechanism, and consequences” Science 294:pp.2529-2532 (2001)

3）M Sakamoto, M Imamura, J van der Plicht, T Mitsutani, M Sahara “Radiocarbon calibration for Japanese wood samples” Radiocarbon, 45(1), pp.81-89 (2003)

4）M. Imamura, H. Ozaki, T. Mitsutani, E. Niu, S. Itoh: “Radiocarbon wiggle-matching of Japanese historical materils with a possible systematic age offset”, Radiocarbon, 49(2), pp.331-337 (2007).

3）M Sakamoto, A Kodaira, M Imamura “An Automated AAA preparation system for AMS radiocarbon dating” Nuclear and Instrumental Methods B, pp.223-224, pp.298-301 (2004)

Radiocarbon measurements of tree-ring samples from Japanese woods

Hiromasa Ozaki[(1)], Minoru Sakamoto[(1)], Mineo Imamura[(1)], Takumi Mitsutani[(2)]

(1) National Museum of Japanese History, The National Institutes for Humanities
(2) National Research Institute for Cultural Properties, Nara

Since radiocarbon age is a model age based on constancy of atmospheric radiocarbon concentration and a provisional value of 5568 years for the ^{14}C half-life, calibration to calendar age is required for practical dating. The dataset, called IntCal, used for the calibration has been constructed by international consortium. Most parts of the IntCal have been based on the measurement of radiocarbon in dendrochronologically dated tree-ring samples from woods in Europe and North America.

Regional offsets, which are designated as differences of local atmospheric radiocarbon from IntCal, have been pointed out based on recent radiocarbon measurements for tree-ring samples from a few regions. We have also measured radiocarbon of tree-ring samples from Japanese woods in order to investigate regional offsets in Japan.

In this study, radiocarbon measurements for tree-ring samples from three different Japanese woods at around AD500 were carried out. Consequently, differences from IntCal04 at around AD500 were confirmed, although no systematic offset are found. However, the results obtained in this study agree with the raw data used for construction of IntCal04. This could pose a question to calculation method of IntCal04.

3.4 6000 年前の古木の ^{14}C 濃度と宇宙線強度変動

佐藤太一(1)　櫻井敬久(1)　門叶冬樹(1)　高橋唯(1)　鈴木佳代(1)　郡司修一(1)
立石雅昭(2)　中田誠(2)　松崎浩之(3)　土屋（春原）陽子(3)

(１)山形大学理学部
(２) 新潟大学中越沖地震調査団
(３)東京大学大学院工学系研究科

１．はじめに

本研究は、古木年輪中の宇宙線生成核種 ^{14}C を用いた過去の宇宙線強度変動の探索を目的としている[1)]。研究に使用する古木試料は、2007 年 7 月 16 日に起きた『新潟県中越沖地震』によって、海底より出土した古木である。予備研究として、この古木の ^{14}C 年代測定を行ったところ、古木の生育していた ^{14}C 年代は約 4500ー5500yrBP を示し、実年代では 6310ー6020yrBP と縄文時代前期から中期に位置することがわかった。

IntCal04 データ[3)]は、これらの古木が生育していたとされる時期の ^{14}C 濃度変動は減少傾向にあり、且つその傾向の中に約 20‰にも及ぶ大きな変動が周期性をもって約 1500 年にわたり続いていることを示している。

この時期における日本産樹木に対する系統的 ^{14}C 濃度変動測定は未知であるため、本研究では、この古木の年輪中に記録された ^{14}C 濃度測定を行うことにより、日本においても同様な変動があるか調べることを目的とする。

２．古木試料

2007 年 7 月 16 日に発生した、『新潟県中越沖地震』によって出雲崎町沖の震源地付近から柏崎市沖合にかけて、水深 70～100m、長さ約 20km、幅約 1km にわたる範囲(図１)の海底に大量古木が出土した。我々は、対象海域を分割しそれぞれの海域毎に古木を採取した（写真 1)。

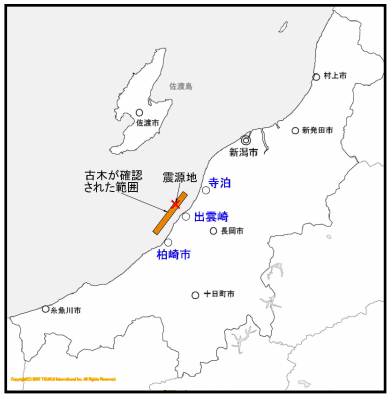


図１：出土範囲

写真１：採取した古木

３．予備研究

採取した古木試料の^{14}C濃度変動を調べる前に、これらの古木試料の放射性炭素年代を測定し、古木が生育していた実年代を調べた。そのために、採取した数十個の古木から３個体を選択し、これらの放射性炭素年代を測定した。

３.１　測定試料

古木試料の 3 個体（写真 2）を選択し、古木 1 から IZM と IZM-L の 2 サンプル、古木 2 から IZM-M、古木 3 から IZM-S の 4 サンプルの測定試料を作成した。

この４サンプルは、純水により超音波洗浄を行った後、有機溶媒洗浄により油分を除去した。さらに IZM-L は抽出したセルロース試料であるが他は木試料そのものである。これらの試料から AMS 測定試料となるとグラファイトを作成した。

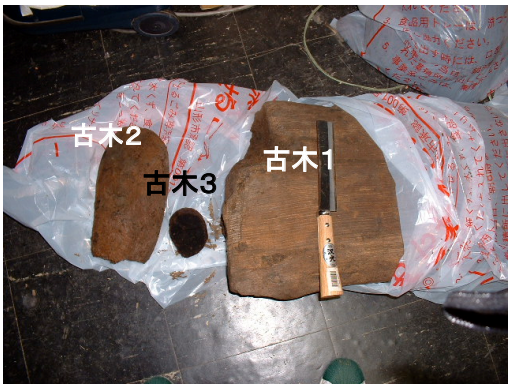


写真 2：古木試料（左から古木 2・古木 3・古木 1）

３.２　測定結果について

測定は東京大学 MALT にて行った。その結果は表 1 に示されるように、IZM,IZM-L,IZM-M,IZM-S はそれぞれ 5420±43 yrBP、5357±45 yrBP、4573±52 yrBP、4812±52 yrBP であった。古木 1 の試料である IZM と IZM-L は統計精度の範囲内で一致しており、この測定では試料処理法の違いは見られなかった。

これら結果から、OxCal（実年代計算プログラム）を利用し実年代を計算したところ [2]、これらの古木が生育していたと考えられる時期の実年代は約 6300～5100 yrBP であった。

表１：測定結果と OXCAL 算出結果

	サンプル	^{14}C年代(yrBP)	OXCALによる実年代（yrBP）
古木1	IZM(セルロース	5420±43	6310-6020
	IZM-L	5357±45	6280-6000
古木2	IZM-M	4573±52	5360-5040
古木3	IZM-S	4812±52	5660-5330

Radiocarbon 国際会議で承認されている較正曲線 IntCal04 データより [3]、これらの古木が育成していたと考えられる時期の^{14}C 濃度変動を図 2 に示す。7000 yrBP から 5000 yrBP にかけて^{14}C 濃度は直線的に減少しており、約 6300 yrBP から 5000 yrBP の 1300 年間にかけて約 100 年から 200 年の周期で 20‰程度の変動が連続している。一方、図 3 に示す地磁気 [4]は、7000 yrBP から 2500 yrBP(BC4500～3500)にかけて全体として上昇傾向を示している。従って、^{14}C 濃度の直線的減少は、地磁気変動が大きな要因となっている可能性が考えられる。

20‰の変動の一例としてマウンダー極小期(AD1645～1715)がある。これは太陽活動の停滞していたために、その影響で^{14}C 濃度が 20‰の上昇を示した事例である。予備測定した古木の育成時期は 6300～5100 yrBP であるので、これらの古木にはマウンダー極小期と同様な太陽活動の痕跡がある可能性がある。

しかし、IntCal04 データはヨーロッパの樹木からのデータであり、日本の樹木による約 6000 年前の統計的データは未知である。今後、JAEA AMS MUTU を利用して、これらの古木を試料とした研究を行うことで、日本の樹木においても同様な変動があるか調べることができ、この測定データは日本とヨーロッパの地域効果の比較及び太陽活動の知見を得るために重要である。

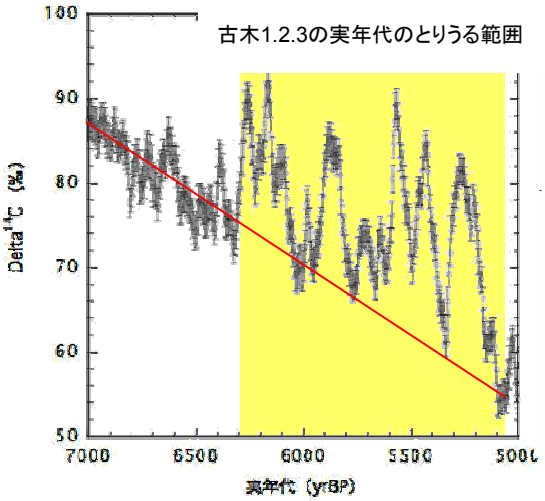


図 2:^{14}C 濃度変動

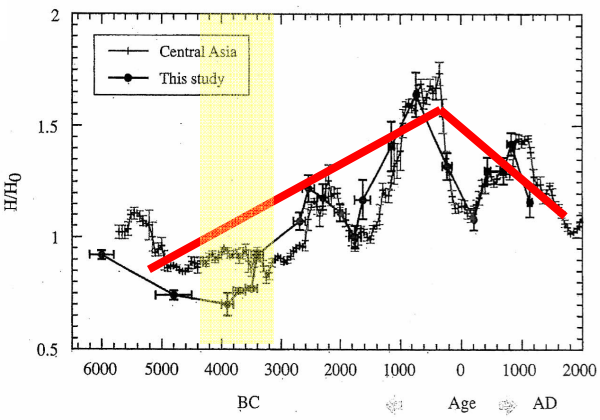


図 3:地磁気変動

1） H.Sakurai,W.Kato,Y.Takahasi,K.Suzuki,Y.Takahasi,S.Gunji,F.Tokanai: "^{14}C Dating of ~2500-yr-old Choukai Jindai cedar tree rings from japan using highly accurate LSC measurement" Radiocarbon vol.48 No.3 pp.401ー408 (2006)

2） Bronk Ramsey C.2005. OxCal program v3.10 [software and online manual]. URL: http://www.rlaha.ox.ac.uk/oxcal/oxcal.htm.

3） Reimer PJ, Baillie MGL, Bard E, Bayliss A, Beck JW, Bertrand CJH, Blackwell PG, Buck CE, Burr GS, Cutler KB, Damon PE, Edwards RL, Fairbanks RG, frindrich M, Guilderson TP,Hogg

AG, Hughen KA, Kromer B, McCormac G, Manning S, Bronk Ramsey C, Reimer RW, Remmele S,Southon JR, Stuiver M, Talamo S, Taylor FW, van der Plicht J, Weyhenmeyer CE. "IntCal04,terrestrial radiocarbon age calibration, 0-26 cal kyr BP. " radiocarbon 46(3):pp.1029-58 (2004)

4）.Genevey, Y.Gallet ,.C.Margueron J.Geophys.Res vol108 (2003)

^{14}C concentrations in the old woods at 6000yrBP and the variations of cosmic rays

Taiichi Sato(1) Hirohisa Sakurai(1), Huyuki Tokanai(1), Yui Takahasi(1), Suzuki Kayo(1), Shuichi Gunji(1), Tosiaki Tateisi(2) , Makoto Nakata(2)
Hiroyuki Matsuzaki(3), Yoko (Tsuchiya) Sunohara(3)

(1)Dept. of Physics, Yamagata University
(2) Nigata University The Niigataken Chuetsu-oki Earthquake in 2007 research group
(3)Micro Analysis Lab.Tandem accelerayor,The University of Tokyo

A large quantity of old woods was recently excavated with the Chuetsu-oki Earthquake in the bottom of the sea of near the Izumozaki-oki Nigata Prefecture. First of all, we have measured the radiocarbon ages for the three samples to identify the calendar ages of the woods. The radiocarbon ages were 5357 ± 45 yrBP, 4573 ± 52 yrBP, and 4812± 52 yrBP, respectively. Using the OXCAL program, the calendar ages were calculated in the range from 6300 yrBP to 5100 yrBP. The IntCal04 data shows that the ^{14}C concentrations with the era are very variable with 20‰ variations. We show a plan to investigate ^{14}C concentrations of the old tree rings around 6000 yrBP.

3.5 青森県の現生・化石植物中の ^{14}C 分析より何が期待できそうか？

堀内　一穂(1)

(1) 弘前大学　大学院理工学研究科　地球環境学専攻

1. はじめに

筆者はこれまで，堆積物や氷床に含まれる ^{10}Be や ^{26}Al について，主に地球科学的観点から研究を行ってきた(1,2)．同様の宇宙線生成核種である ^{14}C についても，古環境を記録する堆積物の年代決定に利用してきた(3)．こうした研究の過程で，青森県の自然環境や地質環境が，植物—とりわけ年輪—を用いた ^{14}C の研究に適するとの確信を得て，その加速器質量分析（AMS）を開始するに至った．

ここでは，^{14}C の一般的性質や研究動向を踏まえた上で，筆者が最近行った予察的な研究の一部や今後遂行を希望する研究の概要について紹介する．

2. 現生・化石植物中の ^{14}C

^{14}C は，主に大気中にて，宇宙線と窒素原子との相互作用により生成する．また近過去に限れば，大気圏内核実験でも大量に作られた．^{14}C は，生成後直ちに $^{14}CO_2$ ガスへと酸化し，地球規模の炭素循環に組み込まれる．大気中にて ^{14}C は安定同位体 ^{12}C と良く混合するが，両半球間での大まかな $^{14}C/^{12}C$ 比の異なりや，現在では化石燃料由来の $^{12}CO_2$ の混入による地域的な $^{14}C/^{12}C$ 比の差異も認められる．また炭素の大リザーバーである海洋や土壌からの古い炭素の放出も大気中の $^{14}C/^{12}C$ 比に影響する．従って $^{14}C/^{12}C$ 比の時間変動は，宇宙線変動や核実験に伴う ^{14}C 生成率の変化だけではなく，全球的には炭素大循環の，局所的には人間活動や火山イベント及び地表／海洋環境の変化の影響も被ることになる．

大気中の ^{14}C は，光合成や無機的過程により植物や（生物源を含む）炭酸塩に固定され，それらがさらに土壌や堆積物中に保存される．固定された ^{14}C は，約 5730 年の半減期に伴い，その場で崩壊する．

以上の性質により ^{14}C は，①宇宙線強度変動，②全球炭素循環，および③局地的な炭素の動態の解明に役立つと共に，④過去数万年間の放射年代決定に利用されている．これらのうち①ー③の現在の姿については，他の物理観測からも知ることができる．しかし，観測時代以前の情報を得るためには，古環境アーカイブの ^{14}C 分析が必要とされる．そのために最も優れた試料として，年輪が挙げられる．また，化石植物を対象にした ^{14}C 年代決定は，化石植物そのものから得られる古環境情報に確かな時系列を刻むために欠かせない．

近年 ^{14}C の研究が円熟期を迎え，加えてスループットが高く少量試料にて分析できる AMS が高精度化されるとともに広く普及した．その結果，局地的な炭素の動態の定量化が，海洋と比べて微細な地域差しか示さない陸域の ^{14}C でも，現実的で有望な課題として注目されるようになってきた(4–8)．これは，観測が不十分な地域や，微気候・局所気候・メソスケ

ール気候レベルの炭素の動態を「時間を遡って」解明できるという利点より，他の観測を補いつつもそれを超え得る手段と言える[7,8]．また ^{14}C は，地球温暖化問題の評価や解決に欠かせない「人間活動に伴う炭素の動態」を定量的に解明する手段としても，注目を浴びている[5–7]．

3. 研究の意義と期待できること

青森県からは，現在から過去に遡って様々な環境から豊富な植物試料を得ることができる．世界遺産白神山地や八甲田山地の現生森林，青森県の東部に広がる十和田—八戸テフラ埋没林は，その端的な例であろう．白神山地のような非火山帯森林から年輪を採取し，年輪年代学的裏付けの下で連続的に ^{14}C 分析を行うことで「標準曲線」を得る．こうした試みは，近過去の宇宙線変動の復元や全球炭素循環の解明に寄与するだけではなく，局地的な炭素の動態に関する様々な対照実験を可能とする．例えば八甲田山地では，1997 年に 3 名の死者が出る火山性 CO_2 吸引事故が発生している[9]．こうした火山活動による地中からの化石 CO_2 ガスの放出について，その経年変動を，火山帯樹木年輪の ^{14}C と「標準曲線」との比較より追うことができるかも知れない．図 1 に，青森県の現生年輪の ^{14}C 連続分析から期待される，局地的な炭素の動態に関する研究の概念図を示した．これらの研究は，

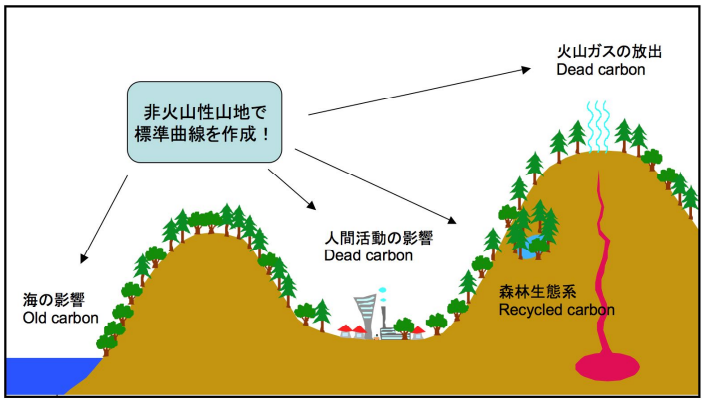


図1：青森県の現生植物の^{14}C分析から期待される，局地的な炭素の動態に関する研究の概念図

決して ^{14}C の独壇場ではなく，様々な状況さえ許せば現場での物理観測によっても遂行可能かも知れない．しかし，こと時間を遡った解析を行うためには，年輪試料の ^{14}C 分析がほぼ唯一の手段と言えよう．

さらに青森県からは，地層に埋没された古木，すなわち埋没古木が豊富に産出することが知られている[10]．こうした埋没古木は，特に火山噴火などのイベントにより短期間で埋没された場合，複数の地点から同年代の複数の試料として産出することになる．例えば，約 1 万 5 千年前に現在の十和田湖付近から噴出したテフラに埋没した十和田—八戸テフラ埋没林からは，同年代の良い年輪試料を多数得ることができる[11]．1 万 5 千年前以前は，それ以降と比して，時間分解能の高い ^{14}C 記録に著しく乏しく，その時代の宇宙線強度や全球炭素循環の変化の解明に，複数の年輪記録より貢献することができる[12]．また，各年輪

試料間での微少な ^{14}C 濃度の違いが検出されれば, 当時の局地的な炭素の挙動をも復元できるかも知れない.

4. おわりに

以上のように, 最近注目されている ^{14}C による局地的な炭素の動態解析の観点から, 過去に遡った研究を行う可能性を示した. 既に述べたように青森県は, そのモデルとなる有望な地域と言えよう. 今後研究を進めていきたい.

1) K. Horiuchi, H. Matsuzaki, K. Kobayashi, E. L. Goldberg, Y. Shibata: "^{10}Be record and magnetostratigraphy of a Miocene section from Lake Baikal: Re-examination of the age model and its implication for climatic changes in continental Asia" Geophys. Res.Lett., 30, (12),p.1602 (2003).
2) K. Horiuchi, H. Matsuzaki, A. Ohta, Y. Shibata, H. Motoyama: "Measurement of ^{26}Al in Antarctic ice with the MALT-AMS system at the University of Tokyo" Nucl. Instr. and Meth. B, 259, p.625 (2007).
3) K. Horiuchi, K. Minoura, K. Hoshino, T. Oda, T. Nakamura, T. Kawai: "Palaeoenvironmental history of Lake Baikal during the last 23,000 years" Palaeogeogr. Palaeoclimatol. Palaeoecol., 157, p.95 (2000),
4) B. Kromer, S. W. Manning, P. I. Kuniholm, M. W. Newton, M. Spurk, and I. Levin: "Regional $^{14}CO_2$ offsets in the troposphere: Magnitude, mechanisms, and consequences" Science, 294, p.2529 (2001).
5) I. Levin, B. Kromer: "The tropospheric $^{14}CO_2$ level in mid-latitudes of the Northern Hemisphere (1959–2003)" Radiocarbon, 46, (3), p.1261 (2004).
6) S. Fontaine, S. Barot, P. Barré, N. Bdioui, B. Mary, C. Rumpel: "Stability of organic carbon in deep soil layers controlled by fresh carbon supply" Nature, 450, p.277 (2007).
7) D.Y. Hsueh, N.Y. Krakauer, J.T. Randerson, X. Xu, S.E. Trumbore, J.R. Southon: "Regional patterns of radiocarbon and fossil fuel-derived CO_2 in surface air across North America" Geophys. Res. Lett., 34, L02816, doi:10.1029/2006GL027032 (2007).
8) Q. Hua, M. Barbetti: "Influence of atmospheric circulation on regional $^{14}CO_2$ differences" J. Geophys. Res., 112, D19102, doi:10.1029/2006JD007898 (2007).
9) P.P. Hernández, K. Notsu, M. Tsurumi, T. Mori, M. Ohno, Y. Shimoike, J. Salazar, N. Pérez: "Carbon dioxide emissions from soils at Hakkoda, north Japan" J. Geophys. Res., 108, (B4), 2210, doi:10.1029/2002JB001847 (2003).
10) 青森県教育委員会:「生態系のタイムカプセルー青森県埋没林調査報告書ー」,p.99(2001).
11) S. Noshiro, K. Terada, S. Tsuji, M. Suzuki: "Larix-Picea forests of the Last Glacial Age on the eastern slope of Towada Volcano in northern Japan" Review of Palaeobotany and Palynology, 98, p.207 (1997).
12) K. Horiuchi, S. Sonoda, H. Matsuzaki, M. Ohyama: "Radiocarbon analysis of tree rings from a 15.5 cal kyr BP pyroclastically buried forest: a pilot study" Radiocarbon, 49, (2), p.1123 (2007).

What can we expect from ^{14}C analysis of recent and fossil plants from the Aomori prefecture?

Kazuho Horiuchi(1)

(1) Department of Earth and Environmental Sciences, Faculty of Science and Technology, Hirosaki University

Microscale, regional, and mesoscale carbon dynamics are now becoming one of the promising subjects of ^{14}C analysis with accelerator mass spectrometry. In this paper, I propose a few fruitful research subjects with ^{14}C content of recent and fossil plants from the Aomori area, northeast Honshu Island, Japan.

3.6 液体シンチレーション法と加速器質量分析法との比較

山田　芳宗(1)、安池　賀英子(1)、天野　光(2)

(1) 北陸大学　薬学部附属 RI 施設
(2) 日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　AMS 管理課

1. はじめに

環境中の ^{14}C は、宇宙線と大気との核反応によって絶えず生成され、地球上の循環サイクルに組み込まれて環境中を移動する。人類が化石燃料を消費する以前は、自然界における ^{14}C の生成と壊変はほぼ平衡状態にあり、環境中に一定の濃度で存在した。しかし、1950 年代～1960 年代前半の大気圏核実験によって、^{14}C は環境中へ大量に散布され、近代においては原子力関連施設等から放出され続けているものもある。これらの人為的に放出された ^{14}C の時間的空間的変動を捕らえ、その挙動と環境に及ぼす影響についての知見を得るために、種々の環境試料の測定は重要な課題である。環境試料の中でも、樹木は特に有用な試料である。樹木の基幹成分の一つであるセルロースは、年輪形成時の環境中の ^{14}C を固定しているため、大気中の ^{14}C 濃度の時間的変動は、そこで生育する樹木年輪の ^{14}C 濃度に反映されていると考えられるからである。

筆者らは、石川県内で採取した樹木年輪を始め、松葉、稲（米粒、籾、葉、茎、根の部位ごと）などの植物試料、大気 CO_2、地目の異なる土壌（水田、畑、林など）試料約 1700 個について、これまでベンゼン－液体シンチレーション法（以下 LSC 法と略記する。）を用いて ^{14}C の測定を行ってきた。LSC 法は、高価な装置を必要とせず、マシンタイムや測定試料の個数などの制約も受けず、試料採取－前処理－測定試料の調製及び測定という一連の過程を連続的に簡便にできる。さらに、ランニングコストも非常に安いという利点を有する。しかし、現在主流となっている加速器質量分析法（以下 AMS 法と略記する。）に比べて、多量の測定試料を必要とし、測定精度が劣るという欠点がある。筆者らの LSC 法では、測定値に 30‰ 以上の差がないと、有意の差があるとは言えない。実際の測定では、必要量の試料を手に入れるのが困難な場合も多い。このような場合には、測定試料が少量ですみ測定精度に優れる AMS 法に頼らなければならない。これらを考慮すると、

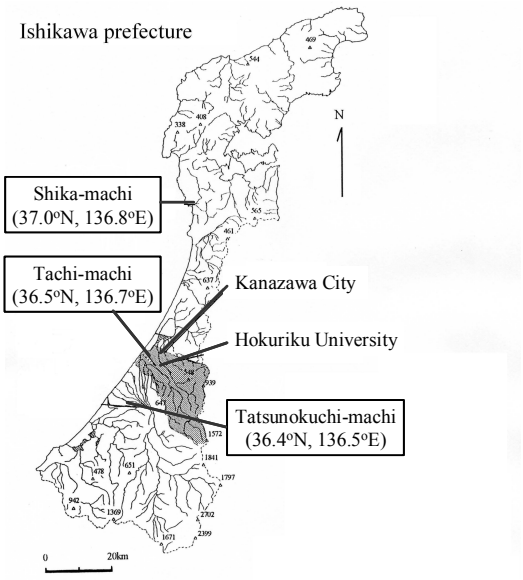


Fig. 1　Sampling sites of the tree for ^{14}C measurement, in Ishikawa prefecture, Japan.
Fine lines on the figure represent rivers in Ishikawa prefecture.

LSC 法と AMS 法を併用して研究を進めるのが、最善の方策と考える。二つの方法を併用する場合には、あらかじめ LSC 法と AMS 法による測定データを比較して、両測定方法の得失を明らかにし、その評価を行っておく必要がある。ここでは、樹木年輪試料を用いて、LSC 法と AMS 法による測定データを比較し、両測定方法の評価を行った結果について報告する。

2. 実験方法

AMS 法を用いて、石川県内の異なる地点において採取した樹木年輪の $\Delta^{14}C$ 値を測定し、LSC 法で得られた値と比較した。

樹木は、羽咋郡志賀町高浜及び同町小浦（37.0°N, 136.8°E）、金沢市舘町（36.5°N, 136.7°E）及び能美市辰口町（36.4°N, 136.5°E）の 3 地域で採取した。これらの樹木採取地点を Fig. 1 に示す。

Table 1 Comparison of reproducibility on the $\Delta^{14}C$ values between the analyses of four individual cellulose samples prepared from the same wood chips.

Sample No.	Synthesized benzene, g	Counting time, min	$\Delta^{14}C$,* ‰	Average of the $\Delta^{14}C$,* ‰
24U1	3.8826	4000	799.7 ± 6.1	796.7
24U2	2.2717	6000	790.8 ± 6.4	
24U3	2.8491	7000	790.5 ± 5.1	
24U4	1.2807	5000	805.7 ± 8.1	

* The error denotes the counting error of 1σ.
All samples were measured using a low background liquid sintillation counter, Aloka LB1.

AMS 測定には、LSC 測定に使用した残余の精製セルロースを用いた。精製セルロースは、樹木から 1 年毎に剥離したチップを亜塩素酸塩処理及び水酸化ナトリウム処理して得たものである。この精製セルロースを燃焼し、発生した二酸化炭素から AMS 測定用試料を作成し、$\Delta^{14}C$ 値の測定を行った。

3. 結果及び考察

能美市辰口町で採取した赤松の 1964 年の年輪チップから、全く独立に 4 つのベンゼン測定試料を調製し、LSC 法の再現性について検討した結果を、Table 1 に示す[1]。Table 1 から明らかなように、各測定の統計誤差は、±5‰～8‰ であり、例えば、4g のベンゼンを 4000 分測定する条件を選べば、統計誤差を、±5‰ 以下にすることができる。また、再現性については、4 つの値は、±10‰ 以内で一致した。この値は、後で示す AMS 法の再現性に比べて遜色のないものであり、充分な量の試料が確保できるときは、LSC 法による分析の信頼性は高いことを示している。

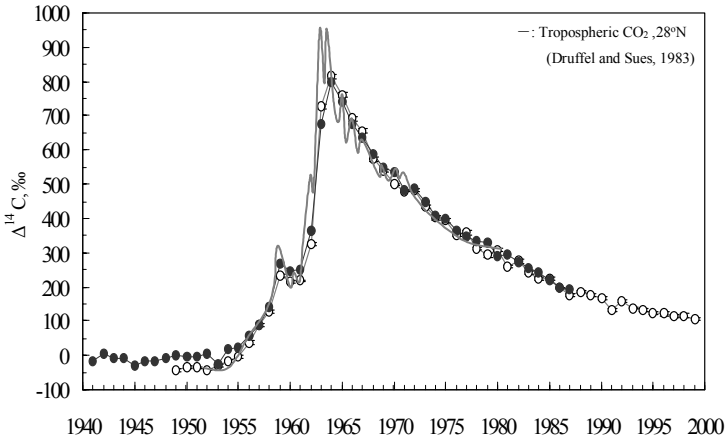


Fig. 2 Annual variation of the $\Delta^{14}C$ values of the Shika-sample and Tatsunokuchi-sample.
○: Shika-sample ● : Tatsunokuchi-sample

LSC 法を用いて求めた、能美市辰口町と羽咋郡志賀町高浜の樹木年輪の $\Delta^{14}C$ 値の経年変動の結果を、Fig. 2 に示す[2]。両者の $\Delta^{14}C$ 値は、ほとんど一致し、

大気圏核実験の影響によるピークの位置が一致した。さらに、これらの変動パターンは、大気 CO_2 の変動パターンをよく反映していた。このことは、年輪中の炭素がほとんど大気 CO_2 から供給されること、また、大気 CO_2 中の $\Delta^{14}C$ 値には、過去 50 年間石川県内において大きな地域差が存在しなかったことを示唆している。

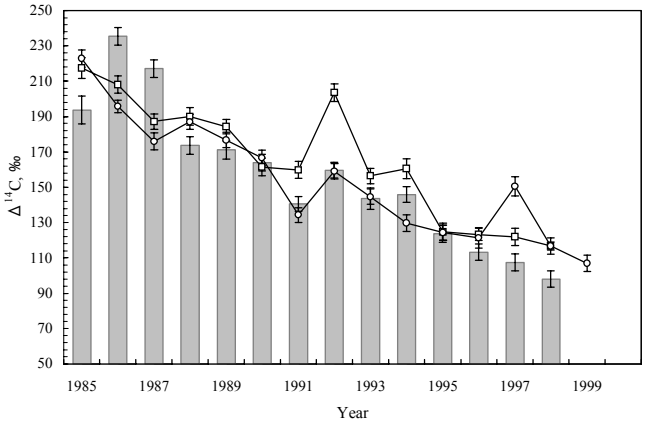


Fig. 3 Annual variations of the $\Delta^{14}C$ values of tree rings at Shika-machi and Kanazawa-city in Ishikawa prefecture.
Shika-machi (○: Takahama, □: Oura)
■ : Kanazawa-city

この測定において得られたもう一つの興味深い知見は、羽咋郡志賀町高浜の樹木年輪の $\Delta^{14}C$ 値には、1992 年の位置に小さなピークが認められたことである (Fig. 2 参照)。この一時的な上昇は、Fig. 3 に示すように、羽咋郡志賀町の別の樹木や金沢市の樹木にも観測された[3]。羽咋郡志賀町には、(株) 北陸電力志賀原子力発電所が存在し、1993 年から営業運転を行っている。1992 年は、核燃料の搬入及び試験運転を繰り返していた時期に当たる。この状況を踏まえ、LSC 法と AMS 法のクロスチェックを行い、併せて 1992 年の一時的な上昇の原因を明らかにする目的で、AMS 法による樹木年輪試料の測定を行った。AMS 法の再現性について検討した結果を Table 2 に、また、LSC 法と AMS 法による結果の比較を、Fig. 4 に示す。

Table 2 Comparison of reproducibility on the $\Delta^{14}C$ values between the analyses of three individual graphite targets prepared from the IAEA code C-6 sucrose.

Sampe No.	$\Delta^{14}C$,* ‰	Average of the $\Delta^{14}C$,* ‰
1	482.0 ± 6.6	
2	492.5 ± 6.8	489.3
3	493.3 ± 7.0	

* The error denotes the counting error of 1σ.
All samples were measured using accelerator mass spectrometer, JAERI-AMS.

AMS 法では、各測定の統計誤差は、約±7‰ であった。この値は、LSC 法の誤差と大差がない。また、再現性についても、±8‰ 以内と、LSC 法に比べて特に優れている訳ではない。従って、充分な試料量が確保できるならば、LSC 法による分析の精度は、AMS 法とほぼ同程度であることが解った。

一方、同一試料に対する LSC 法と AMS 法の $\Delta^{14}C$ 値を比較すると、その差は平均約 15‰ であり、AMS 法で得た値の方が LSC 法で得た値よりも全体的に低い傾向を示した。また、グラフから解るように、LSC 法と AMS 法の $\Delta^{14}C$ 値は、ほぼ平行にずれている (Fig. 4 参照)。LSC 法では、NIST シュウ酸 (4990C) から合成したベンゼンの比放射能を基準として、$\Delta^{14}C$ 値を算出する。これを考慮すると、両者の $\Delta^{14}C$ 値がほぼ平行にずれている理由は、LSC 法の標準物質として用いた NIST シュウ酸 (4990C) から合成したベンゼンの $\Delta^{14}C$ 値と、AMS 法の標準物質として用いた NIST シュウ酸 (4990C) から調製したグラファイト・ターゲッ

トの $\Delta^{14}C$ 値との微少なずれが、原因であると考える。

Fig. 4 に示すように、AMS 法では、石川県内の異なる 3 地点（羽咋郡志賀町高浜、同町小浦及び金沢市舘町）において採取したいずれの樹木の $\Delta^{14}C$ 値においても、1992 年の一時的な上昇は認められなかった。従って、LSC 法で見られた 1992 年の一時的な上昇は、原子力発電所由来の影響を反映した結果ではなく、LSC 法による分析過程に起因するものと考える。

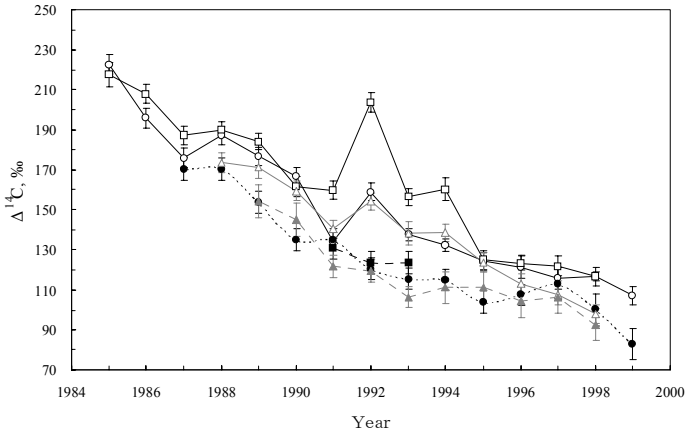


Fig. 4 Comparison of two methods to measure the $\Delta^{14}C$ values of tree rings.
Takahama（○:LSC, ●:AMS） Oura（□:LSC, ■:AMS）
Kanazawa-city（△:LSC ▲:AMS)

1) Y. Yamada, K. Yasuike, M. Itoh, N. Kiriyama, K. Komura: "Carbon-14 dating of tree rings for tritium measurement" J. Radioanal. Nucl. Chem., 227(1-2), p.37 (1998).

2) Y. Yamada, K. Yasuike, K. Komura: "Temporal Variation of Carbon-14 Concentration in Tree-ring Cellulose for the Recent 50 Years" J. Nucl. Radiochem. Sci., 6(2), p.17 (2005).

3) 山田 芳宗, 安池 賀英子: "樹木年輪中のトリチウム濃度及び ^{14}C 濃度の変動" 石川県環境放射線バックグラウンド調査報告書（石川県）, 43 (2003).

Comparison of Liquid Scintillation Counting Measurement with Accelerator Mass Spectrometric Measurement

Yoshimune Yamada(1), Kaeko Yasuike(1), Hikaru Amano(2)

(1) Faculty of Pharmaceutical Sciences, Hokuriku University
(2) AMS Management Section, Japan Atomic Energy Agency

Concentrations of organically-bound ^{14}C in the tree-ring cellulose samples were analyzed by the accelerator mass spectrometric measurement (hereafter the AMS measurement) and compared with those of the same samples by the liquid scintillation counting measurement (hereafter the LSC measurement). This was done to determine the reliability of LSC measurement. An important result is that the $\Delta^{14}C$ values analyzed by the AMS measurement demonstrated lower levels of approximately 15‰ than those by the LSC measurement. These deviations are considered to be caused by indeterminate errors in the counting of the specific activity of the standard reference of ^{14}C used for the LSC measurement. The synthesized benzene prepared from NIST oxalic acid (SRM4990C) was used as the standard reference of ^{14}C in the LSC measurement.

3.7 日本海における水塊構造と海水循環の解明

乙坂 重嘉(1), 田中 孝幸(1), 外川 織彦(1), 天野 光(2), 荒巻 能史(3)

(1) 日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究部門 環境動態研究グループ
(2) 日本原子力研究開発機構 青森研究開発センター AMS 管理課
(3) 国立環境研究所 化学環境研究領域

1. はじめに

日本海は、我が国の水産資源を支える主要海域のひとつである。日本海は、大洋に比べて容積が小さいことから環境変動の影響を受けやすく、環境変動が海洋に与える影響を感度よく示す「ミニチュア大洋」として注目を集めている(1)。その一方で、日本海は、1960年代から90年代にかけて、旧ソ連他による放射性廃棄物が投棄された海域としても知られている(2)。日本海における海水の流動と、それに伴う諸物質の輸送・蓄積過程を明らかにすることは、日本海が抱える固有の問題のみならず、全球的な環境変動のしくみを紐解く上で重要な課題である。

2. 原子力機構による日本海調査

原子力機構では、日本海における放射性核種の蓄積量と移行過程を明らかにする目的で、ISTC（国際科学技術センター）パートナープロジェクト（1999-2002 年）、科学技術庁/文部科学省からの受託調査（1997-2002 年）、（独）水産総合研究センターほか国内機関との共同研究等によって、日本海の広域で海洋調査を実施した。一連の調査航海によって、延べ 111 の観測点（図１）で海水試料が採取され、塩分、溶存酸素濃度、栄養塩（ケイ酸、硝酸、亜硝酸、リン酸）濃度といった基本的な項目や、代表的な人工放射性核種（ストロンチウム-90, セシウム-137, プルトニウム-239,240）濃度の他に、海水流動のトレーサーとして有効な溶存無機炭酸中の放射性炭素（DIC-14）同位体比を測定した(3)。約 3,000 におよぶ DIC-14 測定用の海水試料のうち、2,500 試料が JAEA-Mutsu AMS によって測定されている（2007 年 9 月末現在）。

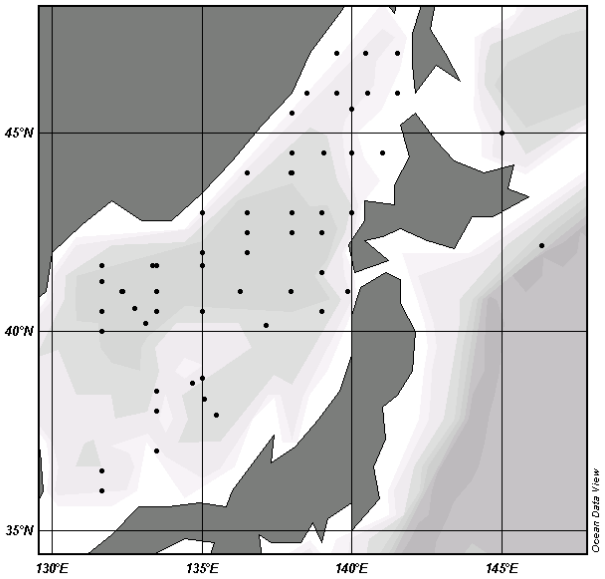


図 1 原子力機構が調査を実施した海水試料採取点.

3. 日本海における DIC-14 分布に関する最近の成果

Aramaki *et al*., (2007) では、2002 年夏季に日本海北部（北緯 42 度～47 度）の 13 観測点で行った観測結果から、同海域における深層水の特性と、深層水の形成海域としての役割を評価した [(4)] 。日本海北部（間宮海峡付近）は同西部（ウラジオストク沖）と並んで、日本海の海氷形成域として知られている（図 2）。一般に、海氷を起源とする低温・高密度な海水は深層へと潜り込みやすいため、海氷形成域はその海域の深層水を形成し、深層循環をコントロールすると考えられている。海氷形成域での詳細な DOC-14 分布から、比較的高い $\Delta^{14}C$ 値で特徴付けられる表層海水の輸送経路を追跡することにより、深層水の形成の規模や循環過程を推測することができる。

日本海北部海域の表層（水深 100 m 以浅）における海水中の$\Delta^{14}C$ 値は+53 ± 8‰で、太平洋やオホーツク海での表層海水のそれに比べて有意に高かった。この結果から、日本海北部の表層の海水は、日本列島に沿って北上する対馬暖流水が支配的であることがわかった。さらに、水深 25 m における海水中の$\Delta^{14}C$ 値は、対馬暖流水起源と考えられる周辺地点での海水に比べて 10‰程度しか低くないことから、アムール河を起源とする淡水の寄与は十分に小さいと判断された。

舟状の海底地形を持つ日本海北部海域の中央部では、水深 25 m 付近に低温・低塩分の（海氷起源と見られる）海水が見られたが、その海水は、同地点の 100 m 深には達していなかった。この結果から、少なくとも 2001～2002 年の冬季には、日本海北部では深層水は形成されていないことが示唆された。

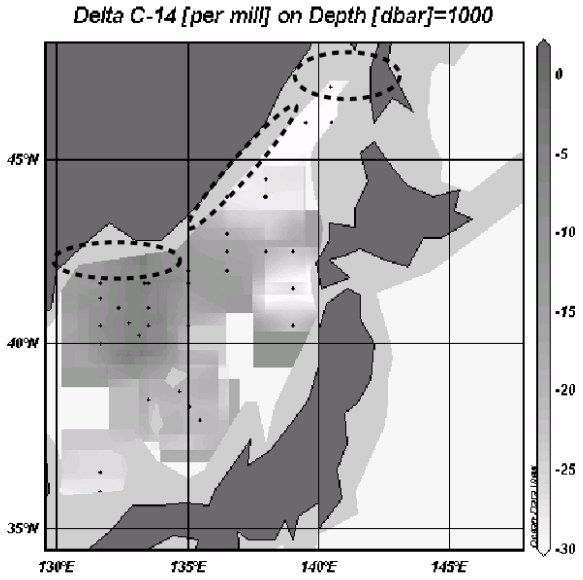


図 2. 水深 1,000ｍ深における海水中の$\Delta^{14}C$ 値. 点線で囲まれた海域は、海氷が形成されると考えられている海域.

図 2 に示すとおり、日本海の水深 1,000m 層における海水中の$\Delta^{14}C$ 値は、北部（間宮海峡付近）に比べて西部（ウラジオストク沖）で 10～30‰ 程度高い。この結果から、表層の高い$\Delta^{14}C$ 値を持つ海水の深層への輸送は、北部に比べて西部でより活発であることがわかった。過去の研究では、日本海の深層水の大部分が北部で形成されていると考えられていたが[(5)]、本研究により、日本海における深層水循環をコントロールしているのは主に西部であると推測された。

4. おわりに

日本海の広範囲における海洋観測と海水中の ^{14}C 分析により、放射性核種としての DIC-14 分布のデータベースが構築できるばかりでなく、日本海における海水流動の全体像が把握

できつつある。「ミニチュア大洋」である日本海における海水循環の正しい理解のために、引き続き分析・解析を進める予定である。

謝辞

本研究の試料分析において、（独）日本原子力研究開発機構 AMS 管理課の諸氏、特に、小野冬子氏には多大なご協力をいただいた。試料採取においては、R/V Professor Khromov 号、越路丸、蒼鷹丸、第 12 海工丸、第 7 開洋丸、北星丸、若潮丸の乗組員および調査員諸氏のご協力をいただいた。記して謝意を表す。

参考文献

1) T. Gamo: “Global warming may have slowed down the deep conveyor belt of a marginal sea of the northwestern Pacific: Japan Sea” Geophys. Res. Lett., 26, pp.3141-3144 (1999).
2) A.V. Yablokov, V.K. Karasev, V.M. Rumyantsev, M.Ye. Kokeyev, O.I. Petrov, V.N. Lystsov, A.F. Yemelyanenkov and P.M. Rubtsov: “Facts and problems related to radioactive waste disposal in seas adjacent to the territory of the Russian Federation” Office of the President of the Russian Federation, Moscow (1993).
3) O. Togawa, O., T. Ito and S. Otosaka: “Transport processes of radionuclides in the Japan Sea obtained by JAEA’s expeditions” Japanese Journal of Health Physics, 42, pp.234-246 (2007).
4) T. Aramaki, T. Senjyu, O. Togawa, S. Otosaka, T. Suzuki, T. Kitamura, H. Amano, and Y.N. Volkov: “Circulation in the northern Japan Sea studied chiefly with radiocarbon” Radiocarbon, 49, pp.915-924 (2007).
5) S. Martin, E. Munoz and R. Drucker: “The effect of severe storms on the ice cover of the northern Tatarskiy Strait” J. Geophys. Res., 97, pp.17753-17764 (1992).

Seawater movement in the Japan Sea inferred from ^{14}C measurement in seawater

Shigeyoshi Otosaka[(1)], Takayuki Tanaka[(1)], Orihiko Togawa[(1)], Hikaru Amano[(2)]
and Takafumi Aramaki[(3)]

(1) Research Group for Environmental Science, Japan Atomic Energy Agency
(2) AMS Management Section, Japan Atomic Energy Agency
(3) National Institute for Environmental Studies

Research Group for Environmental Science, JAEA has carried out oceanographic observations in the Japan Sea since 1997 to clarify the biogeochemical cycle in the Japan Sea. More than 3,000 seawater samples for measurement of radiocarbon were collected during the observations, and radiocarbon in the seawater samples was measured at AMS facility in JAEA Mutsu. In this paper, formation and circulation of water mass in the northern Japan Sea were discussed using analysis of radiocarbon and hydrographic data (e.g. salinity, temperature, nutrients).

3.8 日本海および青森周辺海域における粒子状有機物の循環過程

乙坂 重嘉[(1)]、田中 孝幸[(1)]、外川 織彦[(1)]、天野 光[(1), (2)]

(1) 日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究部門 環境動態研究グループ
(2) 日本原子力研究開発機構 青森研究開発センター AMS 管理課

1. はじめに

海洋における粒子状有機物（POM: Particulate Organic Matter）は、海洋表層での生物活動によって生産されるほかに、河川・大気を通じて陸上から供給される。海水中の POM は、分解、凝集を繰り返しながら海洋内部へと運ばれ、一部は海底に蓄積される。海洋における POM は、特に親生物元素の海洋内部への輸送媒体として重要な役割を果たすため、海水中での POM の輸送過程を明らかにすることにより、POM を介して海水中を移動する諸物質の循環像を描くことができる。

POM 中の放射性炭素（^{14}C: 半減期 5730 年）同位体比から得られる POM の「見かけの年齢」は、POM の供給源や輸送過程を追跡するための指標として利用されている[(1)]。しかしながら、POM 中 ^{14}C 同位体比は、海洋表層での POM 生産時からの経過時間ばかりではなく、海底や陸域からの POM 供給[(2), (3)] や、海水中に溶存する有機物の粒子化の程度[(4)] をも反映して変化することが指摘されている。さらに、日本周辺海域では、POM 中の放射性炭素に関する情報が少なく、POM 循環の時間スケールについての理解が十分とは言い難い。そこで本研究では、日本列島周辺のほぼ同緯度の 2 海域で得られた POM 試料の分析結果から、POM 中の「見かけの年齢」を変化させる因子について議論する。

2. 方法

本研究の試料採取海域を図 1 に示す。POM 試料の採取は、北海道西方沖（海域 A）および日高沖（海域 B）の 2 海域において、現場大量濾過装置、セジメントトラップ、箱型採泥器を用いて行った。セジメントトラップ実験では、5%中性ホルマリンを試料捕集容器内の防腐剤として用いた。現場濾過実験、セジメントトラップ実験のいずれの方法においても、GF/F フィルター上に集められたものを「粒子」としており、定義上は同じ範囲の粒径を持つが、便宜上、前者によって得た粒子を「懸濁粒子」、後者によるものを「沈降粒子」と記述する。

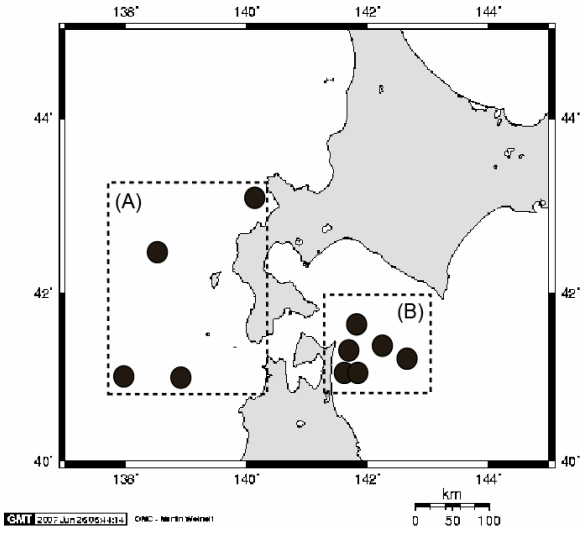


図 1. 本研究で試料採取を実施した観測点

得られた粒子は、真空乾燥し、塩酸を用いて炭酸塩を除去した後、有機態炭素のみを酸化剤とともに加熱・酸化させ、得られた二酸化炭素ガスを再びグラファイトに還元して、^{14}C同位体比を加速器質量分析装置（JAEA-Mutsu AMS）で計測した。全ての試料について、二酸化炭素ガスの一部を、安定炭素同位体比（$^{13}C/^{12}C$）の測定に供した。比較試料として、北日本の主要河川の堆積物についても ^{13}C と ^{14}C 同位体比を測定した。ほぼ全ての試料について、ICP 発光分析による元素分析を行った。

3. 結果と考察

海域 A および B で得られた POM 中の$\Delta^{14}C$値の鉛直分布を図 2 に示す。

沈降粒子中の$\Delta^{14}C$ 値は、±30‰程度の季節変動を示した。懸濁粒子中の$\Delta^{14}C$ 値は、同深度、同時期に得られた沈降粒子のそれに比べて 20‰程度低かった。懸濁 POM が沈降 POM に比べて小さな$\Delta^{14}C$ 値を示すことは過去の研究でも得られており、海底堆積物からの再懸濁が影響していることが指摘されている[2]。しかしながら、試料を採取した水深の海底からの距離と、$\Delta^{14}C$ 値との間には、有意な関係は見られないことを考慮すると、POM の$\Delta^{14}C$ 値は、その場所の海底からの物質供給のみでは説明できないことが示唆された。

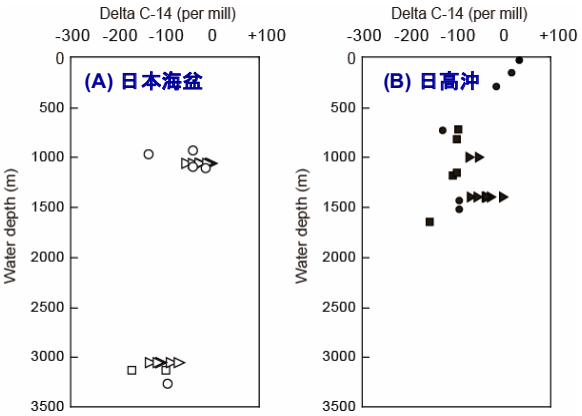


図 2. POM 中の$\Delta^{14}C$ 値の鉛直分布．丸印は懸濁粒子，三角印は沈降粒子，四角印は堆積物（0-1 cm 層）の値を示す．

本研究で得られた POM の$\Delta^{14}C$ 値と$\delta^{13}C$ 値との関係を図 3 に示す。いずれの海域でも、沈降粒子（三角印）は、海洋表層のプランクトンの一般的な値[5] と周辺河川からの陸起源 POM の値の中間にプロットされた。沈降粒子の$\Delta^{14}C$ 値は、表層で生産された POM と周辺地域か

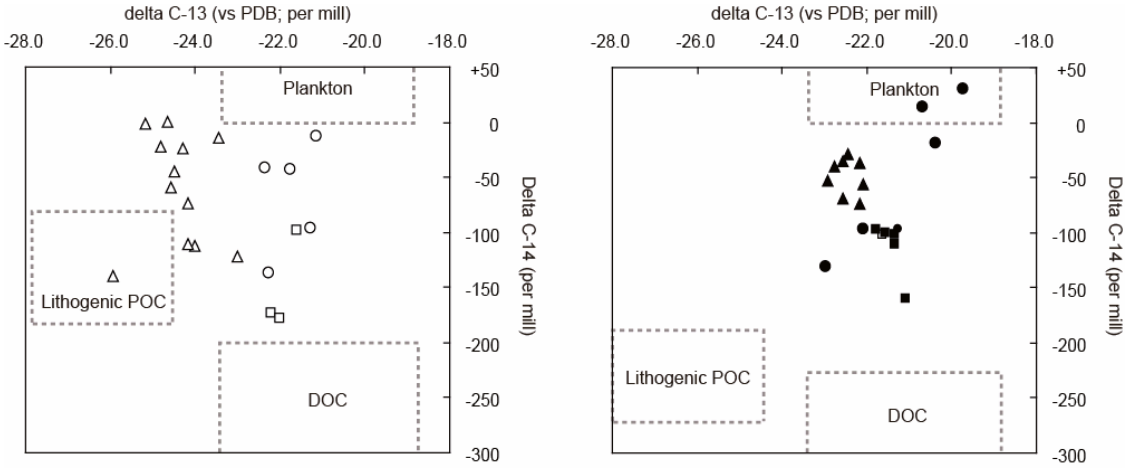


図 3. POM 中の$\delta^{13}C$ 値と$\Delta^{14}C$ 値との関係．丸印は懸濁粒子，三角印は沈降粒子，四角印は堆積物（0-1 cm 層）の値を示す．

ら供給された陸起源 POM の混合の程度を示していると考えられた。

懸濁粒子（丸印）や堆積物（四角印）では、同海域、同水深で得られた沈降粒子にくらべて$\delta^{13}C$ 値が高く、$\Delta^{14}C$ 値が低かった。海洋深層で POM の$\delta^{13}C$ 値を増加させる原因として、海水柱内での比較的安定な有機物（脂質など）の無機化が考えられる[6]。沈降粒子と懸濁粒子の間で見られた$\Delta^{14}C$ 値および$\delta^{13}C$ 値の違いは、海水柱内での POM の段階的な変質過程とその経過時間を示していると推測される。

4. おわりに

本研究で調査を実施した 2 海域では、 (1) 沈降粒子中の陸起源 POM と海洋起源 POM の混合比、(2) 沈降 POM の分解による懸濁粒子の生成と、海水柱内での変質と時間経過が、POM の「見かけの年齢」を決定していると考えられる。陸起源 POM の沈降 POM と懸濁 POM 中の$\Delta^{14}C$ 値を詳細に比較すれば、理論的には海水柱内での POM の「実年齢」を見積もることが可能で、本研究によって得られる POM の年齢に関する情報は、POM を媒体とした諸物質の循環の時間スケールを知る有効な手がかりとなるだろう。

謝辞

本研究の試料分析において、（独）日本原子力研究開発機構 AMS 管理課の諸氏、特に、馬場正美氏、山道美和子氏のお 2 人には、多大なご協力をいただいた。試料採取においては、蒼鷹丸、第 12 海工丸、北星丸、みづほ丸、若潮丸の乗組員および調査員諸氏のご協力をいただいた。記して謝意を表す。本研究は、科研費補助金事業 若手研究（B）「放射性炭素を指標とした陸起源有機物の年齢の定量化」 (課題番号 18710019) の成果の一部を含む。

参考文献

1) P.M. Williams and E.R.M. Druffel: “Radiocarbon in dissolved organic matter in the central North Pacific Ocean” Nature, 330, pp.246-248 (1987).
2) T. Nakatsuka, N. Handa, N. Harada, T. Sugimoto and S. Imaizumi: “Origin and decomposition of sinking particulate organic matter in the deep water column inferred from the vertical distributions of its $\delta^{15}N$, $\delta^{13}C$ and $\Delta^{14}C$” Deep-Sea Res. I, 44, pp.1957-1979(1997).
3) J.E. Bauer and E.R.M. Druffel: “Ocean margins as a significant source of organic matter to the deep open ocean” Nature, 392, pp.482-485 (1998).
4) E.R.M. Druffel and P.M. Williams: “Identification of a deep marine source of particulate organic carbon using bomb 14C” Nature, 347, pp.172-174 (1990).
5) M.R. Fontugne and J.-C. Duplessy: “Organic carbon isotopic fractionation by marine plankton in the temperature range -1 to 31°C” Oceanologica Acta, 4, pp.85-90 (1981).
6) J. Hwang and E.R.M. Druffel: “Carbon isotopic ratios of organic compound fractions in oceanic suspended particles” Geophys, Res. Lett., 33, L23610, doi: 10.1029/2006GL027928 (2006).

Biogeochemical cycle of particulate organic carbon in the Japan Sea and northwestern North Pacific.

Shigeyoshi Otosaka[(1)], Takayuki Tanaka[(1)], Orihiko Togawa[(1)] and Hikaru Amano[(1), (2)]

(1) Research Group for Environmental Science, Japan Atomic Energy Agency
(2) AMS Management Section, Japan Atomic Energy Agency

An apparent age of particulate organic matter (POM) in seawater that is estimated from isotopic ratio of radiocarbon is convenient indicator for verifying transport processes of biogenic materials in the ocean. However, it is suggested that the isotopic ratio of radiocarbon also reflects a mixing of "old" POM from the surrounding regions and/or seafloor as well as an age of the POM. In this study, we discuss the cause of the variation in apparent age of POM from radiocarbon measurements of various particulate materials obtained at the northeastern Japan Sea and the northwestern North Pacific.

3.9 溶存態有機物中放射性炭素測定システムの開発と海水中溶存有機炭素の循環に関する研究

田中孝幸(1)、乙坂重嘉(1)、天野光(2)、外川織彦(1)

(1) 日本原子力研究開発機構　原子力基礎工学研究部門　環境動態研究グループ
(2) 日本原子力研究開発機構　青森研究開発センター　AMS 管理課

1. はじめに

海水中溶存態有機物は、大気中の二酸化炭素に匹敵する量が存在し、さらに、微生物分解され難く、海水中に長期間、安定的に存在する有機物もある。海水中溶存態有機物の挙動を解明することは、海洋の炭素循環、さらには地球温暖化の影響を紐解く上で、非常に重要な因子と考えられる。溶存態有機物の動態の時間スケールや供給源の情報を与えうる溶存態有機物の放射性炭素同位体比は、測定方法の困難さによりデータが非常に少ない。そこで、本研究では、溶存態有機物中放射性炭素測定システムを確立し、日本海での鉛直分布を得ることとした。

2. 実験方法

溶存態有機物中の放射性炭素同位体比測定用の海水試料は、2005 年 7 月、日本海大和海盆M25(40.1 ºN,137.1 ºE、1,732m)の表層から深層までの 9 層で採取した。ニスキン採水器で採取した各層の海水 4LをGF/Fガラスフィルター(0.7 μm)により濾過し、予め 550 ℃で燃焼した 1Lのデュラン瓶(4 本)に冷凍保存して研究室に持ち帰った。溶解した濾過海水を紫外線照射専用の石英製反応管に注ぎ密閉し、海水に溶解している溶存無機炭素をヘリウムガス及び酸素ガスで 1.5 時間バブリングすることにより除去した。溶存無機炭素を除去した海水を 1,000Wの紫外線で約 22 時間照射することにより、溶存態有機物を二酸化炭素に酸化した[(1)]。酸化した二酸化炭素を真空ラインにおいて寒剤で捕集し、寒剤の温度を変えて水などの不純物を除去した。抽出する際、同時に発生する塩素ガスは、ヨウ化カリウムを用いて除去した。精製した二酸化炭素は、鉄触媒を用い水素で還元することで、加速器質量分析装置で測定可能なグラファイトにした[(2)]。日本原子力研究開発機構むつ事務所が所有する加速器質量分析装置(JAEA-Mutsu AMS：High Voltage Engineering Europa製 Model 4130-AMS)により$^{14}C/^{12}C$比、また、質量分析計(Finnigan mat delta-plus)で$\delta^{13}C$を測定し、溶存態有機炭素の$\Delta^{14}C$を算出した。

3. 溶存態有機物中放射性炭素測定システムの評価

紫外線酸化法による溶存態有機物中放射性炭素の酸化効率を確認するために、放射性炭素測定の標準試料であるシュウ酸（HOxⅡ：NIST-SRM-4990C）水溶液での実験を行った。

その結果、紫外線酸化法によるシュウ酸の二酸化炭素への酸化効率は、98 ± 0 %、その$\Delta^{14}C$

値は、332 ± 4 ‰となった（表 1)。この$\Delta^{14}C$値は、燃焼法（有機物試料における一般的な酸化方法：有機物を酸化銅と共に 900℃で燃焼し酸化）によるシュウ酸の測定値（331 ± 3 ‰）と誤差範囲内で一致した。溶存態有機物から二酸化炭素を高酸化率で回収し、高精度な$\Delta^{14}C$測定を可能とするシステムが本研究で完成した。

表 1、放射性炭素標準試料における酸化効率と$\Delta^{14}C$値

有機物	炭素量(mg)[1]	回収量(mg)[2]	回収率(%)	$\Delta^{14}C$ (‰)
NIST(070116)	2.35	2.28	97	330
NIST(070119)	2.30	2.24	98	336
NIST(070123)	2.34	2.28	98	328
NIST(070217)	2.40	2.36	98	329
NIST(070220)	2.36	2.29	97	334
NIST(070221)	2.33	2.29	98	328
NIST(070223)	2.37	2.32	98	336
NIST(070227)	2.48	2.42	97	339
NIST(070320)	2.39	2.34	98	326
NIST(070403)	2.51	2.43	97	339

1:重量測定より算出

2:紫外線酸化法により抽出した二酸化炭素を圧力測定し算出

4. 溶存態有機物中放射性炭素測定システムの海水への適用

海水中の溶存態有機物には難分解性有機物が含まれていることから、本研究で導入した紫外線酸化システムが実際の海水中溶存態有機物においても、安定した二酸化炭素回収率、高精度の$\Delta^{14}C$値が得られるかを確認した。海水試料としては、津軽海峡東部（青森県関根浜沖 : 41.3 ºN, 141.3 ºE）で採取した表面海水を用いた。津軽海峡東部の表面海水における紫外線酸化法での回収濃度は安定しており、かつ、溶存態有機物の$\Delta^{14}C$値は-217 ± 8 ‰となり、非常に高精度な結果であった（表 2)。この結果により、本研究で導入した溶存態有機物中放射性炭素測定システムは、海水においても適応可能であることが示された。

表 2、津軽海峡東部での$\Delta^{14}C$値

	回収濃度(μ mol/l)	$\Delta^{14}C$ (‰)
1	61	-207
2	60	-215
3	61	-220
4	62	-226

5. 日本海における溶存態有機物中放射性炭素の鉛直分布

日本海大和海盆で得られた溶存態有機炭素の$\Delta^{14}C$値は、表面で最も高い-192 ‰であり、その後、深さと共に減少し（古くなり）、1,000 m以深ではほぼ一定な-306 ‰となった（図 1）。日本海深層の$\Delta^{14}C$は、東部北太平洋の値(-550 ‰程度)[3]、西部北大西洋の値(-350～-400 ‰)[4]、南極海(-500‰程度)[5]より高い値を示した。この違いは、海域間での深層循環の時間スケールの違いを反映していると考えられる。本研究は、これまで溶存態有機炭素の$\Delta^{14}C$値が空白海域となっていた日本近海で、初めてその値を得ることができたという意味で、非常に重要である。

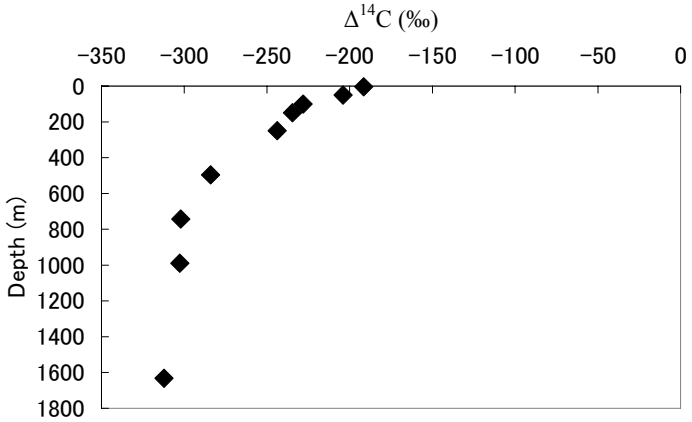


図 1　日本海大和海盆での溶存態有機物中放射性炭素

謝辞

本研究は、財団法人日本科学協会・笹川科学研究助成による研究課題「放射性炭素に基づく海洋中溶存態有機物の起源とその循環」(課題番号 19-736M) の成果を一部、含んでおります。

参考文献

1) Druffel, E. R. M., P. M. Williams, K. Robertson, S. Griffin, A.J.T. Jull, D. Donahue, L. Toolin and T. W. Linick, Radiocarbon in dissolved organic and inorganic carbon from the central north Pacific, Radiocarbon, 31, pp.523-532, 1989

2) Aramaki, T., T. Mizushima, Y. Mizutani, T. Yamamoto, O. Togawa, S. Kabuto, T. Kuji, A. Gottdang, M. Klein and D. J. W. Mous, The AMS facility at the Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI), Nucl. Inst. and Meth. B172, pp.18-23, 2000

3) Druffel, E. R. M., P. M. Williams, J. E. Bauer, and J. R. Ertel, Cycling of dissolved and particulate organic matter in the open ocean, J. Geophys. Res., 97, 15,639-15,p.659, 1992

4) Bauer, J. E., P. M. Williams and E. R. Druffel, ^{14}C activity of dissolved organic carbon fractions in the north-central Pacific and Sargasso Sea, Nature, 357, pp.667-670, 1992

5) Druffel, E. R. M. and J. E. Bauer, Radiocarbon distributions in Southern Ocean dissolved a nd particulate organic matter, Geophys. Res. Lett., 27, 1,495-1,p.498, 2000

Development of analysis system of dissolved organic radiocarbon and study on its circulation in sea water

Takayuki Tanaka[(1)] ,Shigeyoshi Otosaka[(1)], Hikaru Amano [(2)] and Orihiko Togawa[(1)]

(1) Research Group for Environmental Science, Japan Atomic Energy Agency
(2) AMS Management Section, Japan Atomic Energy Agency

Radiocarbon of dissolved organic matter in seawater gives the information on the dynamics and origin of dissolved organic matter, but there are very few data in the world ocean because of the difficulties of the measurement technique. In this study, we tried to develop the analysis system of dissolved organic radiocarbon, and then obtained its vertical profile in the Japan Sea. The precision of $\Delta^{14}C$ values of the standard material was less than ± 4 ‰ for the developed system, indicating that the system achieved the accurate isotopic results. We found that the $\Delta^{14}C$ of deep water in the Japan Sea were the highest in the world deep water, mainly caused by the difference in the circulation of deep water.

3.10 ^{14}C をトレーサーとして利用した森林中炭素挙動研究

安藤麻里子(1)、小嵐淳(1)、石塚成宏(2)、齋藤武史(3)、平井敬三(3)

(1) 日本原子力研究開発機構　原子力基礎工学研究部門　環境動態研究グループ
(2) 森林総合研究所　立地環境研究領域　土壌資源研究室
(3) 森林総合研究所　東北支所

1. はじめに

森林は陸域における炭素の巨大な貯蔵庫であり、大気との炭素交換量が大きいため、地球温暖化ガスである CO_2 の循環において極めて重要である。特に、土壌有機物分解による CO_2 の発生が温暖化の影響で増加し、正のフィードバックが働くことが懸念されることから、森林生態系内の炭素循環・貯留機能を正確に評価することが求められている。土壌表面から放出される CO_2 は土壌呼吸と呼ばれ、その発生源は植物の根呼吸と土壌有機物の分解である微生物呼吸に大別できる。また、土壌有機物は分解過程の異なる様々な状態で存在しているため、温暖化の影響を推定する際には、これらの CO_2 起源を分けて評価する必要がある。私達は、土壌に植物の枯死体（リター）として添加される炭素中の ^{14}C が大気中核実験の影響で 1950 年代以降大きく変動したことを利用し、土壌呼吸起源の相対的重要性及び、環境変動が CO_2 放出に与える影響の評価を目的とした研究を実施している。ここでは、ブナを主とする冷温帯林において土壌有機物の滞留時間及び CO_2 放出速度の評価を行った結果を報告する。

2. 実験方法

岩手県安比高原のブナ林（安比森林気象試験地：北緯 40.0°，東経 140.9°，海抜 825m，樹齢約 70 年）において，2005 年 10 月に土壌表層に蓄積したリター層（L 層，F 層）を，2005 年 7 月に土壌表層から深さ 20cm の土壌コアを採取した。採取したリターはそのまま乾燥し粉砕した。土壌コアは 2 cm ごとに切り分けて 50°C で乾燥した後，2 mm メッシュのふるいにかけ，さらに葉や枝の形が残った植物片や細根をハンドピッキングにより取り除き粉砕した。深さ 6 cm までの土壌には植物片が多く存在したため、各層毎に取り分けて粉砕し測定試料とした。このようにして得られた試料について、炭素量を TOC 測定装置（島津製作所 TOC-5000，SSM-5000A）で測定した後、850 °C で燃焼して発生した CO_2 を真空ラインを用いて精製・分取し、炭素同位体の測定試料とした。^{13}C は MAT-252（Finnigan MAT）を、^{14}C は原子力機構むつ事業所の加速器質量分析装置（AMS）を使用して測定した。

3. 滞留時間評価法

^{14}C は 1950 年代から 1960 年代初めに数多く行われた大気圏内核実験により大気中の濃度が約 2 倍まで上昇した後、現在まで年々低下を続けている。そのため核実験起源の ^{14}C を含

む炭素は正の$\Delta^{14}C$値を示す。ここでは、$\Delta^{14}C$値が100‰以上の土壌及びリターについて、Hsiehの方法に基づき[1]、次式を用いて滞留時間を推定した。

$$^{14}C_{SOM,y} = \sum_{i=b}^{y} \exp\left[-k(y-i)\right] \times {}^{14}C_{i-\tau} \cdot \exp\left[-(y-i)/8268\right] \Big/ \sum_{i=b}^{y} \exp\left[-k(y-i)\right] \qquad (1)$$

ここで、$^{14}C_{SOM,y}$：土壌有機炭素の$\Delta^{14}C$、y：土壌採取年、k：有機物分解の速度定数（k=1/MRT）、$^{14}C_{i-\tau}$：i年に土壌に添加された土壌有機物の$\Delta^{14}C$、である。大気中$\Delta^{14}C$値として石川県で採取した年輪中の$\Delta^{14}C$値[2),3)]及び安比森林気象試験地で採取したブナの葉の$\Delta^{14}C$値を使用した。土壌コアを採取した2005年における土壌について、式(1)より求めた$\Delta^{14}C$と平均滞留時間（MRT）の関係を図1に示す。

$\Delta^{14}C$が-25‰以下の土壌層については、^{14}Cの放射壊変を利用した年代推定法により平均滞留時間を求めた。また、-25‰＜$\Delta^{14}C$＞100‰の土壌層については、上記の推定範囲を考慮して平均滞留時間を120年～200年と推定した。

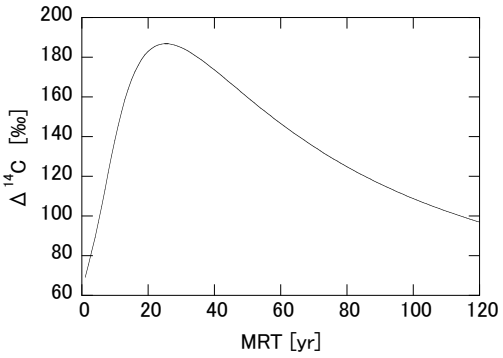


図1　2005年における土壌炭素の$\Delta^{14}C$と平均滞留時間(MRT)の関係

4.　結果と考察

リター及び土壌各層の$\Delta^{14}C$測定結果とその結果から得られた滞留時間を図2に示す。$\Delta^{14}C$はリターのL層で66‰であり、2005年7月に採取したブナの生葉の値(67‰)と同様の値を示した。土壌層深さ4~6 cmで154‰の最大値となり、この層が大気圏内核実験による大気中$\Delta^{14}C$のピークと対応していることを示した。それ以深では深さとともに減少した。滞留時間は、リター及び植物片、0~2 cmの土壌では数年程度、2~6 cmで50年程度、6~20 cmで100~1000年程度であると推定された。

各土壌層について測定した炭素貯留量を推定した平均滞留時間で割ることで，各土壌層からの炭素放出速度を算出した結果を表1に示す。実験土壌における深さ20 cmまでの炭

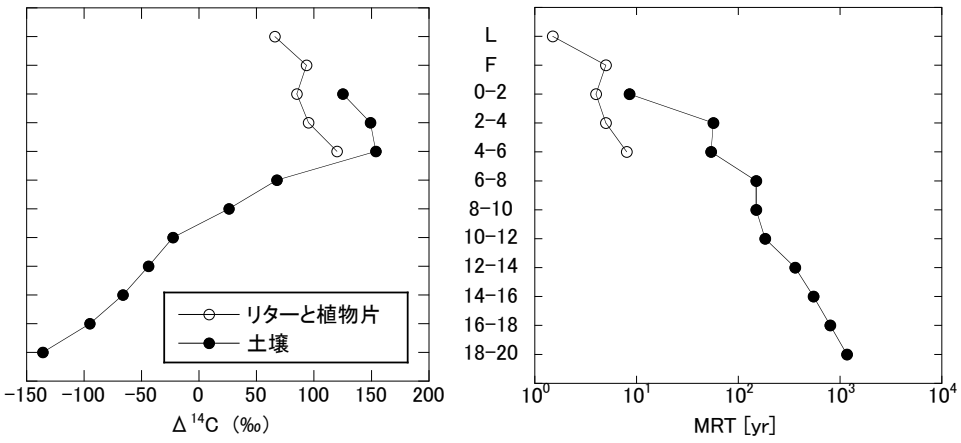


図2　土壌炭素の同位体分布と平均滞留時間(MRT)

表１　各層の炭素貯留量と炭素放出速度

土壌層	炭素貯留量 [kgC m^{-2}]	炭素放出速度 [kgC m^{-2} y^{-1}]
リター	0.7 (6.1%)	0.25 (51.3%)
植物片(0~6 cm)	0.4 (3.8%)	0.10 (20.9%)
0~2 cm	0.5 (4.7%)	0.06 (13.2%)
2~6 cm	2.2 (19.9%)	0.04 (8.5%)
6~20 cm	7.4 (65.6%)	0.03 (6.1%)
合計	11.3	0.47

素貯留量は 11.3 kgC m^{-2} であり，年間の微生物呼吸による炭素放出はリター層から土壌 20 cm までの積算量として 0.47 kgC m^{-2} y^{-1} と試算された。このうちリター層の炭素貯留量は 0.7 kgC m^{-2} であるにもかかわらず，リター分解の寄与は微生物呼吸による全炭素放出速度のおよそ半分を占めていると推定された。また、土壌表層に含まれる植物片の炭素放出速度に対する寄与は 21%であり、0~6%の土壌有機物の寄与とほぼ同様の大きさがあることが明らかとなった。これに対して、全体の約 68%の炭素を貯留している深さ 6 cm 以深の土壌からの炭素放出速度はわずかに 0.03 kgC m^{-2} y^{-1} であり，リター分解および表層土壌有機物分解による CO_2 放出の全土壌呼吸に対する重要性を強く示す結果が得られた。

Ishizuka ら [4]の論文によると、安比森林気象試験地において、密閉チャンバー法を用いて 2000 年ー2001 年の無雪期に土壌呼吸速度を月 1 回測定した結果と土壌温度の年間測定データをもとに計算した年間の土壌呼吸速度は 0.67 kgC m^{-2} y^{-1} である。この値と今回得られた微生物呼吸による炭素放出速度から土壌呼吸の各起源の寄与率を求めると、根呼吸が 29%、リターおよび植物片の分解が 52%、土壌有機物の分解が 19%と推定される。

5. 今後の予定

^{14}C をトレーサーとして利用することで、安比森林気象試験地における微生物呼吸起源の CO_2 放出速度を推定し、リター及び土壌各層それぞれの寄与率を求めることができた。今後、現在実施中である大気や土壌空気、土壌呼吸中の炭素同位体測定の結果を併せて、より正確な土壌呼吸起源の評価を行う予定である。

参考文献

1) Hsieh, Y. -P., “Radiocarbon signatures of turnover rates in active soil organic carbon pools”, Soil Sci. Soc. Am. J., Vol. 57, pp.1020-1022 (1993)

2) Yamada, Y., Yasuike, K., Itoh, M., Kiriyama, N., Komura, K. and Ueno, K., “Carbon-14 dating of tree rings for tritium measurement” J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 227, pp.37-41 (1998)

3) Yamada, Y., Yasuike, K. and Komura, K., “Temporal variation of carbon-14 concentration in tree-ring cellulose for the recent 50 years” J. Nucl. Radiochem. Sci., Vol. 6, pp.17-20 (2005)

4) Ishizuka, S., Sakata, T., Sawata, S., Ikeda, S., Takenaka, C., Tamai, N., Sakai, H., Shimizu, T., Kan-na, K., Onodera, S., Tanaka, N. and Takahashi, M., “High potential for increase in CO_2 flux from forest soil surface due to global warming in cooler areas of Japan” Ann. For. Sci., Vol. 63, pp.537-546 (2006)

Evaluation of carbon cycle in forest by using radiocarbon as a tracer

Mariko Atarashi-Andoh(1), Jun Koarashi(1), Shigehiro Ishizuka(2), Takeshi Saito(3), Keizo Hirai(3)

(1) Research Group for Environmental Science, Japan Atomic Energy Agency
(2) Department of Forest Site Environment, Forestry and Forest Products Research Institute
(3) Tohoku Research Center, Forestry and Forest Products Research Institute

Introduction

Radiocarbon (^{14}C) is an effective tracer in investigating the carbon dynamics in the environment. In this study, the measurements of ^{14}C in soil organic matter (SOM) in a cool-temperate deciduous forest were used to determine the mean residence time and CO_2 production rate. The contribution ratios of different soil CO_2 sources (SOM, litter and root) to CO_2 flux from the forest floor were estimated based on the results.

Experimental methods

Field experiments and soil sampling were conducted in the Appi forest meteorology research site (API) in Iwate prefecture, Japan. Stands in API consist dominantly of Japanese beech (*Fagus crenata*) and the ages are about 70 years. Soil cores (5 cm in diameter, 20 cm in depth) and litter (L and F layers) were collected in July and October of 2005. The ^{14}C isotopic ratio ($\Delta^{14}C$) was measured using accelerator mass spectrometry (AMS) in the Mutsu Establishment of the Japan Atomic Energy Agency.

Results and discussion

$\Delta^{14}C$ has a peak at a depth of 4~6 cm, which is ascribed to anthropogenic ^{14}C produced by atmospheric nuclear-weapon tests in the early 1960s. To determine the mean residence time of organic matter, we used a simple decomposition model similar to Hsieh's model[1] and the radiometric dating method. The decomposition rate of organic matter in each layer was derived by dividing the carbon storage by the estimated mean residence time. The decomposition rate in litter (L+F), recognizable plant debris (RPD) in soil and SOM in 0~20 cm soil layer were summed to 0.47 kgC m^{-2} y^{-1} and the contribution of litter (L+F) was estimated to be 51% of heterotrophic respiration, though the carbon storage was only 6.1%. The SOM in the depth of 6~20 cm contained about 66% of total carbon, but the decomposition rate was estimated as only 0.03 kgC m^{-2} y^{-1}. Ishizuka et al.[2] estimated the annual CO_2 flux from the forest floor in the Appi site to be 0.67 kgC m^{-2} y^{-1}. Based on this and our results, the contribution ratios of CO_2 sources to soil respiration in the Appi forest were estimated as: 29% from root respiration, 52% from litter and RPD decomposition and 19% from SOM decomposition.

References

1) Hsieh, Y. -P., Soil Sci. Soc. Am. J., Vol. 57, pp.1020-1022 (1993)
2) Ishizuka et al., Ann. For. Sci., Vol. 63, pp.537-546 (2006)

3.11 Soil gas CO_2 and its carbon isotope analyses in the semi-natural woods on the campus of Hokkaido University

Ryoko Fujiyoshi*[1)], Yukihide Haraki[1)], Takashi Sumiyoshi[1)] and Hikaru Amano[2)]

[1)] Graduate School of Engineering, Hokkaido University, Sapporo 060-8628

[2)] Aomori Research and Development Center, Japan Atomic Energy Agency, Mutsu-city 035-0064, Aomori Prefecture

* Corresponding author: e-mail; fuji@eng.hokudai.ac.jp

Carbon dioxide in soil air has been monitored in the holes at 30 and 100 cm in depth under a cool-temperate deciduous stand on the campus of Hokkaido University since June in 2007. Air samples were collected periodically from the holes, and also from the atmosphere in the woods (2 m in height from the soil surface). Carbon isotopic analyses of the CO_2 samples were performed by AMS at the Mutsu Facility of the Japan Atomic Energy Agency (JAEA-AMS-MUTSU). Preliminary results show that CO_2 in the woods including the air at 2 m in height may result from mixing of atmospheric air and soil components of various sources, such as CO_2 from contemporary soil organic matter and old carbon of deep source to a varying degree depending on meteorological and biological conditions.

1. Introduction

Carbon dioxide is one of the most controversial materials in the world because of its effect on global warming. Among a great many studies on CO_2 in various compartments of the earth, evaluating the behavior of CO_2 in soil-atmosphere systems are known to be difficult due to a variety of sources like respiration of living organisms, decomposition of soil organic matter and weathering of subsoil mineral components.

The present authors have measured soil radon (^{222}Rn) in the same point in the woods since June in 2002 to elucidate factors controlling its level and variability (Fujiyoshi et al., 2005). They have found that temperature is a predominant meteorological parameter controlling radon level in all the seasons except for winter. After lingering snow in December, activity concentration of ^{222}Rn has been kept low reflecting the soil temperature (0°C) at 30cm in depth. However, there appeared several radon “anomalies” during winter, which were closely related to a difference in barometric pressure between the atmosphere and the soil.

The aim of this study is therefore to trace the origin of soil air including CO_2 and ^{222}Rn in sub-boreal semi-natural woods with relatively small anthropogenic intervention. It is clear that carbon isotopic analyses ($\delta^{13}C$, $\Delta^{14}C$) are an excellent tool for this purpose.

2. Methods

The observation point is located on the campus of Hokkaido University, Sapporo, Japan. Geology of the site was reported to be of alluvial sediment derived from Toyohira River about 20,000 years ago (Kato et al., 1990). The subsoil consists of clay, silt and fine sand down to a depth of 20-30 m (Oka et al., 1991). The surface soil in the semi-natural deciduous woods appeared litter, humus and then clayey from the uppermost to a depth of 50 cm sequentially.

A CO_2 probe (TESTO435, TESTO, Germany) was emplaced in the hole at 30 cm (and 100 cm) in depth. It measured CO_2 concentration, soil temperature, humidity and barometric pressure every 10 min to store a set of data obtained in the data logger. Air samples were periodically collected with a pump (MP∑100H, Shibata Science) to an aluminum bag of 3L (or 30L) in volume through a dessicant (anhydrous $CaSO_4$, W.A. Hammond Drierite Company, US) in glass tube. Special care was taken not to include atmospheric air during soil air sampling. The samples sent to the Mutsu Office were on the pretreatment of dehydration and purification using freezing agents (a mixture of ethanol and dry ice, and liquid nitrogen), reduction of refined CO_2 samples to graphite with hydrogen gas (99.99995%) and high purity iron powder (>99.9%) as a catalyst at 650 °C for 5 hrs in an electric furnace. The graphite obtained was then prepared for a target sample for AMS (JAEA MUTSU-AMS; Model 4130-AMS, HVEE, Netherland).

3. Results and discussion

Figure 1 shows daily change in soil gas CO_2 monitored at the depths of 30 and 100 cm in the woods from June to August in 2007. The CO_2 concentration in soil air appeared diurnal-low and nocturnal-high, and consistently higher at deeper depth (100 cm) than shallower portion (30 cm) of the soil. Sudden increase in CO_2 concentration appeared in late August, which may be associated with increasing underground biological activity.

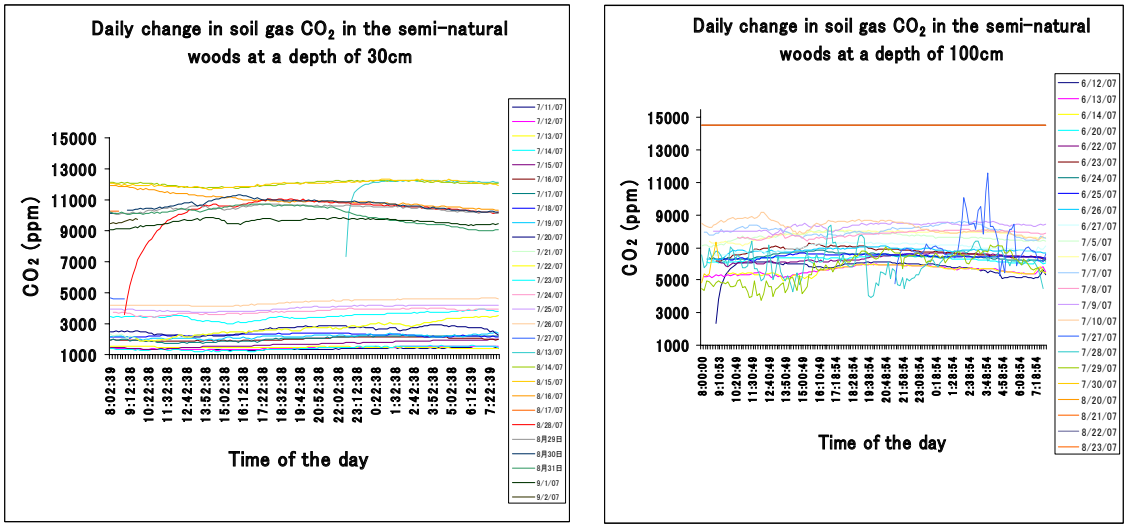


Figure 1 Daily change in soil gas CO_2 monitored at the depths of 30 and 100 cm in the woods from June to August in 2007.

The result of carbon isotopic analyses was shown in Table 1 as an example. The table includes data on reduction reaction yield (graphite formation), $\delta^{13}C$ (vs PDB) and $^{14}C/^{12}C$ ($\delta^{13}C$ = -25 ‰) of the samples as well as those on IAEA reference materials. More than 80 % of the graphite was recovered in most of the samples except for one collected in the morning of Sep. 6, 2007. It may be caused by a mistake of weighing Fe powder as a catalyst of CO_2 reduction.

Table 1 Results of carbon isotopic analyses of air samples as well as reference materials

Sample	Yield (%)	$\delta^{13}C$ (vs PDB)	$^{14}C/^{12}C \pm$ error
Air (Sep.5 2007)	83.8	-11.5	1.03×10^{-12} 3.3×10^{-15}
Air (Sep.6 am 2007)	82.5	-12.0	1.01 3.3
Air (Sep.6 pm 2007)	85.0	-11.4	0.995 3.3
Soil30 (Sep.6 am 2007)	31.3	-22.0	0.920 3.2
Soil30(Sep.6 pm 2007)	70.5	-21.0	0.926 3.2
Soil100 (Sep.6 am 2007)	87.0	-23.3	0.895 3.1
Soil100 (Sep. 6 pm 2007)	86.0	-23.1	0.889 3.1
Reference materials	Date: Sep.25-27 2007		
	Background $^{14}C/^{12}C$: $2.44\times10^{-15}\pm1.8\times10^{-16}$		
	Modern $^{14}C/^{12}C$: $1.01\times10^{-12}\pm3.2\times10^{-15}$		
	Reference materials:	pMC	$\delta^{13}C$ (vs PDB)
	IAEA-C6	148.7± 1.8	-10.34
	IAEA-C5	23.3± 0.12	-25.00

Figure 2 shows relations of carbon isotope ratio ($\delta^{13}C$ vs $\Delta^{14}C$) of atmospheric and soil air samples collected in February and September in 2007. Stable carbon isotopic ratio ($\delta^{13}C$) of CO_2 in atmospheric air in the woods was clearly lower than that for open air reported in the literature (Takahashi et al., 2004, Mayorga et al., 2005). Radiocarbon isotopic ratio ($\Delta^{14}C$) in soil air is generally lower at deeper portion (100 cm) than a shallower depth (30 cm) of the soil. The result was not consistent with those obtained by Liu et al (2006) who showed little difference in $\Delta^{14}C$ of soil air with depth under a Japanese larch stand in Aichi Prefecture, Japan. Such a differences in carbon isotopic data in soil air may be caused by a difference in soil properties. The plots of $\Delta^{14}C$ against $\delta^{13}C$ in atmospheric and soil air

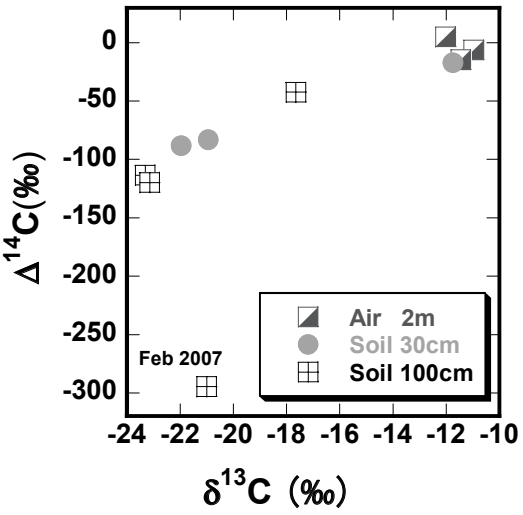


Figure 2 Relation between $\delta^{13}C$ and $\Delta^{14}C$ values in atmospheric and soil air samples collected in February and September, 2007.

samples gave a linear relationship except for one obtained at a depth of 100 cm in February in 2007. Considering isotopic ranges of several carbon sources in atmosphere-soil systems (Mayorga et al., 2005), the results shown in Fig. 2 suggests that CO_2 in the present woods are of the mixture of atmospheric air and soil components of various sources, such as respiration of plant roots, micro (and macro) organism and old carbon like carbonate minerals from deep source.

Further investigation should be conducted to identify potential CO_2 sources by collecting solid soil components including plant roots and humic substances in the woods.

4. Summary

Monitoring of CO_2 and its carbon isotope analyses were carried out for atmospheric and soil air samples in the sub-boreal deciduous woods on the campus of Hokkaido University, Sapporo, Japan. Concentration of CO_2 varied daily and seasonally depending on meteorological and biological conditions at the site. Carbon isotopic composition of CO_2 ($\delta^{13}C$, $\Delta^{14}C$) was found to be a powerful indicator for estimating the origin of CO_2 in soil environment. Further investigation should be done to find potential source(s) of CO_2 present in the soil, and to collect data on long term monitoring of soil air components.

5. Acknowledgements

One of the present authors (R. Fujiyoshi) wish to thank Ms. Miwako Yamamichi and the staff at Mutsu Office for helping pretreatments of air samples and processing during her stay at Mutsu.

6. References

Fujiyoshi , R., Kinoshita, M., Sawamura S., Variation of 222Rn activity concentration in soil gas at a site in Sapporo, Japan, Environ. Geochem. Health, 27, pp.539-547 (2005).

Kato, M., Katsui, Y., Kitagawa, Y., Matsui, M., Regional Geology of Japan. Part 1, Hokkaido, pp.132-139 (1990), Kyoritsu Shuppan, Tokyo (in Japanese).

Liu, W., Moriizumi, J., Yamazawa, H., Iida, T., Depth profiles of radiocarbon and carbon isotopic compositions of organic matter and CO_2 in a forest soil, J. Environ. Radioact., 90, pp.210-223 (2006).

Mayorga, E., Aufdenkampe, A.K., Masiello, C.A., Krusche, A.V., Hedges,J.I., Quay, P.D., Richey, J.E., Brown, T.A., Young organic matter as a source of carbon dioxide outgassing from Amazon rivers, Nature, 436, pp.538-541 (2005).

Oka, T., Okimizu, T., Takahashi, K., Akiba, F., Time and stratigraphic correlations of Otaru formation between urban Sapporo and Nishino area, Chisitsugaku Zassi, 97(1), pp.25-38 (1991) (in Japanese).

Takahashi, H.A., Kazahaya, K., Shinohara, H., Nakamura, T., Application of radiocarbon to detect a deep source CO2 in soil air, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B223-224, pp.483-488

北大構内半原生林中の土壌ガス CO_2 とその炭素同位体分析

藤吉 亮子 [1)]、原木 之英 [1)]、住吉 孝 [1)]、天野 光 [2)]
1) 北海道大学大学院工学研究科量子理工学専攻
2) 日本原子力研究開発機構 青森研究開発センター AMS 管理課

北海道大学構内の冷温帯落葉樹林において深さ30および100 cmの試坑を掘削し土壌空気中の CO_2 濃度を 2007 年 6 月以来連続的に観測している. また、季節ごとに土壌空気および森林大気(地表面からの高さ2 m)を採取し、日本原子力研究開発機構青森研究開発センターAMS 管理課に設置されている加速器質量分析装置(AMS)で CO_2 の炭素同位体分析を行ってきた. これまでに得られた結果から、本観測ポイントにおける空気中の CO_2 は気象条件や生物活動に起因する種々の発生源からの混合によっていることが示唆された.

3.12 AMS を用いた空気及び河川水中無機態 C-14 簡易分析

天野　光 a)、山道美和子 b)、馬場正美 b)、百島則幸 c)、杉原真司 c)、
上田祐介 d)、中村康弘 d)
a）日本原子力研究開発機構青森研究開発センターむつ事務所 AMS 管理課
b）日本海洋科学振興財団むつ海洋研究所
c）九州大学アイソトープ総合センター、d）熊本大学理学部

１．緒言

空気中の無機態 C-14 分析は、苛性ソーダ等のアルカリ溶液やモレキュラーシーブといった二酸化炭素吸収剤を用いて捕集し、その後、炭酸カルシウム等の沈殿とし、液体シンチレーション計測で測定するのが一般的であるが [1]、少量試料で測定できる AMS の特徴を生かし、空気を直接アルミニウムバッグ等で捕集し、真空ガラスライン等を用いて、グラファイト化し AMS で測定する手法を検討した。河川水中無機態 C-14 については、従来法は大量の水から窒素ガスで追い出した溶存二酸化炭素をアルカリ溶液に捕集し、炭酸カルシウムの沈殿とし液体シンチレーション計測で測定するが [1]、少量の河川水から溶存無機態炭素をグラファイト化し AMS で測定する手法を検討した。

２．試料採取、前処理及び測定

JAEA-AMS-MUTSU に設置してある AMS 試料前処理用の真空ガラスラインを用いる分析法を検討した。空気の採取は、日本原子力研究開発機構（JAEA）青森研究開発センター むつ事務所大湊施設研究棟の屋上大気と、グラウンド脇の草原に掘削した穴（48cm×62cm×深さ 86cm）に蓋をし土を被せた土壌空気を、ビニールチューブでゆるやかにミニポンプで吸引し、その際に粒状硫酸カルシウム（ドライアライト）で水蒸気を除去した空気を栓付きアルミニウムバッグに抜き取ることで行った。アルミニウムバッグ中の空気は、マスフローメータで一定量を真空ガラスラインに導入し、水蒸気の除去、二酸化炭素の精製及びグラファイト化を行った [2]。河川水の採取は、熊本県熊本市内にある熊本大学構内脇を流れる白川において、柄杓でゆるやかに 0.5L もしくは 1L の共栓試薬瓶に採取し、生物活動を止めるため、少量の塩化水銀を加えたもの（河川水 0.5 L あたり飽和塩化水銀溶液 0.1 mL）を実験室に持ち帰った。河川水のその後の処理は海水の前処理と同様に JAEA 青森研究開発センターむつ事務所 AMS 管理課に設置してある海水自動処理用の真空ガラスラインにおいて燐酸で抽出し、窒素ガスで脱気した二酸化炭素を精製したのちグラファイト化を行った [3]。検討した分析法に則って、実際の空気や河川水の測定を行った。^{14}C 等の測定は、グラファイト化した試料をプレス機で AMS 測定用のターゲットピースに詰め、JAEA-AMS-MUTSU [4]で $^{14}C/^{12}C$ 比を測定した。$^{13}C/^{14}C$ 比については、安定同位体比測定装置（フィニガンマット社製デルタプラス）で測定した。

３．検討結果と観測例

アルミニウムバッグ中の空気は、マスフローメータで一定量を真空ガラスラインに導入し、二酸化炭素の精製を行うが、AMS による炭素測定は炭素同位体比の測定であるため、前処理において炭素の同位体効果が生じないように、すなわち試料の前処理前後で同位体比の変化が

生じないように、空気に含まれる全量の二酸化炭素が真空ガラスラインに捕集される最適条件につき検討した。大量に採取した大気をマスフローコントローラーを用い一定流量で真空ガラスラインに導入した際の流量と捕集された二酸化炭素量との関係を図１に示す。

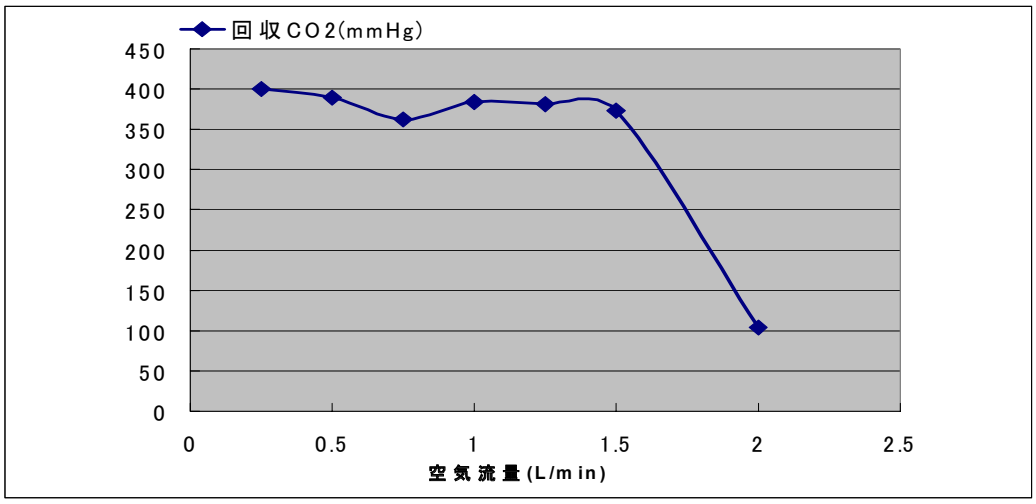


図１　真空ガラスラインにおける空気流量と回収 CO2 量

図１からマスフローコントローラーを用いてアルミニウムバッグからの真空ガラスラインへの送り出し空気流量が 1.5 L/分以下であれば空気中二酸化炭素の全量が捕集されることが判る。河川水については、溶存無機態炭素含有量が少ないと予想される河川水の場合は１L 処理を行った（海水の場合は 0.5 L 処理）以外は、海水の場合と全く同様な処理を行っている [3]。
図２にむつ市で採取した大気及び土壌空気中の無機態 C-14 の季節変動を示す。

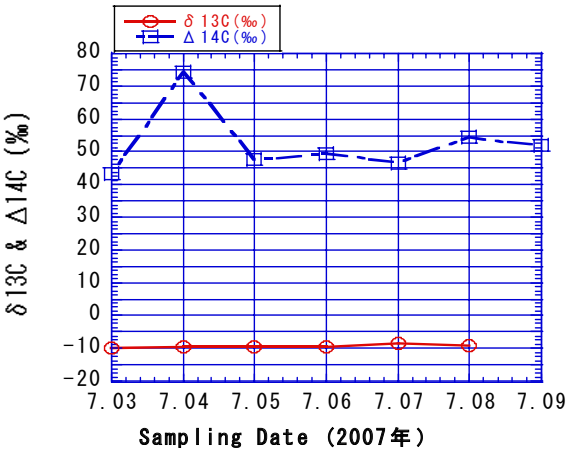


図２a　大気中 C-13 と C-14

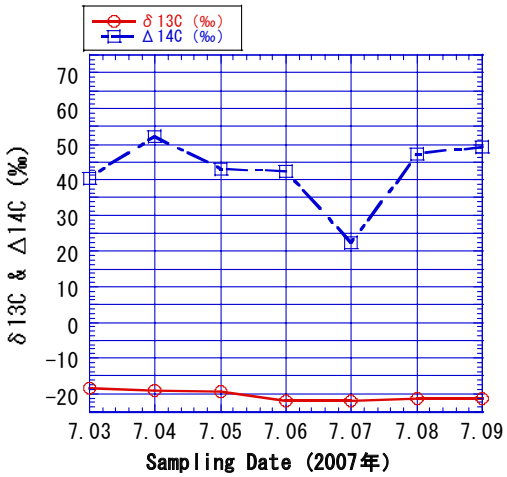


図２b 土壌空気中 C-13 と C-14

大気では $\Delta^{14}C$ は 2007 年 7 月を除くと変動は少なく 50‰、$\delta^{13}C$ も変動は少なく-10‰程度である。土壌空気では $\Delta^{14}C$ は変動は大きいが 40‰前後、$\delta^{13}C$ は変動は少なく-20‰程である。土壌空気は大気が混入していると思われるが、全体として土壌空気は大気と比較して $\delta^{13}C$ 値は低めである。土壌空気中二酸化炭素の源としては、大気、土壌有機物、植物の根や土壌生物

の呼吸、地下深部からの二酸化炭素の湧出等が考えられる。土壌有機物中 $\delta^{13}C$ は-18～-29‰程度であり[5]、大気のそれと比較して低く、これら土壌有機物の分解により生成する二酸化炭素等により土壌空気中の $\delta^{13}C$ 値は低くなっていると考えられる。大気中 ^{14}C については、1960年代初頭に頻繁に行われた大気圏内核実験により、表層大気の $^{14}C/C$ 値はほぼ2倍となり[6]、当時光合成により生成し土壌に蓄積した有機物中の値も高いと思われるが、土壌深部から湧出する二酸化炭素の $\Delta^{14}C$ 値はかなり低いと思われ、土壌空気の $\Delta^{14}C$ 値は、上記の二酸化炭素の源の $\Delta^{14}C$ 値を反映していると考えられる。

図３に熊本市を流れる白川で採取した河川水中無機態 C-14 の季節変動を示す。

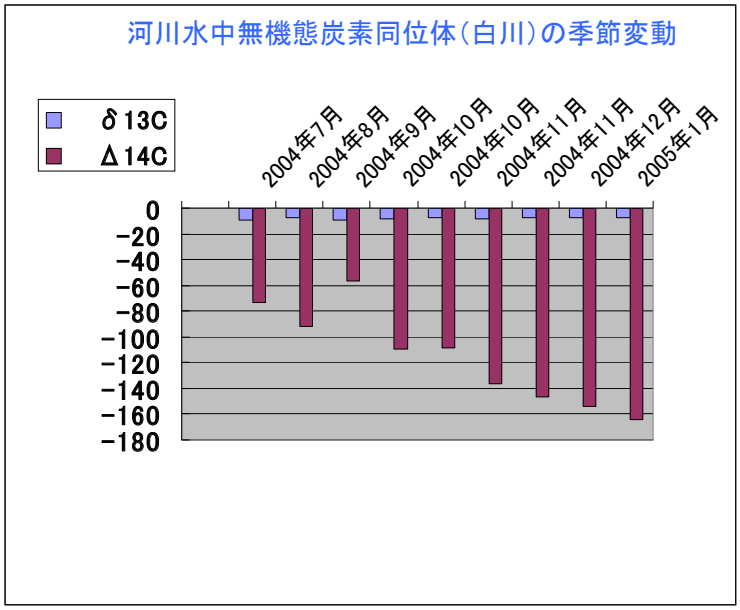


図３　河川水中無機態炭素同位体比（熊本　白川）

$\delta^{13}C$ については変動は小さいが全体としては夏に低く、秋冬に高い傾向が示された。夏には ^{13}C の少ない軽い炭素が流出されているということであるが、土壌有機物の分解や、根の呼吸等は夏のほうが速く、軽い二酸化炭素がより多く生成されている故と考えられる。

$\Delta^{14}C$ については変動は大きく夏に高く、秋冬に低いという興味深い結果が示された。夏に高いのは年代の新しい炭素がより多く流出されているのであり、秋冬に低いのは年代の古い炭素や炭酸塩が多く流出されている故と考えられる。

４．結言

AMS を用いた空気及び河川水中無機態 C-14 の簡易分析につき検討し、実際の環境試料について実測を行った。少量試料で測定できる AMS の特徴を生かし、空気を直接アルミニウムバッグ等で捕集し、真空ガラスライン等を用いて、グラファイト化し AMS で測定する手法を検討した。河川水中無機態 C-14 については、海水と同様な前処理手法を用いることにより、グラファイト化し AMS で測定する手法を検討した。本手法は簡便であり、空気や河川中の炭素同位体比について種々の知見をもたらすことから、実用上有効な方法である。

本研究の一部は、核融合科学研究所の外部資金「LHD 計画共同研究」により行われた。

参考文献：

1) 文部科学省 放射能測定法シリーズ 25「放射性炭素分析法」(1993)
2) H. Kitagawa, T. Masuzawa, T. Nakamura and E. Matsumoto, A batch preparation method for grafite targets with low background for AMS ^{14}C measurements, Radiocarbon 35, pp.295-300 (1993).

3) 荒巻能史　AMS による海水中の放射性炭素測定のための化学的前処理法
JAERI-Research 99-007 (1999).
4) 天野 光、北村敏勝「JAERI-AMS 原研タンデトロン加速器質量分析装置」加速器 1, p293 (2004).
5) J. Guo, M. Atarashi-Andoh, H. Amano, Variation of C-14, Cs-137 and stable carbon composition in forest soil and its implications, J. Radioanal. Nucl. Chem., 255, pp.223-229 (2003).
6) NCRP, Carbon-14 in the Environment, NCRP Report No.81 (1985).

Analysis Methods of Inorganic C-14 in Air and River Water using an AMS

H. Amano [a)*], M. Yamamichi [b)], M. Baba [b)], N. Momoshima [c)], S. Sugihara [c)],
Y. Ueda [d)] and Y. Nakamura [d)]
a) Japan Atomic Energy Agency, b) Japan Marine Science Foundation,
c) Kyusyu University, d) Kumamoto University

* Corresponding author: e-mail; amano.hikaru@jaea.go.jp

Analysis methods of inorganic C-14 in air and river water using an AMS (Accelerator Mass Spectrometer) have been developed. Air, once sampled in an aluminum bag using a mini-pump after removing moisture, is introduced in a glass vacuum line. Then, carbon dioxide is purified and treated to prepare graphite for the AMS measurement. River water, sampled in 0.5 or 1.0 L of glass bottle, is chemically processed in two steps. These are the stripping of CO_2 from the inorganic carbonic and dissolved CO_2 in river water, and the making of graphite from this CO_2. These method are simple and effective for the determination of isotopic ratios of carbon in air and river water.　Some measurement examples and analysis of carbon isotopic ratios in air and river water are shown.

付録1 「第1回JAEAタンデトロンAMS利用報告会」参加者名簿

氏　名	所　属
松崎　浩之	東京大学
伊藤　誠二	〃
中野　忠一郎	〃
藤吉　亮子	北海道大学大学院
窪田　卓見	京都大学
中野　朋子	〃
佐藤　太一	山形大学
堀内　一穂	弘前大学
山田　芳宗	北陸大学
小田　寛貴	名古屋大学
奈良　正義	下北自然史研究会
畑中　盛	〃
尾嵜　大真	国立歴史民俗博物館
五十嵐　飛鳥	青森県原子力センター
木村　芳伸	〃
貝森　優希	〃
前山　健司	財団法人日本分析センター
中野　昭二郎	財団法人日本海洋科学振興財団
河村　日佐男	〃
島　茂樹	〃
小藤　久毅	〃
秋濱　奈都子	〃
寺尾　寛治	〃
畑中　一男	〃
御園生　淳	財団法人海洋生物環境研究所
磯山　直彦	〃
柿内　秀樹	財団法人環境科学技術研究所
赤田　尚史	〃
塚田　祥之	〃
植田　真司	〃
志知　幸治	独立行政法人森林総合研究所東北支所
小野　賢二	〃
藤本　賢	独立行政法人水産総合研究センター中央水産研究所
渡邉　修一	独立行政法人海洋研究開発機構
川上　創	〃
山本　秀樹	〃
藤田　恵	日本原燃㈱
田村　幸子	〃

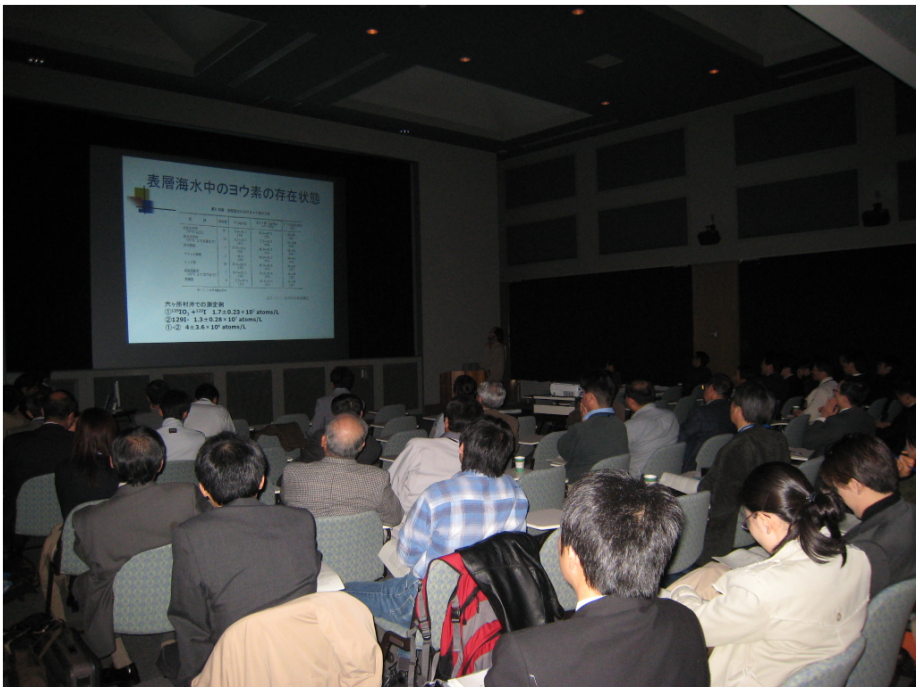
氏　名	所　属
尾形　哲司	日本原燃㈱
大畑　誠	〃
高屋　聡子	㈱ザックス
柿本　広志	〃
木島　久子	㈲光信理化学製作所
菊池　誠	〃
菅原　剛	〃
石丸　恒存	原子力機構　東濃自然事象グループ
鈴木　元孝	〃
國分　祐司	原子力機構　核燃料サイクル工学研究所
外川　織彦	原子力機構　原科研環境動態研究G
安藤　麻里子	〃
乙坂　重嘉	〃
田中　孝幸	〃
上塚　寛	経営企画部長
鈴木　侃	青森研究開発センター所長
北村　敏勝	むつ事務所長
渡辺　義之	サイクル協力室（副所長）
天野　光	AMS管理課
甲　昭二	〃
鈴木　崇史	〃
木下　尚喜	〃
佐々木さゆみ	〃
渡部　幸也	AMS管理課（海洋財団）
馬場　正美	〃
山道　美和子	〃
坂本　信也	AMS管理課（東洋建物）
長根　悟	総務課
鯨岡　義明	〃
北原　勝美	施設管理課
川名　雪二	〃
斉藤　節文	工務課
神林　英美	〃
星野　淳一	〃
佐藤　隆一	保安管理課
早坂　寿夫	〃
島田　浩	〃
佐藤　啓三	〃

付録 2　「第 1 回 JAEA タンデトロン AMS 利用報告会」開催風景

受付の様子

開会の様子 1

開会の様子 2



発表の様子

国際単位系（SI）

表１．SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表２．基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m^2
体積	立法メートル	m^3
速さ，速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s^2
波数	毎メートル	m^{-1}
密度（質量密度）	キログラム毎立法メートル	kg/m^3
質量体積（比体積）	立法メートル毎キログラム	m^3/kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m^2
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
（物質量の）濃度	モル毎立方メートル	mol/m^3
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m^2
屈折率	（数の）1	1

表５．SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10^{24}	ヨタ	Y	10^{-1}	デシ	d
10^{21}	ゼタ	Z	10^{-2}	センチ	c
10^{18}	エクサ	E	10^{-3}	ミリ	m
10^{15}	ペタ	P	10^{-6}	マイクロ	μ
10^{12}	テラ	T	10^{-9}	ナノ	n
10^{9}	ギガ	G	10^{-12}	ピコ	p
10^{6}	メガ	M	10^{-15}	フェムト	f
10^{3}	キロ	k	10^{-18}	アト	a
10^{2}	ヘクト	h	10^{-21}	ゼプト	z
10^{1}	デカ	da	10^{-24}	ヨクト	y

表３．固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン(a)	rad		$m \cdot m^{-1}=1$(b)
立体角	ステラジアン(a)	sr(c)		$m^2 \cdot m^{-2}=1$(b)
周波数	ヘルツ	Hz		s^{-1}
力	ニュートン	N		$m \cdot kg \cdot s^{-2}$
圧力，応力	パスカル	Pa	N/m^2	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-2}$
エネルギー，仕事，熱量	ジュール	J	N・m	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2}$
工率，放射束	ワット	W	J/s	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-3}$
電荷，電気量	クーロン	C		s・A
電位差（電圧），起電力	ボルト	V	W/A	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^{-1}$
静電容量	ファラド	F	C/V	$m^{-2} \cdot kg^{-1} \cdot s^4 \cdot A^2$
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^{-2}$
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	$m^{-2} \cdot kg^{-1} \cdot s^3 \cdot A^2$
磁束	ウエーバ	Wb	V・s	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-1}$
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2	$kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-1}$
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-2}$
セルシウス温度	セルシウス度(d)	℃		K
光束	ルーメン	lm	cd・sr(c)	$m^2 \cdot m^{-2} \cdot cd=cd$
照度	ルクス	lx	lm/m^2	$m^2 \cdot m^{-4} \cdot cd=m^{-2} \cdot cd$
（放射性核種の）放射能	ベクレル	Bq		s^{-1}
吸収線量，質量エネルギー分与，カーマ	グレイ	Gy	J/kg	$m^2 \cdot s^{-2}$
線量当量，周辺線量当量，方向性線量当量，個人線量当量，組織線量当	シーベルト	Sv	J/kg	$m^2 \cdot s^{-2}$

(a)ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なった性質をもった量を区別するときの組立単位の表し方として利点がある。組立単位を形作るときのいくつかの用例は表４に示されている。
(b)実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号“１”は明示されない。
(c)測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。
(d)この単位は、例としてミリセルシウス度m℃のようにSI接頭語を伴って用いても良い。

表４．単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa・s	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-1}$
力のモーメント	ニュートンメートル	N・m	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2}$
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	$kg \cdot s^{-2}$
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	$m \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}=s^{-1}$
角加速度	ラジアン毎平方秒	rad/s^2	$m \cdot m^{-1} \cdot s^{-2}=s^{-2}$
熱流密度，放射照度	ワット毎平方メートル	W/m^2	$kg \cdot s^{-3}$
熱容量，エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
質量熱容量（比熱容量），質量エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg・K)	$m^2 \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
質量エネルギー（比エネルギー）	ジュール毎キログラム	J/kg	$m^2 \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m・K)	$m \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot K^{-1}$
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m^3	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-2}$
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	$m \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^{-1}$
体積電荷	クーロン毎立方メートル	C/m^3	$m^{-3} \cdot s \cdot A$
電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m^2	$m^{-2} \cdot s \cdot A$
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	$m^{-3} \cdot kg^{-1} \cdot s^4 \cdot A^2$
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	$m \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-2}$
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot mol^{-1}$
モルエントロピー，モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol・K)	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$
照射線量（X線及びγ線）	クーロン毎キログラム	C/kg	$kg^{-1} \cdot s \cdot A$
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	$m^2 \cdot s^{-3}$
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	$m^4 \cdot m^{-2} \cdot kg \cdot s^{-3}=m^2 \cdot kg \cdot s^{-3}$
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	$W/(m^2 \cdot sr)$	$m^2 \cdot m^{-2} \cdot kg \cdot s^{-3}=kg \cdot s^{-3}$

表６．国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h =60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86400 s
度	°	1° =(π/180) rad
分	’	1’=(1/60)° =(π/10800) rad
秒	”	1”=(1/60)’=(π/648000) rad
リットル	l、L	$1l=1\ dm^3=10^{-3}m^3$
トン	t	$1t=10^3$ kg
ネーパ	Np	1Np=1
ベル	B	1B=(1/2)ln10(Np)

表７．国際単位系と併用されこれに属さない単位でSI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
電子ボルト	eV	$1eV=1.60217733(49)\times10^{-19}J$
統一原子質量単位	u	$1u=1.6605402(10)\times10^{-27}kg$
天文単位	ua	$1ua=1.49597870691(30)\times10^{11}m$

表８．国際単位系に属さないが国際単位系と併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
海里		1海里=1852m
ノット		1ノット=1海里毎時=(1852/3600)m/s
アール	a	$1a=1\ dam^2=10^2m^2$
ヘクタール	ha	$1ha=1\ hm^2=10^4m^2$
バール	bar	1bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10^5Pa
オングストローム	Å	$1Å=0.1nm=10^{-10}m$
バーン	b	$1b=100fm^2=10^{-28}m^2$

表９．固有の名称を含むCGS組立単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
エルグ	erg	$1\ erg=10^{-7}$ J
ダイン	dyn	$1\ dyn=10^{-5}$N
ポアズ	P	$1\ P=1\ dyn \cdot s/cm^2=0.1Pa \cdot s$
ストークス	St	$1\ St=1cm^2/s=10^{-4}m^2/s$
ガウス	G	$1\ G \triangleq 10^{-4}T$
エルステッド	Oe	$1\ Oe \triangleq (1000/4\pi)A/m$
マクスウェル	Mx	$1\ Mx \triangleq 10^{-8}Wb$
スチルブ	sb	$1\ sb=1cd/cm^2=10^4cd/m^2$
ホト	ph	$1\ ph=10^4lx$
ガル	Gal	$1\ Gal=1cm/s^2=10^{-2}m/s^2$

表10．国際単位に属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
キュリー	Ci	$1\ Ci=3.7\times10^{10}Bq$
レントゲン	R	$1\ R=2.58\times10^{-4}C/kg$
ラド	rad	$1\ rad=1cGy=10^{-2}Gy$
レム	rem	$1\ rem=1\ cSv=10^{-2}Sv$
X線単位		$1X\ unit=1.002\times10^{-4}nm$
ガンマ	γ	$1\gamma=1\ nT=10^{-9}T$
ジャンスキー	Jy	$1\ Jy=10^{-26}W \cdot m^{-2} \cdot Hz^{-1}$
フェルミ		$1\ fermi=1\ fm=10^{-15}m$
メートル系カラット		1 metric carat = 200 mg = 2×10^{-4}kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリー	cal	
ミクロン	μ	$1\ \mu=1um=10^{-6}m$

（第７版，1998年改訂）

この印刷物は再生紙を使用しています