



JAEA-Conf

2018-002

DOI:10.11484/jaea-conf-2018-002

JAEA-Conf

第20回AMSシンポジウム報告集

Proceedings of the 20th Japanese Symposium on Accelerator Mass Spectrometry

(編) 石丸 恒存 島田 顕臣 國分(齋藤)陽子 藤田 奈津子
渡邊 隆広

(Eds.) Tsuneari ISHIMARU, Akiomi SHIMADA, Yoko SAITO-KOKUBU, Natsuko FUJITA
and Takahiro WATANABE

核燃料・バックエンド研究開発部門
東濃地科学センター

Tono Geoscience Center
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development

February 2019

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発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 (<https://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 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
Institutional Repository Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, 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, 2019

第 20 回 AMS シンポジウム報告集

日本原子力研究開発機構
核燃料・バックエンド研究開発部門 東濃地科学センター

(編) 石丸 恒存、島田 顕臣、國分(齋藤)陽子、藤田 奈津子、渡邊 隆広

(2018 年 11 月 12 日受理)

2017 年 12 月 14 日から 12 月 15 日に日本原子力研究開発機構 東濃地科学センターにより第 20 回 AMS シンポジウムを開催した。シンポジウム参加者は 2 日間で計 75 名であり、AMS(加速器質量分析)装置が導入されている各研究施設の現状、技術開発成果や応用研究等について計 32 件の研究発表が行われた。全国の AMS 施設に所属する研究者や技術者、地球科学や環境科学等を専門とする研究者、及び AMS の技術開発に関連する企業の方により、最新の成果について活発な情報・意見交換が行われた。

本報告集は、これらの発表内容をまとめたものである。

Proceedings of the 20th Japanese Symposium on Accelerator Mass Spectrometry

(Eds.) Tsuneari ISHIMARU, Akiomi SHIMADA, Yoko SAITO-KOKUBU,
Natsuko FUJITA and Takahiro WATANABE

Tono Geoscience Center
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development
Japan Atomic Energy Agency
Izumi-cho, Toki-shi, Gifu-ken

(Received November 12, 2018)

This proceedings issue includes the presentation contents of the 20th Japanese Symposium on Accelerator Mass Spectrometry (JAMS-20). The JAMS-20 was held by Tono Geoscience Center, Japan Atomic Energy Agency, on December 14-15th, 2017. The number of participants was seventy five during two days. On the Symposium, thirty two presentations were made for facility status reports, analytical developments and application techniques.

Keywords: AMS, Geochronology, Cosmogenic nuclides, Radiometric dating, Earth science



第20回AMSシンポジウム集合写真(2017年12月14日 於:セラトピア土岐)



第20回

AMSシンポジウム



会場

セラトピア土岐(岐阜県土岐市土岐津町高山4番地)

会期

平成29年

12月14日(木) 10:20~18:45

12月15日(金) 9:50~14:35

施設見学会

平成29年

12月15日(金) 14:45~17:00

研究会ホームページ

<https://www.jaea.go.jp/04/tono/jams-20th/index.html>

特別講演 12月15日(金) 9:50~11:50

◆JAEA-AMS-TONOの20年のあゆみ

國分 陽子(日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター)

◆AMS放射性炭素年代測定による活断層の活動イベント認定の試み

安江 健一(愛知工業大学)

◆AMS研究の発展と日本AMS研究協会のあゆみ

中村 俊夫(名古屋大学)

◆AMS研究のこれから

松崎 浩之(東京大学)

お問い合わせ

E-mail: JAEA-AMS-TONO@jaea.go.jp TEL: 0572-53-0211(代表)

〒509-5102 岐阜県土岐市泉町定林寺959-31

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター

目次

はじめに	1
1. 特別講演－AMS シンポジウム 20 周年記念講演	3
1.1 JAEA-AMS-TONO の 20 年のあゆみ	5
國分(齋藤)陽子 ¹ 、藤田奈津子 ¹ 、松原章浩 ² 、西澤章光 ² 、西尾智博 ¹ 、三宅正恭 ¹ 、 石丸恒存 ¹ 、渡邊隆広 ¹ 、尾方伸久 ¹ 、島田顕臣 ¹ 、石坂千佳 ² 、岡部宣章 ¹ 、加藤元久 ² 、磯崎 信宏 ² 、虎沢均 ² (¹ 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター、 ² 株式会社 ペスコ)	
1.2 AMS 放射性炭素年代測定による活断層の活動イベント認定の試み	9
安江健一 (愛知工業大学 地域防災研究センター)	
1.3 AMS 研究の発展と日本 AMS 研究協会のあゆみ	13
中村俊夫 (名古屋大学 宇宙地球環境研究所)	
1.4 AMS 研究のこれから	23
松崎浩之 (東京大学 MALT)	
2. AMS 施設報告・技術開発	29
2.1 東大 MALT-AMS の現状 2017	31
松崎浩之、徳山裕憲、土屋陽子、楠野葉瑠香、山道美和子、吉田邦夫、堀内晶子、宮内信雄 (東京大学 MALT)	
2.2 名古屋大学タンデトロン AMS システムの現状 (2017 年度)	35
中村俊夫 ¹ 、南 雅代 ¹ 、増田公明 ¹ 、小田寛貴 ¹ 、池田晃子 ¹ 、山根雅子 ¹ 、栗田直幸 ¹ 、 窪田 薫 ¹ 、西田真砂美 ¹ 、藤沢純平 ² 、方 雨婷 ² 、徳丸 誠 ² 、木田梨沙子 ³ 、酢屋徳啓 ⁴ 、北川 浩之 ¹ (¹ 名古屋大学 宇宙地球環境研究所、 ² 名古屋大学大学院 環境学研究科、 ³ 名古屋 大学 理学部、 ⁴ 放射線医学総合研究所)	
2.3 筑波大学 6MV タンデム加速器質量分析装置による多核種 AMS と応用研究の現状	39
笹 公和 ¹ 、高橋 努 ¹ 、松中哲也 ^{1,2} 、細谷青児 ¹ 、太田祐貴 ¹ 、高野健太 ¹ 、落合悠太 ¹ 、本多真 紀 ¹ 、末木啓介 ¹ (¹ 筑波大学 AMS グループ、 ² 金沢大学 LLRL)	
2.4 パレオ・ラボ Compact-AMS の現状 (2017)	43
佐藤正教 ¹ 、伊藤 茂 ¹ 、廣田正史 ¹ 、山形秀樹 ² 、Z.Lomtatishze ² 、小林紘一 ¹ 、 中村賢太郎 ² (¹ (株)パレオ・ラボ AMS 年代測定施設、 ² (株)パレオ・ラボ 東海支店)	
2.5 6MV タンデム加速器による ⁹⁰ Sr-AMS	47
細谷青児 ¹ 、笹 公和 ¹ 、高橋 努 ¹ 、本多真紀 ¹ 、佐藤志彦 ² 、高野健太 ¹ 、落合悠太 ¹ 、末木 啓介 ¹ (¹ 筑波大学 AMS グループ、 ² 日本原子力研究開発機構)	
2.6 JAEA-AMS-TONO における ¹²⁹ I/ ¹²⁷ I 比測定の整備	51
岡部宣章 ¹ 、藤田奈津子 ¹ 、松原章浩 ² 、三宅正恭 ¹ 、西尾智博 ² 、西澤章光 ² 、磯崎信宏 ² 、 渡邊隆広 ¹ 、國分(齋藤)陽子 ¹ (¹ 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター、 ² 株 式会社 ペスコ)	
2.7 微量試料の高精度放射性炭素年代測定	55
大森貴之 ¹ 、山崎孔平 ¹ 、梶澤貴行 ¹ 、板橋 悠 ² 、尾寄大真 ¹ 、米田 穰 ¹ (¹ 東京大学 総合研 究博物館、 ² 東京大学新領域創成科学研究科)	
2.8 東京大学大気海洋研究所シングルステージ AMS の導入後の 5 年間	56
宮入陽介 ¹ 、阿瀬貴博 ¹ 、平林頌子 ^{1,3} 、佐藤菜央美 ^{1,3} 、安藤有加 ¹ 、横山祐典 ^{1,2,3} (¹ 東京	

大学 大気海洋研究所 高解像度環境解析研究センター、 ² 国立研究開発法人 海洋開発研究機構、 ³ 東京大学 理学系研究科)	
2.9 東京大学総合研究博物館 Compact-AMS の現状(2017 年)	60
尾寄大真、大森貴之、板橋 悠、山崎孔平、金澤礼雄、上原加津維、山口絢子、内田啓子、吉田邦夫、米田 穰 (東京大学 総合研究博物館)	
2.10 山形大学高感度加速器質量分析センターの現状 2016-2017	64
森谷 透 ¹ 、武山美麗 ¹ 、木村弘志 ¹ 、設楽理恵 ¹ 、佐藤里美 ¹ 、門叶冬樹 ¹ 、櫻井敬久 ¹ 、豊口禎子 ² (¹ 山形大学 高感度加速器質量分析センター、 ² 山形大学 医学部附属病院)	
2.11 イオンチャネリングを利用した同重体分別技術の開発	68
松原章浩 ¹ 、藤田奈津子 ² 、三宅正恭 ² 、磯崎信宏 ¹ (¹ 株式会社 ペスコ、 ² 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター)	
2.12 リアクションセル ICP-MS、ICP-MS/MS のための ¹²⁹ I 標準溶液の作製	72
本多真紀 ¹ 、高久雄一 ² 、鹿籠康行 ³ 、中野かずみ ³ 、松崎浩之 ⁴ 、笹 公和 ¹ 、高橋 努 ¹ 、細谷青児 ¹ 、末木啓介 ¹ (¹ 筑波大学 AMSグループ、 ² 環境科学技術研究所、 ³ アジレント・テクノロジー、 ⁴ 東京大学 総合研究博物館)	
2.13 簡易型自動グラファイト処理装置の開発	76
大森貴之、山崎孔平、板橋 悠、尾寄大真、米田 穰 (東京大学 総合研究博物館)	
3. AMS 応用研究	81
3.1 過去 3000 年間の宇宙線強度年変動	83
三宅美沙 ¹ 、増田公明 ¹ 、中村俊夫 ¹ 、箱崎真隆 ² 、木村勝彦 ³ 、門叶冬樹 ⁴ 、森谷 透 ⁴ 、武山美麗 ⁴ 、A.J.T. Jull ⁵ 、I.P. Panyushkina ⁶ (¹ 名古屋大学 宇宙地球環境研究所、 ² 国立歴史民俗博物館、 ³ 福島大学 共生システム理工学類、 ⁴ 山形大学 高感度加速器質量分析センター、 ⁵ アリゾナ大学 AMS 研究所、 ⁶ アリゾナ大学 年輪研究所)	
3.2 1998-2014 年の大気中 ⁷ Be、 ¹⁰ Be 濃度	87
山形武靖 ¹ 、永井尚生 ¹ 、松崎浩之 ² (¹ 日本大学 文理学部、 ² 東京大学 総合研究博物館)	
3.3 琵琶湖に流入する安曇川、野洲川の河床堆積物中 ¹⁰ Be 濃度の粒径依存性	91
藤沢純平 ¹ 、南 雅代 ² 、國分(齋藤)陽子 ³ 、松崎浩之 ⁴ (¹ 名古屋大学大学院 環境学研究科、 ² 名古屋大学 宇宙地球環境研究所、 ³ 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター、 ⁴ 東京大学 総合研究博物館)	
3.4 つくば市における福島第一原子力発電所事故前後の ³⁶ Cl 降下フラックス変動	95
落合悠太 ¹ 、笹 公和 ¹ 、戸崎裕貴 ² 、高橋 努 ¹ 、松村万寿美 ¹ 、本多真紀 ¹ 、細谷青児 ¹ 、高野健太 ¹ 、太田祐貴 ¹ 、末木啓介 ¹ (¹ 筑波大学 AMSグループ、 ² 産業技術総合研究所)	
3.5 福島原発周辺土壌中の ³⁶ Cl の深度・蓄積量分布	99
太田祐貴 ¹ 、末木啓介 ¹ 、笹 公和 ¹ 、高橋 努 ¹ 、松中哲也 ² 、松村万寿美 ¹ 、戸崎裕貴 ³ 、本多真紀 ¹ 、細谷青児 ¹ 、高野健太 ¹ 、落合悠太 ¹ 、佐藤志彦 ⁴ 、吉川英樹 ⁴ 、中間茂雄 ⁴ 、箕輪はるか ⁵ (¹ 筑波大学、 ² 金沢大学、 ³ 産業技術総合研究所、 ⁴ 日本原子力研究開発機構、 ⁵ 東京慈恵会医科大学)	
3.6 西部北太平洋における福島第一原子力発電所事故によって放出された ¹²⁹ I の沈み込み	103
鈴木崇史 ¹ 、乙坂重嘉 ¹ 、桑原 潤 ² 、川村英之 ¹ 、小林卓也 ¹ (¹ 日本原子力研究開発機構 環境動態研究グループ、 ² 日本原子力研究開発機構 AMS 管理課)	

3.7	北極海における海水中 ^{129}I 濃度の経年変化……………	107
	永井尚生 ¹ 、山形武靖 ¹ 、長谷川 憲 ² 、工藤 輝 ² 、熊本雄一郎 ³ 、西野茂人 ³ 、松崎浩之 ⁴ (¹ 日本大学 文理学部、 ² 日本大学大学院 総合基礎科学研究科、 ³ 海洋研究開発機構、 ⁴ 東京大学 総合研究博物館)	
3.8	白頭山 10 世紀噴火の確定年代からみた十和田カルデラ 10 世紀噴火年代の再検討 ……	112
	箱崎真隆 (国立歴史民俗博物館)	
3.9	JAEA-AMS-TONO における自動グラフィット調製装置 AGE3 の現状 ……	116
	渡邊隆広 ¹ 、國分(齋藤)陽子 ¹ 、藤田奈津子 ¹ 、石坂千佳 ² 、西尾智博 ^{1,2} 、松原章浩 ² 、三宅正恭 ^{1,2} 、加藤元久 ² 、磯崎信宏 ² 、虎沢 均 ² 、西澤章光 ² 、石丸恒存 ¹ (¹ 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター、 ² 株式会社 ペスコ)	
3.10	南極海オーストラリア/アフリカー南極海盆における放射性炭素とフロンガスの 過去約 20 年間の変化……………	120
	熊本雄一郎、佐々木建一、村田昌彦 (海洋研究開発機構)	
3.11	チベット高原・プマユムツォ湖周辺岩石の ^{10}Be 測定結果 ……	124
	奈良郁子 ¹ 、渡邊隆広 ² 、國分(齋藤)陽子 ² 、堀内一穂 ³ (¹ 名古屋大学 宇宙地球環境研究所、 ² 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター、 ³ 弘前大学 理工学部)	
4.	第 20 回 AMS シンポジウムプログラム……………	128

Contents

Preface	1
1. Special session - The JAMS symposium 20th anniversary	3
1.1 The twenty years of JAEA-AMS-TONO	5
Y. Saito-Kokubu ¹ , N. Fujita ¹ , A. Matsubara ² , A. Nishizawa ² , T. Nishio ¹ , M. Miyake ¹ , T. Ishimaru ¹ , T. Watanabe ¹ , N. Ogata ¹ , A. Shimada ¹ , C. Ishizaka ² , N. Okabe ¹ , M. Kato ² , N. Isozaki ² , T. Torazawa ² (¹ Tono Geoscience Center, Japan Atomic Energy Agency, ² Pesco Corp., Ltd.)	
1.2 Study on identification of faulting event using AMS radiocarbon dating	9
K. Yasue (Desaster Prevention Research Center, Aichi Institute of Technology)	
1.3 Progress of studies on AMS and history of the Japan Society for Accelerator Mass Spectrometry ..	13
T. Nakamura (Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University)	
1.4 Future prospect of AMS study	23
H. Matsuzaki (MALT, The University of Tokyo)	
2. Status report of AMS facility, Technical developments	29
2.1 2017 status report of MALT, The University of Tokyo	31
H. Matsuzaki, H. Tokuyama, Y.S. Tsuchiya, H. Kusuno, M. Yamamichi, K. Yoshida, A. Horiuchi, N. Miyauchi (MALT, The University of Tokyo)	
2.2 Status and Application of AMS System at Nagoya University (2017)	35
T. Nakamura ¹ , M. Minami ¹ , K. Masuda ¹ , H. Oda ¹ , A. Ikeda ¹ , M. Yamane ¹ , N. Kurita ¹ , K. Kubota ¹ , M. Nishida ¹ , J. Fujisawa ² , F. Yuting ² , R. Kida ³ , T. Suya ⁴ , H. Kitagawa ¹ (¹ Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University, ² Graduate School for Environmental Studies, Nagoya University, ³ School of Science, Nagoya University, ⁴ National Institute for Radiological Sciences)	
2.3 Status report of multi-nuclide AMS and applied research by the 6 MV tandem accelerator mass spectrometry system at the University of Tsukuba	39
K. Sasa ¹ , T. Takahashi ¹ , T. Matsunaka ^{1,2} , S. Hosoya ¹ , Y. Ohta ¹ , K. Takano ¹ , Y. Ochiai ¹ , M. Honda ¹ , K. Sueki ¹ (¹ AMS, University of Tsukuba, ² LLRL, Kanazawa University)	
2.4 Current status of the Compact AMS system at Paleo Labo Co., Ltd. (2017)	43
M. Sato ¹ , S. Itoh ¹ , M. Hirota ¹ , H. Yamagata ¹ , Z. Lomtatisze ¹ , K. Kobayashi ¹ , K. Nakamura ¹ (¹ AMS Dating Facility, Paleo Labo Co., Ltd., ² Tokai Branch, Paleo Labo Co., Ltd.)	
2.5 ⁹⁰ Sr-AMS with the 6 MV tandem accelerator	47
S. Hosoya ¹ , K. Sasa ¹ , T. Takahashi ¹ , M. Honda ¹ , Y. Satou ² , K. Takano ¹ , Y. Ochiai ¹ , K. Sueki ¹ (¹ AMS group, University of Tsukuba, ² Japan Atomic Energy Agency)	
2.6 Improvement of methods for measurement of ¹²⁹ I/ ¹²⁷ I ratio at JAEA-AMS-TONO	51
N. Okabe ¹ , N. Fujita ¹ , A. Matsubara ² , M. Miyake ¹ , T. Nishio ² , A. Nishizawa ² , N. Isozaki ² , T. Watanabe ¹ , Y. Saito-Kokubu ¹ (¹ Tono Geoscience Center, Japan Atomic Energy Agency, ² Pesco Corp., Ltd.)	
2.7 High-precision Radiocarbon dating of small-scale samples	55
T. Omori ¹ , K. Yamazaki ¹ , T. Kabasawa ² , Y. Itahashi ¹ , H. Ozaki ¹ , M. Yoneda ¹ (¹ The University Museum, The University of Tokyo, ² Graduate School of Frontier Sciences, The University of	

Tokyo)	
2.8 Status report of Single Stage AMS system at Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo	56
Y. Miyairi ¹ , T. Aze ¹ , S. Hirabayashi ^{1,3} , N. Sato ^{1,3} , Y. Ando ¹ , Y. Yokoyama ^{1,2,3} (¹ Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo, ² Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology (JAMSTEC), ³ Graduate School of Science, The University of Tokyo)	
2.9 Status report of Compact-AMS at UMUT (2017)	60
H. Ozaki, T. Omori, Y. Itahashi, K. Yamazaki, A. Kanesawa, K. Uehara, A. Yamaguchi, A. Uchida, K. Yoshida, M. Yoneda (The University Museum, The University of Tokyo)	
2.10 Present status of YU-AMS 2016-2017	64
T. Moriya ¹ , T. Takeyama ¹ , K. Kimura ¹ , R. Shitara ¹ , R. Sato ¹ , F. Tokanai ¹ , H. Sakurai ¹ , T. Toyoguchi ² (¹ Center for Accelerator Mass Spectrometry, Yamagata Univ., ² University Hospital, Faculty of Medicine, Yamagata Univ.)	
2.11 Development of Isobar Separation Method based on Ion Channeling	68
A. Matsubara ¹ , M. Miyake ² , N. Fujita ² , N. Isozaki ¹ (¹ Pesco Corp., Ltd., ² Tono Geoscience Center, Japan Atomic Energy Agency)	
2.12 Preparation of ¹²⁹ I standard solutions for reaction cell ICP-MS and ICP-MS/MS	72
M. Honda ¹ , Y. Takaku ² , Y. Shikamori ³ , K. Nakano ³ , M. Hiroyuki ⁴ , K. Sasa ¹ , T. Takahashi ¹ , S. Hosoya ¹ , K. Sueki ¹ (¹ AMS group, University of Tsukuba, ² Institute for Environmental Science, ³ Agilent Technologies, ⁴ MALT, The University of Tokyo)	
2.13 Development of simplified automatic graphitization system	76
T. Omori, K. Yamazaki, Y. Itahashi, H. Ozaki, M. Yoneda (The University Museum, The University of Tokyo)	
3. Applications	81
3.1 Annual variation of cosmic ray intensities for the past 3,000 years	83
F. Miyake ¹ , K. Masuda ¹ , T. Nakamura ¹ , M. Hakozaiki ² , K. Kimura ³ , F. Tokanai ⁴ , T. Moriya ⁴ , M. Takeyama ⁴ , A.J.T. Jull ⁵ , I.P. Panyushkina ⁶ (¹ Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University, ² National Museum of Japanese History, ³ Faculty of Symbiotic Systems Science, Fukushima University, ⁴ Center for Accelerator Mass Spectrometry, Yamagata University, ⁵ Laboratory of Tree-Ring Research, University of Arizona, ⁶ AMS Laboratory, University of Arizona)	
3.2 Correlation between atmospheric concentration of cosmogenic Be isotopes and solar activity	87
T. Yamagata ¹ , H. Nagai ¹ , H. Matsuzaki ² (¹ Collage of Humanities and Sciences, Nihon University, ² The University Museum, The University of Tokyo)	
3.3 Grain size dependence of meteoric ¹⁰ Be concentrations in bed-sediments of Aso and Yasu rivers flowing into Lake Biwa	91
J. Fujisawa ¹ , M. Minami ² , Y. Saito-Kokubu ³ , H. Matsuzaki ⁴ (¹ Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, ² Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University, ³ Tono Geoscience Center, Japan Atomic Energy Agency, ⁴ The University Museum, The University of Tokyo)	
3.4 Temporal variation of ³⁶ Cl flux in Tsukuba city before and after the FDNPP accident	95
Y. Ochiai ¹ , K. Sasa ¹ , Y. Tosaki ² , T. Takahashi ¹ , M. Matsumura ¹ , M. Honda ¹ , S. Hosoya ¹ , K.	

Takano ¹ , Y. Ota ¹ , K. Sueki ¹ (¹ AMS Group, University of Tsukuba, ² Geological Survey of Japan, AIST)	
3.5 Depth profile and inventory of ³⁶ Cl in soil near the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant	99
Y. Ota ¹ , K. Sueki ¹ , K. Sasa ¹ , T. Takahashi ¹ , T. Matsunaka ¹ , M. Matsumura ² , Y. Tosaki ³ , M. Honda ¹ , S. Hosoya ¹ , K. Takano ¹ , Y. Ochiai ¹ , Y. Satou ⁴ , H. Yoshikawa ⁴ , S. Nakama ⁴ , H. Minowa ⁵ (¹ University of Tsukuba, ² Kanazawa University, ³ National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, ⁴ Japan Atomic Energy Agency, ⁵ The Jikei University School of Medicine)	
3.6 Penetration of ¹²⁹ I released from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident in the western North Pacific Ocean	103
T. Suzuki ¹ , S. Ootosaka ¹ , J. Kuwabara ² , H. Kawamura ¹ , T. Kobayashi ¹ (¹ Nuclear Science and Engineering Center, Japan Atomic Energy Agency, ² Aomori Research & Development Center, Japan Atomic Energy Agency)	
3.7 Temporal variation of ¹²⁹ I concentration in seawater of the Arctic Ocean	107
H. Nagai ¹ , T. Yamagata ¹ , A. Hasegawa ² , A. Kudo ² , Y. Kumamoto ³ , S. Nishino ³ , H. Matsuzaki ⁴ (¹ College of Humanities and Sciences, Nihon University, ² Graduate School of Integrated Basic Sciences, Nihon University, ³ JAMSTEC, ⁴ The University Museum, the University of Tokyo)	
3.8 Reconsideration of the age of the Towada caldera 10th century eruption based on the fixed age of the Baitoushan 10th century eruption	112
M. Hakozaiki (National Museum of Japanese History)	
3.9 The present status of the AGE3 automated graphitization equipment for radiocarbon dating at the JAEA-AMS-TONO	116
T. Watanabe ¹ , Y. Saito-Kokubu ¹ , N. Fujita ¹ , C. Ishizaka ² , T. Nishio ^{1,2} , A. Matsubara ² , M. Miyake ^{1,2} , M. Kato ² , N. Isozaki ² , H. Torazawa ² , A. Nishizawa ² , T. Ishimaru ¹ (¹ Tono Geoscience Center, Japan Atomic Energy Agency, ² Pesco Corp., Ltd.)	
3.10 Temporal change in radiocarbon and chlorofluorocarbons in the Australian/African-Antarctic Basins in the Southern Ocean during the past two decades.....	120
Y. Kumamoto, K. Sasaki, A. Murata (Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology)	
3.11 Preliminary results of ¹⁰ Be of the rock samples from the lake terrace of the Lake Pumayum Co in Tibetan Plateau	124
F.W. Nara ¹ , T. Watanabe ² , Y. Saito-Kokubu ² , K. Horiuchi ³ (¹ ISEE, Nagoya University, ² Tono Geoscience center, Japan Atomic Energy Agency, ³ Graduate School of Science and Technology, Hirosaki University)	
4. JAMS-20 symposium program	128

はじめに

2017年12月14日(木)から15日(金)に、第20回AMSシンポジウムを、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター及び日本AMS協会の主催にて開催いたしました。シンポジウムは岐阜県土岐市のセラトピア土岐で行い、2日間の参加人数は75名となりました。今回のシンポジウムでは、第20回を記念して特別講演4件、そして口頭発表19件及びポスター発表9件のご講演が行われました。15日(金)午後には東濃地科学センター 土岐地球年代学研究所において施設見学会を開催しました。ペレット年代測定棟に設置されている加速器質量分析装置、自動グラフィット調製装置の他、レーザーアブレーション装置付きICP質量分析計などの各種年代測定装置をご覧いただきました。

AMSシンポジウムは、1998年の第1回開催以来、加速器質量分析法の技術開発とその応用研究を題材として、施設報告、技術報告及び地球科学や環境科学等の応用研究に関する報告を通じて参加者相互の情報交換・親睦を図りつつ発展をしてきました。今回でシンポジウム開催20周年となり、各AMS施設の技術開発や応用研究に関する報告に加え、これまでのシンポジウムの歩みを振り返るとともに、日本におけるAMS研究の将来について有意義な議論及び情報交換が進められました。また、幸いにも、当センターの所有するタンデム加速器も導入後20年を迎え、記念特別講演として「JAEA-AMS-TONOの20年のあゆみ」と題し当センターの國分研究副主幹により、1997年の装置導入以降の経緯と実績などを紹介させていただきました。愛知工業大学の安江先生からはAMSを利用した活断層の活動イベントの認定の試みについて、最新の研究成果をご紹介いただきました。また、日本AMS協会前会長である名古屋大学の中村先生から、AMS研究の発展と日本AMS研究協会のあゆみについて、現会長である東京大学の松崎先生にはAMS研究のこれからについてご講演いただきました。

また、シンポジウムの開催にあたっては、日本AMS研究協会会員の皆様、ならびにAMS研究や応用研究を実施されている大学、研究所、企業等の皆様にご協力いただきました。ここに記して御礼申し上げます。また、第20回AMSシンポジウムでの若手研究者発表賞は次のとおり授与されました。

口頭発表部門:

- ・最優秀発表賞 大森貴之(東京大学)「微量試料の高精度放射性炭素年代測定」
- ・優秀発表賞 細谷青児(筑波大学)「6MVタンデム加速器による ^{90}Sr -AMS」

ポスター発表部門:

- ・最優秀発表賞 大森貴之(東京大学)「簡易型自動グラフィット処理装置の開発」
- ・優秀発表賞 奈良郁子(名古屋大学)「チベット高原・プマユムツォ湖周辺岩石の ^{10}Be 測定結果」

本報告書執筆者の皆様には、円滑な刊行にご協力いただいたことを感謝申し上げます。ご参加及びご協力いただきました皆様には改めて御礼を申し上げますとともに、今後の皆様の研究の御発展ならびに日本AMS協会の一層の飛躍を祈念いたします。

This is a blank page.

1. 特別講演－AMS シンポジウム 20 周年記念講演

This is a blank page.

1.1 JAEA-AMS-TONO の 20 年のあゆみ The twenty years of JAEA-AMS-TONO

國分(齋藤)陽子^{1*}・藤田奈津子¹・松原章浩²・西澤章光²・西尾智博¹・三宅正恭¹・
石丸恒存¹・渡邊隆広¹・尾方伸久¹・島田顕臣¹・石坂千佳²・岡部宣章¹・加藤元久²・
磯崎信宏²・虎沢 均²

Saito-Kokubu Y^{1*}, Fujita N¹, Matsubara A², Nishizawa A², Nishio T¹, Miyake M¹, Ishimaru T¹,
Watanabe T¹, Ogata N¹, Shimada A¹, Ishizaka C², Okabe N¹, Kato M², Isozaki N², Torazawa T²

¹ 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター
(Tono Geoscience Center, Japan Atomic Energy Agency)
² 株式会社ペスコ (Pesco Corp., Ltd.)

**Correspondence to: Kokubu Y; E-mail: kokubu.yoko@jaea.go.jp*

Abstract

The JAEA-AMS-TONO has been utilized since 1997 in isotope ratio measurements of long-lived radioisotopes related to geochronology of the Quaternary Period. Our AMS system has been routinely used for ¹⁴C, ¹⁰Be, ²⁶Al-AMS and development of ¹²⁹I-AMS has been conducted to enhance the capability for multi-nuclide AMS.

Keywords: JAEA-AMS-TONO; 20 周年

1. はじめに

日本原子力研究開発機構(以下、原子力機構)東濃地科学センター土岐地球年代学研究所における JAEA-AMS-TONO は、平成 9 年 3 月に 5 MV の加速器(NEC 社製ペルトロン 15SDH-2)を有する加速器質量分析装置(通称、ペルトロン年代測定装置)を導入し(Xu et al., 2000)、今年で 20 年を迎えた。東濃地科学センター土岐地球年代学研究所では、高レベル放射性廃棄物の地層処分技術に関する研究開発の一環として行う深地層の科学的研究のうち、地質環境の長期安定性に関する研究の基盤となる年代測定技術の開発を行っている。現在、土岐地球年代学研究所に各種質量分析装置等を揃え、様々な年代範囲、測定試料に対応すべく、放射年代測定法を中心に年代測定法が整備されている(表 1)。加速器質量分析装置は放射性炭素(¹⁴C)をはじめとする数種の年代測定が可能であることから、JAEA-AMS-TONO は土岐地球年代学研究所の中核施設としての役割を担っており、年代測定技術の開発に加え、断層運動や火成活動など、過去の自然現象の調査の一環として、それらの自然現象の活動時期等を明らかにするために利用している(Itoh et al., 2004; Saito-Kokubu et al., 2013, 2015; Matsubara et al., 2014)。本報告では、JAEA-AMS-TONO の 20 年のあゆみについて紹介する。

表 1 土岐地球年代学研究所で整備している年代測定手法

対象施設	年代測定法	年代測定範囲(年前)							主な反映先	対象物質	実用化へのスケジュール
		10 ⁹	10 ⁸	10 ⁷	10 ⁶	10 ⁵	10 ⁴	10 ³			
加速器質量分析装置 (ベトリオン年代測定装置)	¹⁴ C法								断層活動	地下水, 有機物	実用化済
	¹⁰ Be法								侵食速度	石英	実用化済
	²⁶ Al法								侵食速度	石英	実用化済
	³⁶ Cl法								地下水年代	地下水	～H33
	¹²⁹ I法								地下水年代	地下水	～H31
希ガス質量分析装置	K-Ar法	...	...	...	...	...	...	...	断層活動	自生雲母粘土鉱物	実用化済
四重極型質量分析装置	(U-Th)/He法	...	...	...	...	...	...	...	侵食速度	アパタイト, ジルコン	実用化済
光ルミネッセンス測定装置	OSL法								断層活動	石英	実用化済
									隆起速度	長石	～H30
電子スピン共鳴装置	ESR法			...	...	...	...	...	断層活動	石英, 炭酸塩鉱物	～H32
高精度希ガス質量分析装置	希ガス法								地下水年代	地下水	実用化済
電子プローブマイクロアナライザ	CHIME法	...	...	...	...	...	...	...	後背地解析	モナザイト, ジルコン	実用化済
レーザーアブレーション誘導 結合プラズマ質量分析装置	U-Pb法	...	...	...	...	...	...	...	後背地解析	ジルコン	実用化済
		...	...	...	...	...	...	...	断層活動	炭酸塩鉱物	実用化済
FT自動計測装置*	FT法	...	...	...	...	...	...	...	侵食速度	アパタイト, ジルコン	～H30

*H30整備予定

技術開発の対象年代範囲

2. 装置導入からこれまで

平成 9 年の装置導入後、まず ¹⁴C 測定を開始し、断層の活動性や津波の痕跡、気候変動に関する研究などの地質試料の年代推定に大きな役割を果たしてきた。その後、他の宇宙線生成核種を用いた年代測定の需要により、平成 25 年度からはベリリウム-10(¹⁰Be)測定、平成 27 年度からはアルミニウム-26(²⁶Al)測定を実用化し、地表面の侵食速度や岩石の露出年代を求める研究を行っている。近年、ヨウ素の長半減期核種を用いた地下水の年代測定のために、ヨウ素-129(¹²⁹I)測定に向けて測定条件や試料調製法の検討を開始した。図 1 に装置導入後の平成 9 年度から平成 28 年度までの測定試料数の推移を示す。平成 10 年に装置の調整を終えて測定を開始して以来、平成 28 年度までに ¹⁴C、¹⁰Be、²⁶Al、¹²⁹I の総測定時間及び総測定試料数は、20,000 時間及び 16,000 試料を超え、順調に測定実績を上げてきた。

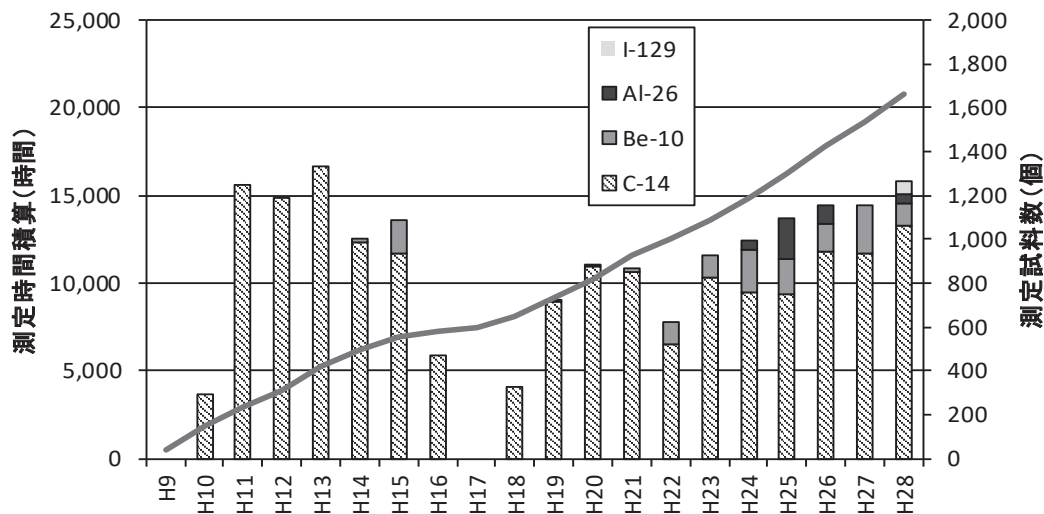


図 1 平成 9 年度から 28 年度までの測定時間の積算(線グラフ)と各年度の測定試料数(棒グラフ)の推移

これまでに各測定核種に応じた性能向上や高経年化対応のため、装置の一部更新を行った。性能向上を目的とした更新の主なものは 3 つあり、まず、平成 16 年度に重イオン検出器の更新である。Maden 他により報告されているガスセル付きの正電極板が 5 枚に分かれているもの (Maden et al., 2007) に変更し、現在、 ^{10}Be 測定の際は、ハーバー膜と P10 ガスによるガスセルを作り、 $\Delta\text{E1}-\Delta\text{E2}$ の検出器を用いて測定を行えるようにした (Matsubara et al., 2014)。次に、平成 19 年から平成 21 年に数回に分けて行ったビームラインのアライメント (鈴木他, 2008; 國分他, 2009, 2010) で、最後は平成 27 年に行ったアクセルネットの更新である。

一方、試料調製についても、測定核種の増加や、試料調製用装置の高経年化に伴い、更新を進めてきた。試料中の炭素量や $\delta^{13}\text{C}$ 測定用の元素分析装置、安定同位体比質量分析装置を更新し、また水試料からバブリングで二酸化炭素を回収するガラスラインの作製 (加藤他, 2017) や自動グラファイト化装置 (Ionplus 社製 AGE3) を導入し、試料調製の効率化を実施した (渡邊他, 2018)。

3. JAEA-AMS-TONO を利用した研究

JAEA-AMS-TONO は、原子力機構独自の研究 (委託研究を含む) による利用に加え、大学や他の研究機関との共同研究や研究協力、原子力機構で行う施設供用制度による外部からの分析依頼による利用を行っている。平成 28 年度の利用者内訳を図 2 に示す。装置が設置されている東濃地科学センターによる利用が 80% を占め、原子力機構内の他拠点による利用、東濃地科学センターと連携協力協定を結んでいる名古屋大学宇宙地球環境研究所による利用 (奈良他, 2018; 藤沢他, 2018) が 15%、施設供用制度によるものが 5% であった。

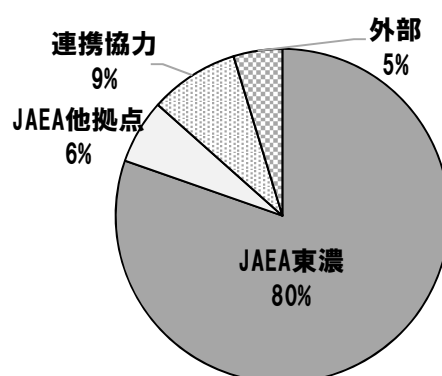


図 2 平成 28 年度の利用者内訳

原子力機構独自の研究では、 ^{14}C 、 ^{10}Be 、 ^{26}Al による年代測定法が可能であることから、断層運動や火成活動、地形の侵食などの発生時期や速度を推定するために利用されている (例えば、道家, 2014; Pachri et al., 2014; 生田他, 2017)。今後は、地下水の年代測定を実施するため、 ^{129}I 及び塩素-36 (^{36}Cl) の測定の実用化を目指しており、現在 ^{129}I 測定に向け、検討を進めている (岡部他, 2018)。また、加速器質量分析の技術向上のため、外部資金等を活用しながら、新たな検出器の開発を行っており (松原他, 2018)、特許の取得を行いながら、精力的に進めている。

施設供用利用制度による利用は、平成 18 年度下期から毎年数件の課題を受け入れている。利用者は、福岡大学や九州大学などの大学の他、国立歴史民俗博物館や原子力環境整備促進・資金管理センター等の研究機関である。利用料金の優遇がある成果公開課題では、論文発表などの成果公開が義務化されており、着実に成果が上げられている。(詳しくは、ホームページ参照: <https://tenkai.jaea.go.jp/facility/3-facility/06-news/result-rep.html>)。

4. 教育施設としての役割

JAEA-AMS-TONO は、測定を受け入れるだけでなく、学生の教育や一般見学も受け入れている。学生は、原子力機構が行う受入制度に従い、受入期間や方法により 3 つの制度により受け入れている。最も定期的に受け入れているのが、夏期休暇実習生であり、これは、大学生、大学院生、高等専門学校 の 4 年生以上を対象に 7 月から 9 月の夏期休暇期間を活用して原子力機構で体験就業できる制度である。毎年数名の学生を受け入れており、平成 28 年度は、東北大大学院や弘前大等から 4 名の学生を受け入れた。

また、JAEA-AMS-TONO は、東濃地科学センター瑞浪超深地層研究所の深度 500 m の研究坑道とともに一般見学施設となっており、年間数百人が訪れている。

5. まとめ

JAEA-AMS-TONO は、導入以来 20 年を迎え、原子力機構で行う地質環境の長期安定性に関する研究で中核となる年代測定装置として、 ^{14}C 年代測定を始めとする宇宙線生成核種を用いた年代測定を行っている。現在 3 つの核種の測定が可能であるが、今後更なる測定核種の増加、そして高度化を目指し、技術開発も行っている。一方で、加速器質量分析装置や試料調製設備等の高経年化が進んでいるが、今後も施設の補修や運用の工夫などによりさらに施設を有効活用し、大学や他の研究機関等との連携、協力を進め、年代測定に関する中心研究拠点及び人材育成拠点として発展させていきたい。

本報告は経済産業省資源エネルギー庁委託事業「平成 28 年度地層処分技術調査等事業（沿岸部処分システム高度化開発）」の成果の一部を含む。

参考文献

- Itoh et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, 223-224, 100 (2004).
 Maden et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, 259, 131 (2007).
 Matsubara et al., Geochronology, edited by J. van Mourik, InTech, 3-30 (2014).
 Pachri et al., J. Geol. Resour. Eng., 4, 163 (2015).
 Saito-Kokubu et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, 294, 43 (2013).
 Saito-Kokubu et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, 361, 48 (2015).
 Xu et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, 172, 8 (2000).
 生田他, 地質学雑誌, 122, 89 (2016).
 岡部他, 第 20 回 AMS シンポジウム報告集, 47 (2018).
 加藤他, 地下水中の溶存無機炭素を対象とした放射性炭素同位体測定のためのガス化回収法の適用性検討, JAEA-Technology 2017-009, 30 (2017).
 國分他, 第 22 回「タンデム加速器及びその周辺技術の研究会」報告集, UTTAC-J-18, 42 (2009).
 國分他, 第 23 回「タンデム加速器及びその周辺技術の研究会」報告集, 45 (2010).
 鈴木他, 第 21 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 2008-012, 19 (2008).
 道家他, 活断層研究, 40, 43 (2014).
 奈良他, 第 20 回 AMS シンポジウム報告集, 118 (2018).
 藤沢他, 第 20 回 AMS シンポジウム報告集, 85 (2018).
 渡邊他, 第 20 回 AMS シンポジウム報告集, 110 (2018).

1.2 AMS 放射性炭素年代測定による活断層の活動イベント認定の試み Study on Identification of Faulting Event using AMS Radiocarbon Dating

安江健一^{1*}
Ken-ichi Yasue^{1*}

¹愛知工業大学地域防災研究センター (AIT Disaster Prevention Research Center)

*Correspondence to: Ken-ichi Yasue; E-mail: k.y1@mac.com

Abstract

This study proposes the exact identification method of faulting events. Radiocarbon ages of typical black soil collected continuously from lower to upper part clarify the timing of faulting events. We sampled black soil at intervals of 3-20 cm in vertical without space from the excavated trench wall of the Atera Fault, central Japan. Sample preparation and radiocarbon dating were carried out in the JAEA-AMS-TONO of the Tono Geoscience Center, Japan Atomic Energy Agency. Calendar years were obtained by calibrating C-14 age using OxCal 4.2.3 with IntCal13 atmospheric curve.

The soil ages in a footwall along the fault varied from 9,500 to 2,000 years ago with depth. The volcanic ash analysis supported the dating results. The soil deposited at an approximately constant rate. However, there are partially anomalous ages in the footwall. The soil ages at the depth of about 2.0-1.7 and 0.4-0.2 m were about 7,500 and 2,000 years ago, respectively. The results showed that the soil of a few dozen of cm in thickness deposited in a short term. In addition, the soil ages at the depth of about 1.5-1.1 and 0.8-0.7 m were about 7,000 and 4,000 years ago, respectively. These ages were older than the just lower soil ages, about 6,000 and 3,500 years ago. These anomalies are probably caused by fault displacements, which means the collapse of a hanging wall with old soil and the forming of lower part at the footwall side. The anomalous ages may suggest that faulting events took place about 7,500, 6,000, 3,500, and 2,000 years ago. Therefore, radiocarbon ages of the continuous black soil along the active fault are effective for identification of the faulting events.

Keywords: 放射性炭素年代 ; 黒色土 ; 活断層 ; 活動時期

1. はじめに

地震を引き起こす活断層の長期評価では、活断層の最新活動時期と活動間隔の把握が重要である。過去の活動時期を精確に把握するためには、断層周辺の堆積物から活動イベントを認定し、イベントの前後の堆積物について高確度かつ高精度な年代測定が必要である。しかし、堆積物中の変位基準を肉眼で識別することが困難な場合には、活動イベントを判断することが難しい。そのような場合には、粒度、鉱物、微化石、有機物などの顕微鏡で識別可能なものに着目して、それらの空間分布が断層付近を境にどのように変化するかを把握する方法が考えられる(図1)。さらに、顕微鏡では識別できないような古地磁気、帯磁率、含水率、炭素量、年代値なども空間分布を把握することで、イベントを認定できる可能性がある。特に、年代値の空間分布で高確度に活動イベント

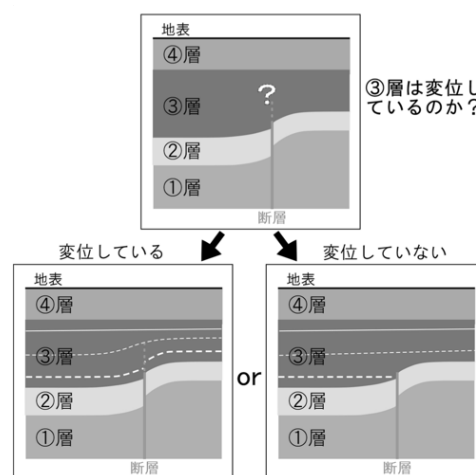


図1 断層変位の認定の模式図

を認定できるのであれば、同時にイベント時期を明らかにすることも考えられる。年代測定法としては、数百～数千年の活動間隔を持つ活断層が多い日本においては、過去数万年間の活動イベントの認定が重要であることから放射性炭素年代測定が有効である。そこで、本研究では、信頼性の高い活動イベントを認定するとともに活動時期を明らかにする手法を整備するため、活断層周辺の黒色土を用いて深度方向に連続的な試料採取を行い、放射性炭素年代測定を実施して断層の活動時期を検討した。また、放射性炭素年代測定と同じ試料を用いて火山灰分析を実施し、年代値とのクロスチェックを実施した。

2. 試料採取・調製・測定

試料は、岐阜県東部に分布する阿寺断層のトレンチ掘削調査（廣内・安江, 2006）地点から採取した。トレンチ掘削調査では、山地斜面に山側が低下する断層によって形成された局所的な凹地に層厚 3m 程度の黒色土の分布が観察された（図 2）。黒色土の間には、層厚 10～30cm 程度の砂層や礫層が挟まれている。測定試料は、この黒色土の深度方向に 3～20cm 程度の間隔で連続的に採取した。間隔は、礫が多い黒色土ほど粗く、礫がほとんど含まれていない黒色土は数 cm 間隔で採取した（図 3）。試料採取においては、壁面を全体的に綺麗にした後、露頭を観察して層相を横断しないように採取地点を選定し、下部から順に採取した。採取した試料は、2 つに分け、1 つは放射性炭素年代測定用、もう 1 つは火山灰分析用にした。

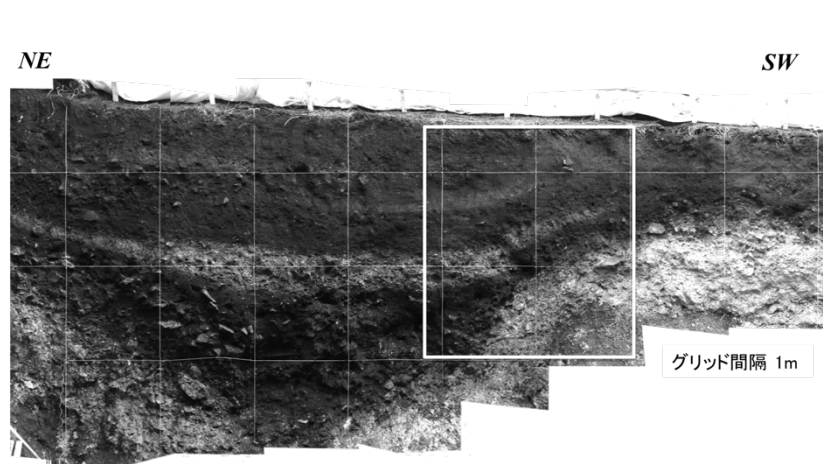


図 2 阿寺断層におけるトレンチ掘削調査の壁面

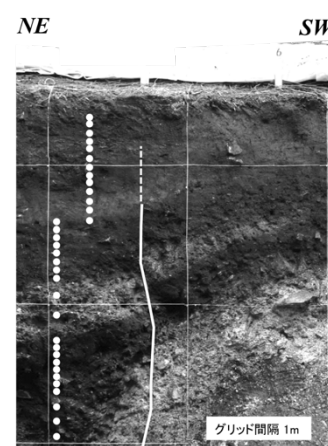


図 3 図 2 の白四角を拡大
白点が試料採取地点

放射性炭素年代測定のための試料調製においては、草木の根や炭などを除去した後、塩酸と水酸化ナトリウムによる処理を行い、アルカリ可溶成分（フミン酸）と不溶解成分（ヒューミン）を測定試料とした（図 4）。放射性炭素年代測定は、日本原子力研究開発機構東濃地科学センター JAEA-AMS-TONO にて実施した。測定結果は、OxCal 4.2.3 (Bronk Ramsey, 2009) に IntCal13 (Reimer et al., 2013) を用いて暦年較正を行った。

火山灰分析は、微量のテフラ起源物質や降灰層準を認識する手法として有効な RIPL 法 (Refractive Index Physical Lobar Method: 古澤, 2004) を用いた。なお、放射性炭素年代測定のための試料調製において得られる残渣を火山灰分析に使うことで、少ない試料でも効率的に放射性炭素年代測定と火山灰分析が可能と考えられる。

3. 測定結果

放射性炭素年代測定の結果、黒色土の年代値は、約 9,500～2,000 年前の値を示し、深度が浅くなるに連れて若くなる傾向が認められた（図 5）。部分的には、値が逆転したり、同程度の値が深度方向に連続したりする特徴が認められた。

深さ約 200～170 cm と約 40～20 cm では、深さとともに値がほとんど変化せず、それぞれ約 7,500 年前と約 2,000 年前の値を示す。また、深さ約 150～110 cm では、値が逆転しており下位が約 6,000 年前であるのに対して、上位が約 7,000 年前の値を示す。同様に、約 80～70 cm でも、値が逆転しており下位が約 3,500 年前であるのに対して、上位が約 4,000 年前の値を示す。フミン酸とヒューミンの年代値は、同じ試料においてほぼ同じ値を示したが、約 150～110 cm では値に差が認められた。火山灰分析の結果、黒色土中の一部に鬼界アカホヤ火山灰（7,300 年前：町田・新井, 2003）と天城カワゴ平火山灰（3,060～3,190 cal yrs BP：嶋田, 2000）が認められ、黒色土の放射性炭素年代の値と調和的であった。

4. 考察

これらの結果を検討することで、黒色土の連続的な放射性炭素年代値の変化から断層イベントを認定できる可能性が示された（図 6）。深度が浅くなるに連れて年代値が若くなる傾向は、堆積した年代を反映していると考えられ、火山灰分析の結果もそれを支持する。これらの傾向から計算される堆積速度は約 0.1～0.2 mm/年である。年代値が逆転する部分は、露頭観察から判断できるイベント層準と一致しており、断層の活動に伴う崩壊堆積物から得られる値と考えられる。崩壊堆積物は、下位のより古い層を巻き込んでいる可能性があることから、値が逆転した可能性が考えられる。また、フミン酸とヒューミンの年代値に差が認められる部分は崩壊堆積物と一致しているが、これも下位の層を巻き込んでいるためかもしれない。同程度の年代値が深度方向に連続する部分は、堆積速度が速かったことが考えられ、その原

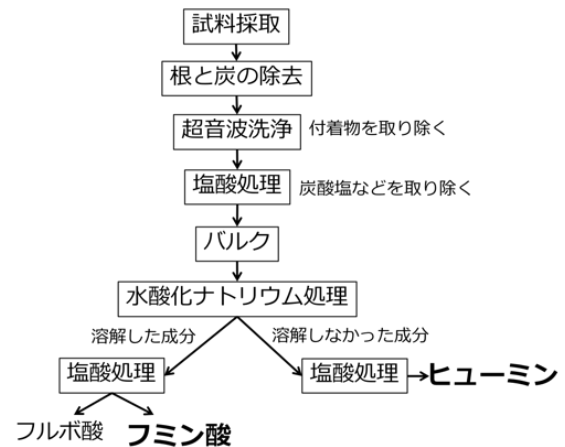


図 4 試料調製の作業フロー

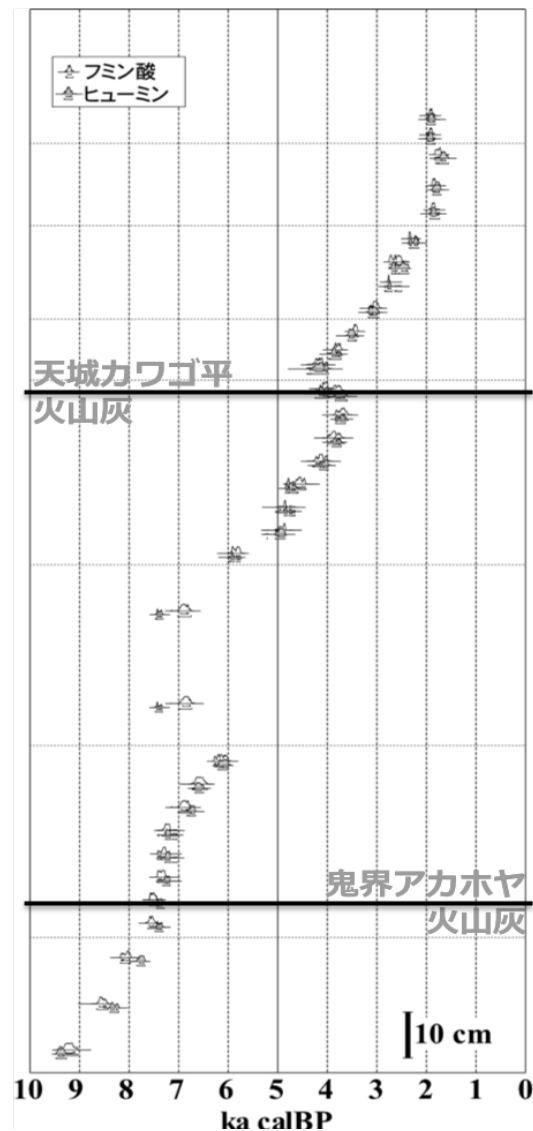


図 5 黒色土の深度ごとの連続 C-14 年代

因として断層変位に伴って低下側に凹地が形成されたことにより、凹地部に短期間で多くの堆積があったと考えられる。

これらの特徴から断層運動に関わると思われるイベントは、約 9,500 年前、約 7,500 年前、約 6,000 年前、約 3,500 年前、約 2,000 年前に発生した可能性がある。今後は、阿寺断層の別の地点での調査結果と比較することで、イベントの有無や年代が明らかになると考えられる。

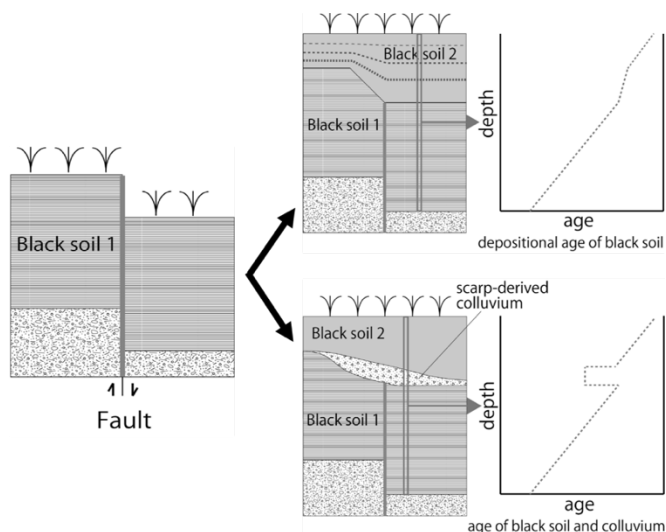


図 6 断層イベントに伴う黒色土の堆積年代の変化の概念図

5. まとめ

黒色土を深度方向で連続的に放射性炭素年代値を得ることで、活断層の活動

イベントの認定及びイベント時期の決定に有効な情報が得られる例を示した。また、得られた年代値を深度別に示して傾向を検討し、断層イベントに伴う黒色土の堆積年代の変化を概念図として示した。今後、適用事例の蓄積を進めていくことで、活断層調査におけるイベント認定やイベント時期の決定に有効な手法として提示できる可能性がある。

なお、本研究を進めるにあたり、信州大学の廣内大助教授には現地調査において、日本原子力研究開発機構東濃地科学センターの皆様には放射性炭素年代測定とデータ解析において、多くのご協力とご助言をいただいた。ここに記して感謝いたします。本研究は科研費 26350481 「肉眼観察で確認困難な断層変位基準の定量的把握手法の構築」の助成を受けたものである。

引用文献

- Bronk Ramsey, C., 2009, Bayesian analysis of radiocarbon dates, *Radiocarbon*, 51, 1, 337-360.
- 古澤 明, 2004, RIPL法により由布岳火山周辺のテフリックレスから見出した火山活動, *地質学雑誌*, 110, 19-37.
- 廣内大助・安江健一, 2006, 阿寺断層帯中部, 中津川市加子母地区における古地震活動調査, *愛知工業大学地域防災研究センター年次報告書*, 3, 106-108.
- 町田 洋・新井房夫, 2003, 新編火山灰アトラス [日本列島とその周辺], 東京大学出版会, 360p.
- Reimer, P. J., Bard, E., Bayliss, A., Beck, J. W., Blackwell, P. G., Bronk Ramsey, C., Grootes, P. M., Guilderson, T. P., Hafliðason, H., Hajdas, I., Hatt, C., Heaton, T. J., Hoffmann, D. L., Hogg, A. G., Hughen, K. A., Kaiser, K. F., Kromer, B., Manning, S. W., Niu, M., Reimer, R. W., Richards, D. A., Scott, E. M., Southon, J. R., Staff, R. A., Turney, C. S. M., & van der Plicht, J., 2013, IntCal13 and Marine13 Radiocarbon Age Calibration Curves 0-50,000 Years cal BP, *Radiocarbon*, 55, 4, 1869-1887.
- 嶋田 繁, 2000, 伊豆半島, 天城カワゴ平火山の噴火と縄文時代後～晩期の古環境, *第四紀研究*, 39, 151-164.

1.3 AMS 研究の発展と日本 AMS 研究協会のあゆみ

Progress of Studies on AMS and history of the Japan Society for Accelerator Mass Spectrometry

中村俊夫^{1*}

Toshio Nakamura^{1*}

¹名古屋大学宇宙地球環境研究所 (¹Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University)

**Correspondence to: Toshio Nakamura; E-mail: nakamura@nendai.nagoya-u.ac.jp*

Abstract:

A cyclotron accelerator was first used as a sensitive mass spectrometer by Alvarez and Cornog in 1939 for mass-separation of contaminating backgrounds and measuring ³He abundance accurately. Since the study of measuring long-lived radioisotopes by Muller in 1977 using a cyclotron, techniques of accelerator mass spectrometry (AMS), using mainly a tandem Van de Graaff accelerator, have been extensively developed to measure low-abundance cosmogenic nuclides such as ¹⁰Be, ¹⁴C, ²⁶Al, ³⁶Cl, ⁴¹Ca, ¹²⁹I, etc., in natural samples. Most efforts to date have been directed to measurements of ¹⁰Be and ¹⁴C. In particular, developments of AMS have triggered a wide area of application in radiocarbon (¹⁴C) dating. The AMS system requires only 1mg of carbon in precise determination of ¹⁴C/¹²C and ¹³C/¹²C isotope ratios, and this advantage has broadened the applicability of ¹⁴C measurements. Nowadays, AMS contributes to almost all kinds of researches that utilize ¹⁴C dating in archeology, cultural property science, geology, and those that employ ¹⁴C tracer in environmental sciences, medical sciences and even forensic studies.

Here the author briefly describes the beginning history of AMS, and summarizes the status of AMS research in Japan as well as in Korea and China. Perspectives of AMS in near future are discussed based on commercially produced AMS systems by the three main manufacturers, High Voltage Engineering (HVE), National Electrostatic Corporation (NEC) and Ion Plus.

Keywords: AMS, direct detection of radioisotopes, cosmogenic radioisotopes, radiocarbon dating, ¹⁴C tracer

1. はじめに

加速器質量分析 (Accelerator Mass Spectrometry; AMS) は、粒子イオンを静電的に加速する加速器、その質量を識別する質量分析装置、さらに入射粒子のエネルギーやエネルギー損失率から入射粒子の原子番号 (原子核の電荷) を決定する重イオン検出器を組み合わせ、天然に存在するごく微量の放射性同位体とその安定同位体を高感度かつ高精度に定量する測定法である。1980 年代に加速器質量分析 (AMS) による天然レベルのごく微量放射性同位体のごく微量の試料を用いて高感度で測定できるようになって、放射性同位体を用いる年代測定の応用の範囲が著しく拡大された。AMS を用いると、¹⁰Be (half life: 1.5×10^6 yr)、¹⁴C (5730 yr)、²⁶Al (7.1×10^5 yr)、³⁶Cl (3.0×10^5 yr)、⁴¹Ca (1.0×10^5 yr)、¹²⁹I (1.57×10^7 yr) などさまざまな宇宙線生成放射性同位体が、対象とする元素の

量で数mgを用いて測定できる。利用される加速器は、AMS 用としては加速電圧が 0.2 MV～6 MV のタンデム型の静電加速器（バンデグラフ、またはコッククロフト・ワルトン式）がほとんどである。

年代測定においては、これらの宇宙線生成放射性同位体のうち放射性炭素（ ^{14}C ）が最もよく用いられる。炭素は、生物に含まれる主要元素の一つであることから、生物起源のさまざまな考古学・地質学試料に含まれている。さらに、地球の大気中で宇宙線の作用で形成された ^{14}C は酸化されて二酸化炭素（ $^{14}\text{CO}_2$ ）となり、大気中に存在する他の二酸化炭素（ $^{13}\text{CO}_2$, $^{12}\text{CO}_2$ ）とよく混合して、 ^{14}C 濃度が一定になったあと、生物体内に移行する。このため、炭素試料の ^{14}C 初期濃度がほぼ一定であり、試料に残存している ^{14}C 濃度と試料の年代との関係はほぼ指数関数で表される。一方、 ^{41}Ca は、動物の骨などに含まれており、半減期も 10 万年と長いため、原人段階の骨化石の年代測定に利用できる可能性が高い。しかし、 ^{41}Ca の検出は、それぞれの試料中の ^{41}Ca の初期濃度が明白ではないため、また、 ^{14}C の検出に比較して、Ca イオンの出力が弱くバックグラウンドイオンの除去が難しいため、年代測定への応用はまだ開発段階といえる。他方、 ^{10}Be 、 ^{26}Al 、 ^{129}I は湖底・海底堆積物の堆積年代、露出した岩石や隕石の宇宙線照射年代推定、また、 ^{36}Cl は地下水の年齢の推定などに利用される。

本報文では、AMS の特徴、発展の歴史、日本、中国及び韓国における稼働状況や導入計画を述べたあと、AMS 装置の世界 3 大メーカーである High Voltage Engineering (HVE), National Electrostatic Corporation (NEC) 及び Ion Plus から販売されている AMS 装置について概説する。

2. AMS 発展の初期

1970 年に開催された Nobel Symposium on Radioactive Variations in Absolute Chronologies において、Oeschger(1970)が、初めて、 ^{14}C の直接測定の有効性に言及した。現代の炭素 1mg には 60,000,000 個の ^{14}C 原子が含まれている。しかし、 ^{14}C の半減期は 5730 年と長く、それらの ^{14}C 原子のうち、1 時間の間に放射壊変して β 線を放出するのはほぼ 1 個にすぎない。数グラムの炭素試料を必要とする β 線計数法に比べて、この ^{14}C 原子の直接測定は大変魅力的な提案であった。1976 年頃、米国 Rochester 大学の Purser（1977）は、加速器を超高感度の質量分析に用いて ^{14}C 原子を直接測定することが出来る可能性を確信した。同じ頃、California 大学 Lawrence Berkeley Laboratory の Muller（1977）は、サイクロトロンの高分解能質量分別の機能を ^{14}C 、 ^{10}Be などの天然にごく微量にしか存在しない放射性同位体の直接測定に応用できることを提案した。Muller（1977）の研究は、California 大学の Alvarez と Cornog による、サイクロトロンを用いた ^3He の正確な定量（Alvarez and Cornog 1939）や幻の素粒子である「クオーク粒子」の探索から引き継がれたものである。Purser（1977）の патент 取得、Muller（1977）の Science 誌に掲載された論文がそれを物語る。その後すぐに、 ^{14}C 原子の直接測定がタンデム加速器を用いて可能であることが、Nelson et al.（1977）及び Bennet et al.（1977）によって実証された。その翌年、1978 年の 4 月には、Rochester 大学にて、“The First Conference on Radiocarbon Dating with Accelerators”が開催され、その 3 年後の 1981 年 5 月には、会議名を少々変更して、Argonne National Laboratory にて実質的に第2回目の “Symposium on Accelerator Mass Spectrometry” が開催された（表 1）。第 1 回目の会議には、日本人の参加者は無い。第 2 回目には、名古屋大学の古川路明博士、九州大学の小林紘一博士、カリフォルニア大学の西泉邦彦博士の 3 名が参加している（表 1）。古川路明博士は、名古屋大学において、2 年計画の初年度分が納入されていた GIC 社製の 3MV タンデトロン加速器質量分析計の概要とその応用研究計画について口頭発表を行った（Furukawa et al., 1981）。日本では、2002 年 9 月に、第 9 回 AMS 国際会議が名古屋で開催された。参加者は 237 名、うち日本人研究者が 88 名、日本人の発表は 66 件であった。

表1 AMS 国際会議開催の歴史

回数	開催日	開催場所
AMS-1	1978, 4/20～4/21	University of Rochester, UAS
AMS-2	1981, 5/11～5/13	Argonne National Laboratory, USA
AMS-3	1984, 4/10～4/13	ETH, Zurich, Switzerland
AMS-4	1987, 4/27～4/30	Niagara on the Lake, Ontario, Canada
AMS-5	1990, 4/23～4/27	Musee de l'Homme, Paris, France
AMS-6	1993, 9/27～10/1	ANU, Canberra & ANSTO, Sydney, Australia
AMS-7	1996, 5/20～5/24	Westward Look Resort, Tucson, Arizona, USA
AMS-8	1999, 9/6～9/10	Palais Auersperg, Vienna, Austria
AMS-9	2002, 9/9～9/13	名古屋大学, 日本
AMS-10	2005, 9/5～9/10	Lawrence Livermore National Laboratory, Berkeley, USA
AMS-11	2008, 9/14～9/19	Rome, Italy
AMS-12	2011, 3/20～3/25	Wellington, New Zealand
AMS-13	2014, 8/24～8/29	Aix-en-Provence, France
AMS-14	2017, 8/12～8/20	University of Ottawa, Canada
AMS-15	2020 (予定)	ANSTO, Sydney, Australia

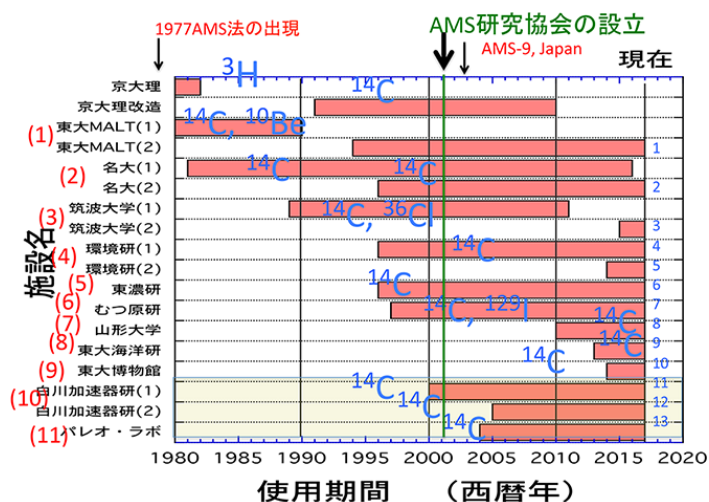


図1 日本国内の稼働中の AMS 施設

3. 日本の AMS 研究の発展と現状及び AMS 研究協会

日本では、1980 年ころから、京都大学、東京大学にて、既存のタンデム加速器を用いて、AMS の研究が始められた (図 1)。東京大学では、加速電圧 5 MV の東芝社製のバンデグラフ・タンデム加速器を用いて ^{10}Be の測定が研究され、1981 年に ^{10}Be の検出に成功し、1982 年から定常測定が開始された (吉田, 2016 ; 小林, 2016)。その後、地震による加速器のトラブルが起きたため、運転の再開が遅くなり、1985 年 7 月に、はじめて $^{14}\text{C}^{3+}$ が検出され (吉田, 2016 ; 小林, 2016)、その後、定常測定が開始された。名古屋大学では、1981/82 年に、General Ionex 社製の AMS 専用機であるタンデトロンが導入され、1983 年 2 月に $^{14}\text{C}^{3+}$ の検出、1983 年 9 月に ^{14}C 年代測定の開始、1987 年 1 月から学内共同利用が開始された (中村, 2011)。一方、1989 年頃に、筑波大学でも既存のタンデム加速器を用いて ^{36}Cl , ^{14}C の定量が始められた (Nagashima et al., 2000 ; 小林, 2016)。京都大学では、1990 年に、加速電圧 5 MV のタンデム加速器が、NEC 社製の加速電圧 8 MV の 8UDH ペレトロンに改造

され、 ^{14}C 測定に絞って研究開発が進められた。そして 2000 年には、実試料の ^{14}C 年代測定が開始された (Nakamura et al., 2004)。また、東京大学において、1991～1994 年にかけて、既存のタンデム加速器が、NEC 社により開発された AMS 利用を主目的とする装置に更新されたのを皮切りに、国立環境研究所、東濃地科学センター、名古屋大学 (2 台目)、日本原子力研究開発機構青森研究開発センターむつ事業所、白川加速器分析研究所 (民間)、パレオ・ラボ (民間)、東京大学大気海洋研究所、東京大学博物館に、AMS 専用機が次々と導入された (中村, 2013 ; 小林, 2016)。さらに、筑波大学では、東日本大震災で被害を受けたタンデム加速器の更新が行われた。現在、11 施設にて、13 台のタンデム加速器 (但し、東京大学大気海洋研究所の single-stage (SS) AMS では、タンデム加速器は使われていない。) が AMS 測定に利用され、それぞれ素晴らしい成果を発信している (図 2)。表 2 に示した日本 AMS シンポジウムにおいて出版されている報告書を参照されたい。

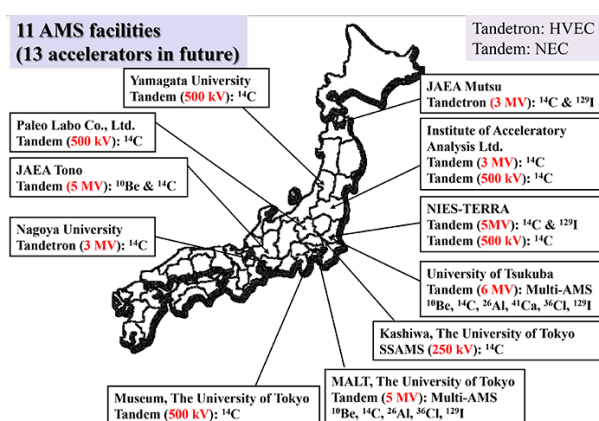


図 2 日本国内の稼働中の AMS 施設の位置図

AMS 法による超高感度同位体イオン分析技術が 1977 年に開発されて以来、日本でも AMS 技術の開発、応用が、国内の研究者間で活発に議論されてきた。こうして、上述のように、AMS 装置の導入が進められてきたわけであるが、1990 年の後半になって、回を重ねてきた AMS 国際会議を日本で開催する機運が高まってきた。そこで、1999 年開催予定の第 8 回 AMS 国際会議の開催を日本に招致する準備として、日本大学の AMS グループを中心にして、第 1 回日本 AMS シンポジウムが 1997 年 6 月 2～3 日に、千葉県エアロビクスセンターにて開催された。それに先立って、1996 年に米国アリゾナにおいて第 7 回 AMS 国際会議 (表 1) が開催されたおりに、第 8 回 AMS 国際会議の日本招致が当時東京大学 MALT グループの小林紘一氏によって参加者一同の面前にて提案されたが、参加者による後日の投票の結果、オーストリアのウィーン大学での開催に決定された。その後、第 8 回 AMS 国際会議の場において、再度、第 9 回 AMS 国際会議の日本招致が提案され、投票により日本開催が決定された。この AMS 国際会議の日本開催に、日本の AMS 研究者全体で対応するために、第 3 回日本 AMS シンポジウムにおいて、日本 AMS 研究協会が 2001 年 1 月 12 日に正式に発足した。

日本 AMS 研究協会の活動は、年に 1 回シンポジウムを開催して、AMS 装置の稼働・管理状況に関して得られた貴重な経験を公表して共有すること、また、応用研究を紹介してさらなる発展を図ることである。さらに、協会の活動状況を紹介する総会を開催すると共に、国内外の AMS 関連の学会やシンポジウムの開催に関する情報を国内の AMS 関係者と共有することである。これまでに、

日本 AMS 研究協会が主催・共催してきた AMS 関連シンポジウムのリストを表 2 に示す。なお、日本 AMS 研究協会の歴代の会長は、第 1 代小林紘一（2001～2005）、第 2 代中村俊夫（2005～2016）、第 3 代松崎浩之（2017～現在）である。

表 2 AMS 研究協会が主催・共催してきたシンポジウム

名 称	開 催 日	開 催 地	主 催 機 関
第 1 回 AMS シンポジウム	1997 年 6 月 2～3 日	千葉県エアロビクスセンター	永井尚生
第 2 回 AMS シンポジウム	1998 年 11 月	東京大学山上会館	小林紘一
NIES AMS 国際ワークショップ	2000 年 1 月 6～8 日	国立環境研究所	柴田康行
第 3 回 AMS シンポジウム	2001 年 1 月 12～13 日	東京大学農学部一条ホール	小林紘一
第 4 回 AMS シンポジウム	2002 年 1 月 12～13 日	名古屋大学豊田講堂会議室	中村俊夫
Pre-AMS-9 国際会議	2002 年 9 月 7 日	東京大学	永井尚生・松崎浩之
AMS-9 国際会議	2002 年 9 月 9～13 日	名古屋大学豊田講堂	中村俊夫
第 5 回 AMS シンポジウム	2003 年 1 月 31 日～ 2 月 1 日	名古屋大学シンポジオンホール	中村俊夫
第 6 回 AMS シンポジウム	2003 年 12 月 13～ 14 日	東京大学学士会館分館	松崎浩之
第 7 回 AMS シンポジウム	2005 年 1 月 13～14 日	京都大学大学院理学研究科 物理学教室・タンデム加速器棟	田澤雄二
第 1 回 EA-AMS 国際シンポジウム	2006 年 1 月 26～27 日	筑波大学総合研究 B 棟公開 講義室	長島泰夫・笹 公和・ 今村峯雄
第 8 回 AMS シンポジウム	2006 年 1 月 27～29 日	筑波大学総合研究 B 棟公開 講義室	長島泰夫・笹 公和
第 9 回 AMS シンポジウム	2006 年 10 月 20～ 21 日	東京大学武田ホール	松崎浩之
第 10 回 AMS シンポジウム	2008 年 3 月 7～8 日	東京大学武田ホール	松崎浩之
第 11 回 AMS シンポジウム	2009 年 1 月 14～15 日	名古屋大学野依記念学術交流 会館	中村俊夫・南 雅代
第 12 回 AMS シンポジウム	2010 年 5 月 23～24 日	群馬県桐生市市民文化会館	伊藤 茂
第 13 回 AMS シンポジウム	2011 年 1 月 27～28 日	山形市キャッスルホテル	門叶冬樹
第 4 回 EA-AMS 国際シンポジウム	2011 年 12 月 16～ 18 日	東京大学武田ホール	松崎浩之
第 14 回 AMS シンポジウム	同上	同上	松崎浩之
第 15 回 AMS シンポジウム	2013 年 3 月 9～10 日	名古屋大学環境総合館	中村俊夫・南 雅代
第 16 回 AMS シンポジウム	2014 年 3 月 19～20 日	東京大学大気海洋科学研究所	横山祐典
第 17 回 AMS シンポジウム	2015 年 3 月 2～3 日	筑波大学研究基盤総合セン ター応用加速器部門	笹 公和
第 18 回 AMS シンポジウム	2016 年 3 月 3～4 日	東京大学総合研究博物館	米田 穰
第 19 回 AMS シンポジウム	2016 年 12 月 17～ 18 日	国立歴史民俗博物館	坂本 稔・箱崎真隆
第 20 回 AMS シンポジウム	2017 年 12 月 14～ 15 日	日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター	石丸恒存・國分陽子
第 20 回 AMS シンポジウム	2018 年 12 月（予定）	日本大学	永井尚生

4. 中国と韓国の現状と EA-AMS シンポジウム

4.1 中国の AMS

2017 年 11 月に、中国の桂林市の広西師範大学にて開催された EA-AMS-7 国際シンポジウムにお

いて、Shan et al. (2017) は、中国における AMS 研究の現状を概観した。この際に、中国における、導入計画中の装置を含めた AMS 研究の現状を紹介した。中国の AMS 装置（導入計画中のものを含む）のリストを表 3 に示す。装置の数は、総数で 20 台に及ぶ。

中国では、中国科学院原子核研究所（CIAE-CAS）及び北京大学で、既存の大型タンデム加速器を用いた AMS の研究が 1980 年代に開始された。CIAE では、13MV 加速電圧のタンデム加速器を用いて、割り当てられた短期間を有効に利用して AMS 測定の開発・利用研究が進められた。1989 年頃には、CIAE の 13MV タンデムを用いて、AMS 測定が開始されたとされる（Jang et al., 2000）。一方、北京大学では 1992～1993 年頃に、加速電圧 5.5 MV の EN タンデム加速器を用いた AMS 測定利用が開始された（Guo et al., 2006; Liu et al., 2007）。その後、2004 年 9 月に NEC 社製の加速電圧 0.6 MV の compact AMS が ^{14}C 測定の専用機として導入された（Liu et al., 2007）。他方、西安にある中国科学院地球環境研究所では、地球環境試料の年代測定に向けて、2006 年に、Xi'an AMS Center が正式に発足し、HVE 社製の 3MV-multi-element AMS が導入された（Zhou et al., 2006）。その後の経済発展に伴って、近年急速な AMS 装置の導入が進められている。これが、Shan et al. (2017)により紹介された 20 台にも及ぶ AMS 装置である。中国桂林にて開催された EA-AMS-7 国際シンポジウムにおいて紹介された中国のさまざまな応用研究は、たいへん興味深いものがあり、今後の研究の進展が期待されるところである。

表 3 AMS systems in China （導入中も含む）

China Institute of Atomic Energy (CIAE), Beijing	1) Tandem-13 MV 2) 150 KV 3) Tandem-350 (1) 4) Tandem-350 (2)
Taiyuan	5) Tandem-300 KV
Peking University	6) Tandem-6 MV 7) 600 KV compact AMS (NEC 社製)
Beijing Normal University	8) Tandem-1 MV
Xian	9) Tandem-3 MV (HVE 社製) 10) 機種未定
Guangzhou	11) Tandem-500 KV (NEC 社製)
Shijiazhuang, IHEGCAGS	12) Tandem-1 MV (HVE 社製)
Tianjin	13) Tandem-500 KV (NEC 社製)
Guangxi Normal University, Guilin	14) 150 KV (CIAE 社製)
Nanjing	15) Tandem-200 KV
Lanzhou University	16) Tandem-200 KV
Gingdao	17) Tandem-200 KV 18) Tandem-500 KV (NEC 社製)
Guiyang	19) Tandem-1 MV
Kaifeng Henan University	20) Tandem-200 KV

(Shan et al. (2017)を改変)

4.2 韓国の AMS

韓国の AMS 装置のリストを表 4 に示す。韓国の AMS 研究は、ソウル国立大学自然科学系物理学科に導入された HVE 社製の加速電圧 3 MV タンデトロン AMS（イオン入射部にリコンビネーター装置）から始まった（Kim et al., 2004）。1998 年には、最新の AMS 装置が新築の建物内に納められた中で、“AMS Korea 1998 International Symposium”と称して国際シンポジウムが開催され、同時に装置のお披露目会が盛大に催された。その後、2007 年に Korea Institute of Geosciences and Mineral

Resources (KIGAM) に加速電圧 1 MV (HVE 社製) が導入され (Hong et al., 2010)、ソウル大学と共に車の両輪となって韓国の AMS 研究を牽引した。2013 年には、加速電圧 6 MV (HVE 社製) の AMS 装置 (イオンビーム分析の利用も可能) が Advanced Analysis Center, Korea Institute of Science and Technology (AAC-KIST: Kim et al., 2017) に導入された。その後、4 機関、1) Korea Apparel Testing and Research Institute、2) 放射性医薬品開発複合研究センター、3) Dongguk 大学原子力エネルギーシステム工学専攻、4) National Research Institute of Cultural Heritage において、 ^{14}C 測定専用の装置の導入が進められてきている。韓国には貴重な文化財資料が多々保管されており、それらの年代研究の発展・深化が楽しみとされる。

表 4 AMS systems in Korea

機 関 名 称	AMS 装 置	導入年、ほか
School of Physics, Seoul National University	Tandem-3 MV, with recombimator (HVE 社製)	1995 年、2017 年に原子力研究院 (KAERI) 陽性子加速器センターへ移設
地質資源分析センター、KIGAM	Tandem-1 MV, multi-element (HVE 社製)	2007 年
Advanced Analysis Center, Korea Institute of Science and Technology (AAC-KIST)	Tandem-6 MV (HVE 社製)	2013 年
Korea Apparel Testing and Research Institute	MICADAS 200 kV (Ion Plus)	2016
放射性医薬品開発複合研究センター、Korea Institute of Radiological & Medical Science (KIRAM)	Pelletron 500 kV (NEC 社製)	2018
原子力エネルギーシステム工学専攻、Dongguk University 慶州キャンパス	MICADAS 200 kV (Ion Plus)	2018
National Research Institute of Cultural Heritage (大田)	MICADAS 200 kV, or NEC SSAMS 250 kV まだ検討段階なので機種変わる可能性あり	Proceeded now

4.3 EA-AMS シンポジウム

東アジア地域の AMS 研究を活性化する目的で、2005 年当時、東アジアで AMS 研究を進めていた中国、韓国そして日本の 3 カ国の AMS 研究者で相談を重ね、第 1 回のシンポジウムが、2006 年 1 月 26～27 日に筑波大学タンデム加速器センターにて開催された。East-Asian Symposium on Accelerator Mass Spectrometry (EA-AMS) と命名された。その当時、国立歴史民俗博物館の西本豊弘教授を中心にして、文部科学省・科学研究費補助金-学術創成研究費「弥生農耕の起源と東アジア：炭素年代測定による高精度編年体系の構築」が進行しており、同博物館でも、今村峯雄教授、坂本稔助教授を中心にして弥生遺跡遺物試料の高精度年代測定が精力的に進められていた。この研究費を用いて海外の研究者を招待する事ができたこともあり、EA-AMS シンポジウムの開催計画が大きく具体化した。この時には、中国から 4 名、韓国から 2 名、また、当時米国に滞在していた西泉邦彦博士、Kyeong J. Kim 博士の計 8 名がシンポジウムに招待された。

その後、表 5 に示すとおり、7 回開催されている。EA-AMS-6 (2015 年) は、3 カ国以外の台湾の

台湾国立大学にて開催された。台湾国立大学では、2013 年 9 月から HVE 社製の加速電圧 1 MV の AMS 専用機を用いて、主に ^{14}C 年代測定の研究が進められている (Li et al., 2017)。2017 年に中国桂林にて開催された EA-AMS-7 では、中国、韓国、日本はもとより、台湾、オーストラリア、ニュージーランド、米国、スイス、ドイツからの参加者もあった。当初よりも国際色が豊かになっている。来年は、名古屋大学と日本原子力研究開発機構東濃地科学センターがお世話をして、名古屋・土岐方面を舞台にして EA-AMS-8 を開催する予定である。

表 5 EA-AMS 国際シンポジウムの開催歴

名 称	開催日	開催地	主催代表
第1回 EA-AMS 国際シンポジウム	2006 年 1 月 26～27 日	筑波大学総合研究 B 棟公開講義室	長島泰夫・笹 公和・今村峯雄
第2回 EA-AMS 国際シンポジウム	2007 年 10 月 22 日	Seoul National University, Korea	Jong-Chan Kim
第3回 EA-AMS 国際シンポジウム	2009 年 10 月 19～22 日	IEE-CAS, Xi'an, China	Weijian Zhou
第4回 EA-AMS 国際シンポジウム	2011 年 12 月 16～18 日	東京大学武田ホール	松崎浩之
第5回 EA-AMS 国際シンポジウム	2013 年 10 月 15～18 日	KIGAM, Korea	洪 完 Hong Wan
第6回 EA-AMS 国際シンポジウム	2015 年 10 月 5～8 日	National Taiwan University, Taipei, Taiwan	李紅春 Hongchun Li
第7回 EA-AMS 国際シンポジウム	2017 年 11 月 20～24 日	Guangxi Normal University, Guilin, China	沈洪寿 Hongtao Shen
第8回 EA-AMS 国際シンポジウム	2019 年秋開催予定	名古屋大学・東濃地科学センター	南 雅代・國分陽子・北川浩之・中村俊夫

5. AMS の将来展望

最近の AMS 装置の導入状況を見ると、加速電圧 3-6MV の大型の AMS 装置から、加速電圧 500 kV 以下の小型の AMS 装置 (決して安価とは言えないが) の導入が目立つ。特に、NEC 社製の compact AMS (500 kV)、Single stage AMS (250 kV)、Ionplus 社製の MICADAS (200 kV) などの ^{14}C 測定に特化した装置の導入が目立っている。国内でも、compact AMS は合計 4 台が、パレオ・ラボ社、加速器分析研究所、山形大学、東京大学総合研究博物館に導入され、また、Single stage AMS の 1 台が東京大学大気海洋研究所に導入されており、 ^{14}C 年代測定、濃度測定に活発に利用されている。

一方、MICADAS は、ヨーロッパを中心に導入が進められており、中国、韓国への導入を含めると累計で 20 台近くが導入予定とされ、活発に利用されている。オランダの HVE 社も、加速電圧 220 kV の ^{14}C 測定専用の AMS 装置 (4102Bo- ^{14}C -AMS) の販売を開始した。

また、NEC 社の compact AMS (500 kV) には、 ^{14}C の他に ^{10}Be 、 ^{26}Al を測定可能なオプションとして compact multi-AMS (500 kV) 装置があり、既にニュージーランドの GNS 研究所などに導入されている。また、Ionplus 社では、300 kV の MICADAS type multi-AMS (^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{41}Ca , ^{129}I , actinides が測定可能) が、同じく、HVE 社からは、330 kV の 4103Bo-multi-nuclide AMS (^3H , ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{41}Ca , ^{129}I , actinides が測定可能) が発売予定である。このように、多種類の核種の測定に、大型のタンデム加速器は不要になった感があるが、これらの小型の装置では、検出できる濃度の限界をどこまで下げることができるかが課題である。濃度の低い試料を高い確度で安定して測定するには、分解能の高

い大型の加速器がまだまだ不可欠であると思われる。

他方、NEC 社では、独創的で、取扱が簡単で、安価な ^{14}C 測定装置として、PIMS (positive ion mass spectrometer) が開発中である。Sundquist et al. (2017) によると、ECR イオン源で CO_2 ガスから C^+ イオンを発生し、それをイソブタンガスで炭素の負イオンに変え、さらにそれを質量分析して、 ^{12}C 、 ^{13}C 、 ^{14}C を検出する。既に、2 種類の異なる試料について交互に測定して、 $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比の再現性が良好である事を確認している。

Ionplus 社は、スイスの ETH 工科大学の AMS グループの全面的な協力のもとに、同グループが開発した MICADAS-AMS 装置を商品化し、販売・保守するために設立された民間会社である。Ionplus 社は、AMS 装置以外に、同時に、ガスイオン源のオプション、自動グラフアイト作成装置、自動鉄粉末分取装置、炭酸カルシウム分解・ CO_2 精製装置、など、AMS 分析に必要な装置を取りそろえて販売している (Ionplus, 2017)。Customer は、資金さえ準備できれば、MICADAS-AMS 装置を運転・管理・保守できる物理学出身者と測定試料が取り扱える化学出身者が揃えば、いつでも、世界最高の精度・確度を持った AMS 施設が設立できるであろう。名古屋大学に、1981/82 年 (37 年前になる) に GIC 社製の AMS が納入されたときには、装置は全手動で、コンピューターは納入されなかった。また、性能試験の試料さえ提供されなかった。昔のことを思い出すとき、隔世の感を感じるところである。

引用文献

- Alvarez, L.W. and Cornog, R. (1939) Phys. Rev., 56, 379.
- Bennett, C.L., Beukens, R.P., Clover, M.R., Gove, H.E., Libbert, R.B., Litherland, A.E., Purser, K.H. and Sondheim, W.E. (1977) Radiocarbon dating using electrostatic accelerators: negative ions provide the key. Science, 198, 508-510.
- Furukawa, M., Nakai, N. and Nakano, E. (1881) The research project at Nagoya University. Proceedings of Symposium on Accelerator Mass Spectrometry, Argonne National Laboratory, May 11-13, 448-449.
- Guo Zhiyu, Liu Kexin, Yuan Sixun and Wu Xiaohong (2006) PKUAMS and the Xia-Shang-Zhou chronology project: Progress and some results. Proceedings of the First East Asian Symposium on Accelerator Mass Spectrometry, 26-27 January, University of Tsukuba, 50-56.
- Ionplus AG (2017) Scientific instruments for radiocarbon dating and accelerator mass spectrometry, A booklet for potential customer prepared by Ionplus AG, Switzerland, 22.
- Jiang Shan, He Ming, Songsheng Jiang, Shaoyong Wu, Yean Dong, Bingfan Yang, Yiwen Bao, Jiyu Guo, Zhichang Li, Zhanxia Zhao, Shengdong Zhang and Jingru Guo (2000) Development of AMS measurements and applications at the CIAE. Nucl. Instrum. And Methods in Phys. Res. B, 172, 87-90.
- Jiang Shan, He Ming, Bao Yiwe, Su Shengyong, You Qubo, Li Kangning, Shen Hongtao, Hu Yueming, Zhao Qingzhang, Pang Yijun, Cui Baoqun, Huang Qinghua and Fu Shinian (2017) How to develop the AMS machine techniques in the near future. Abstract book for the 7th East Asia accelerator mass spectrometry Symposium (EA-AMS7), held at Guangxi Normal University, Guilin, China, November 20-25, 34.
- Joonkon Kim, Jonghan Song, John A. Eliades, Byungyong Yu, Jinho Song, Jaeyeoul Kim (2017) Report on the first 4 years of maintenance of the HVE 6 MV Tandatron accelerator at KIST. Abstract book for the 7th East Asia accelerator mass spectrometry Symposium (EA-AMS7), held at Guangxi Normal University, Guilin, China, November 20-25, 43.

- Kim, J.C., Youn, M., Kim, I.C., Park, J.H., Song, Y.M., Kang, J. and Choi, H.R. (2004) Status report on the Seoul National University AMS facility. Nucl. Instrum & Methods in Phys. Res., B223-224, 44-49.
- 小林紘一 (2016) MALT- AMS の初期歴史 — 多核種 AMS の開発研究. 第 18 回 AMS シンポジウム報告集、2016 年 3 月 4-5 日、東京大学、2-6.
- Li Hong-chun, Kang Su-Chen and Chou Chun-Yen (2017) Progress report of the UTNAMS lab since EA-AMS-6. Abstract book for the 7th East Asia accelerator mass spectrometry Symposium (EA-AMS7), held at Guangxi Normal University, Guilin, China, November 20-25, 42.
- Liu Kexin, Xingfang Ding, Dongpo Fu, Yan Pan, Xiaohong Wu, Zhiyu Guo and Liping Zhou (2007) A new compact AS system at Peking University. Nucl. Instrum. and Methods in Physics Res., B259, 23-26.
- Muller, R.A. (1977) Radioisotope dating with a cyclotron. Science, 196, 489-494.
- Nagashima, Y., Seki, R., Takahashi, T. and Arai, D. (2000) Status of the ³⁶Cl AMS system at the University of Tsukuba. Nucl. Instrum. and Methods in Physics Res., B172, 129-133.
- Nakamura, M., Tazawa, Y., Matsumoto, H., Hirose, M., Ogino, K. and Nakanishi, T. (2004) Progress in AMS research at Kyoto University. Nucl. Instrum. and Methods in Physics Res., B223-224, 62-66.
- 中村俊夫 (2011) 名古屋大学における ¹⁴C-AMS 研究の黎明期 (1980-1990) . 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, XXII, 23-36.
- 中村俊夫 (2013) 宇宙線生成放射性同位体による年代測定：加速器質量分析 (AMS) の利用. 号外地球, No.62, 特集「第四紀研究における年代測定法の新展開：最近 10 年間の進展 (II) 放射線損傷年代・放射年代」, 178-184.
- Nelson, D.E., Korteling, R.G. and Stott, W.R. (1977) Carbon-14: direct detection at natural concentrations. Science, 198, 507-508.
- Oeschger, H., Houtermans, J., loosli, H. and Wahlen, M. (1970) 12th Nobel Symposium on Radiocarbon Variations and absolute Chronology, edited by I. U. Ohsen, 487.
- Purser, K. H. (1977) U. S. Patent 4,037,100, Filed March 1, 1976; Issued July 19, 1977.
- Sundquist, Mark, Stewart P.H.T. Freeman, Richard Shanks, Cameron McIntyre, Gabriel Gauber, Pierre Salou, Kenneth Kearney, Thilo Hauser, Eric Alderson, Robert Bosch (2017) The end of radiocarbon AMS? The design and performance of a new instrument using positive ion mass spectrometry (PIMS). Abstract book for the 7th East Asia accelerator mass spectrometry Symposium (EA-AMS7), held at Guangxi Normal University, Guilin, China, November 20-25, 46.
- Wan Hong, Jung Hun Park, Ki Suk Sung, Hyung Joo Woo, Jun Kon Kim, Han Woo Choi, Gi Dong Kim (2010) A new 1MV AMS facility at KIGAM. Radiocarbon, Vol 52, Nr 2-3, 2010, 243-251.
- 吉田邦夫 (2016) 東京大学 AMS 年代測定の 30 年. 第 18 回 AMS シンポジウム報告集、2016 年 3 月 4-5 日、東京大学、42-44.
- Zhou, W., Zhao, X., Xuefeng, L., Lin, L., Zhengkun, W., Peng, C., Wengnian, Z. and Chunhai, H. (2006) The 3MV multi-element AMS in Xi'an, China: unique features and preliminary tests. Radiocarbon, 48(2) 285-293.

1.4 AMS 研究のこれから Future prospect of AMS study

松崎浩之

Hiroyuki Matsuzaki

東京大学総合研究博物館タンデム加速器研究施設
MALT (MALT, The University of Tokyo)

**Correspondence to: Hiroyuki Matsuzaki; E-mail: hmatsu@um.u-tokyo.ac.jp*

Abstract

AMS (Accelerator Mass Spectrometry) is extremely sensitive analytical method for rare isotopes. Its high sensitivity attributes to high ion energy which makes possible to use “ion – materials interaction”. AMS also has a character of “mass spectrometry with high mass resolution”. Recently new techniques which stand on the fundamental atomic physics are proposed. On the other hand, AMS becoming decisive tool for the elucidation of space-earth-human history in various time scales.

Keywords: AMS, 同重体分離, 原子物理, PIMS, 人為起源核種

1. はじめに-AMS はなぜ高感度なのか

加速器質量分析(AMS)は、静電加速器によりイオンを MeV/n 程度まで加速した上で質量分析を行う。質量分析は、静電場と磁場を組み合わせることによって、イオンの質量電荷比(M/q)を分ける。この原理だと同重体イオンや同重分子イオンは分かれにくい。イオンが加速されて MeV/n 程度のエネルギーを持つ場合、これを物質と相互作用させることができる。例えば、薄いガス層や膜を通すと分子イオンは壊れてしまうので、その後の質量分析で容易に分けられる。同重体は、原子核の電荷によって、エネルギー損失が異なるから、これをガス検出器などで信号として取り出してやれば分けることができる。以上は、教科書的な説明であるが、実際に核種を検出する仕方は、核種によって大きく異なる [1]。例えば、 ^{14}C の場合は、負イオン源を使えば、同重体 ^{14}N のイオン化が抑制される。また、タンデム加速器の荷電変換において分子イオンが壊され、同重分子イオンの干渉が低減される。従って、最終検出器にはほぼ ^{14}C がクリアな状況で到達する。つまりバックグラウンドが皆無なのである。従って、最終検出器では粒子が来たことだけが分かれば良い、という状況である。 ^{10}Be の場合は、最終検出器(ガスチャンバー)にて、妨害同重体 ^{10}B とのガス中でのエネルギー損失の違いを利用して分離する。表1は、代表的な AMS 対象核種に対して、どのような原理で妨害成分を除去しているかをまとめたものである。

しかし AMS が高感度である理由は、高いエネルギーを利用した物質との相互作用の利用だけでは無いように思われる。例えば、 ^{129}I の場合は同重体の干渉はほとんど無い。従って、最終検出器では、シビアな同重体干渉を分ける必要がない。にもかかわらず、加速器を用いない質量分析でのバ

表 1. AMS 測定対象核種検出のために使われる原理・装置

検出対象核種	同重体干渉	分別原理	装置
^{10}Be	^{10}B	エネルギー損失	ガスカウンター
^{14}C	^{14}N	電子親和力	負イオン源
	$^{12}\text{CH}_2$, ^{13}CH などの分子イオン	分子イオン分解	荷電変換装置
^{26}Al	^{26}Mg	電子親和力	負イオン源
^{36}Cl	^{36}S	媒体中の平均電荷 エネルギー損失	ガス充填型電磁石 ガスカウンター
^{129}I	^{129}Xe	電子親和力	負イオン源
	^{128}TeH など分子イオン	分子イオン分解	荷電変換装置

ックグラウンドは高く、AMS が数桁のアドバンテージを持っている。それは何故だろうか？

図 1 は、酸化ウランのターゲットから引き出したイオンビームのマススペクトルである。一方は、加速器の前で負イオンの状態で測定したもの、他方は、加速後の荷電変換された状態で測定したものである。明らかにスペクトルがスリムになっている。つまり、質量分解能が上がっているように見える。この理由としては、加速器の中にストリッパチャンネルという細い部分があって、一種のスリットの働きをしていることも考えられる。さらに荷電変換が行わ

れて分子イオンが壊れていることと、接線方向のみに加速されていることから、ビームが細くなっていることを考えると、加速後の分析電磁石を通過後は、さらにスペクトルはクリーンになっていくと考えられる。こうしてバックグラウンド自体が大きく低減している効果が小さくないと考えられる。

このように、AMS で何故そのパフォーマンスが得られているかを考えてみると、意外ときちんと理解していない現象が多いように思われる。そのようなところの基礎物理を考え直してみると、新しい可能性が生まれるのではないかとと思われる。

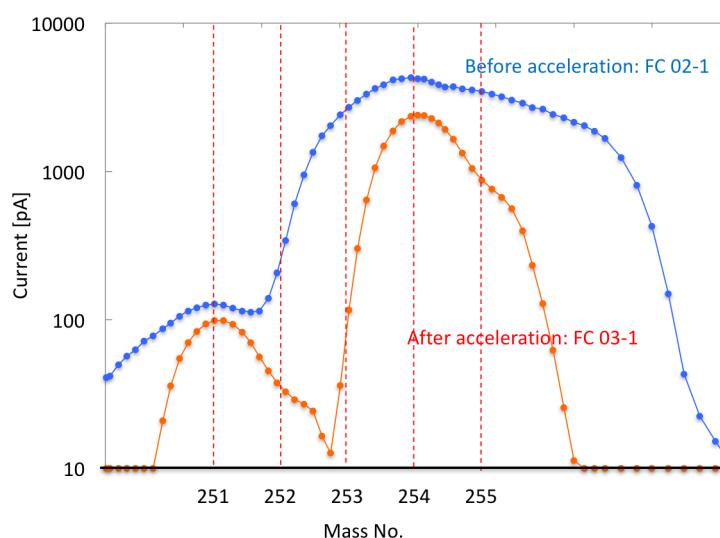


図 1. 酸化ウランターゲットからのイオンビームの加速前と加速後のマススペクトル

2. AMS の技術動向

2017 年 8 月にオタワで開催された AMS 国際会議 (AMS-14) では、基礎物理、特に原子物理のところから考え直して新しい技術を開発しようとしている発表がいくつかあったのが印象的であった。

まずは負イオンである。現在は Cs スパッターイオン源が一般的であるが、イオン化効率を決める重要なファクターに、Cs の電子供給能力が挙げられる。すなわち、Cs がイオン化寸前まで励起されていると、より電子を供給しやすくなり、イオン化効率が上がると考えられる。Cs スパッターの定常状態では、ターゲットの表面に Cs が沈着していると考えられているが、この表面の Cs にレーザーを当てることにより、励起状態を誘引すると良いのではないかと、という発表があり [2]、興味深いと思った。我々も日々のマシンタイムの中で、同じようなパラメーターを使っているのに、カレントが出たり出なかったりする経験をしている。これまでは、経験的な処方の方に頼っていたが、物理原理に立ち返って考えてみると、大きく改善するかもしれない。

我々はかつて、固体試料をプレスするカソードについて、いわゆる“tube length”(円筒状の穴の空いたカソードに粉末試料をプレスする場合の、試料の押し込み深さ)を変化させて、イオン化効率がどのように変化するかを調べた(図 2)。“tube length”を 1.5mm と従来よりも深くすると、カレントが 100 μ A に達し、さらに 2.0mm とすると、カレント持続時間が 70 分を超えた。イオン化効率は 15% に達する計算となった [3]。

また、近年では、 ^{36}Cl -AMS において、AgBr をバッキングしたカソードターゲットが硫黄(S)の低減に有効であるとされている [4]。これは、カソード(通常銅、アルミニウムなどの金属)と試料の境界面に Cs が当たらないようにする方策であり、すなわち、境界面へのスパッターでは、何故か S イオンが増加するようだ。

このように、負イオン化はその素過程がよく理解されておらず、開発の余地は大いにあると思われ

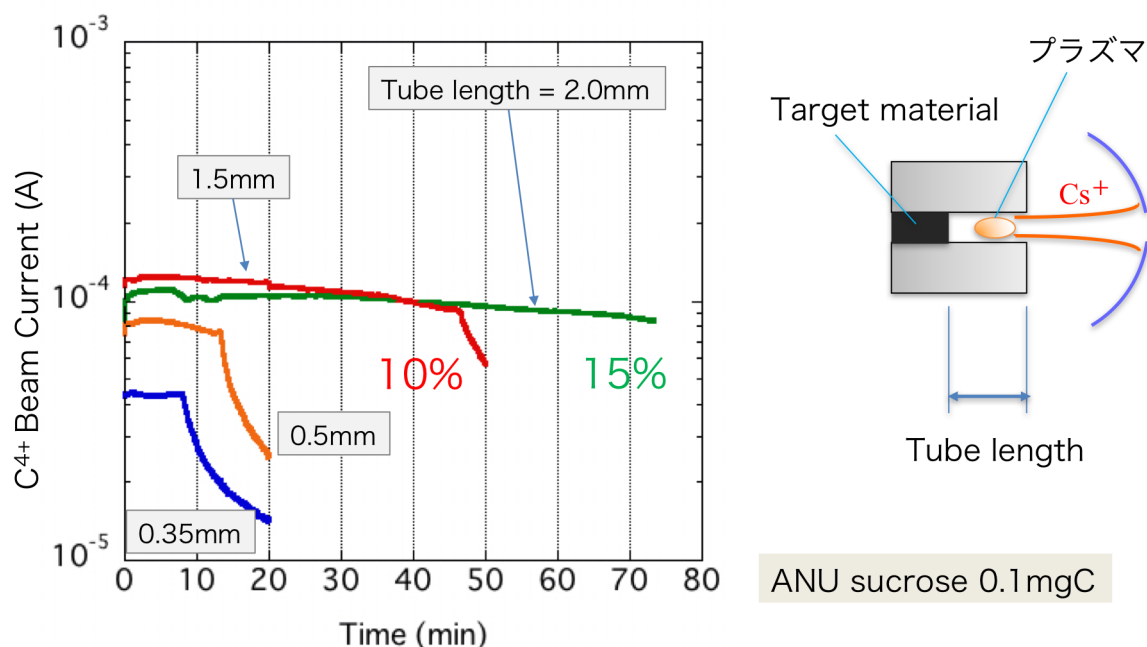


図 2. グラファイトターゲット (ANU sucrose 0.1mgC) のカレント持続性. その “tube length” の違いによる違い. グラフ中の%表示は、トータルのイオン化効率.

る。

また、AMS-14 では、負イオン状態で同重体を分別する、LPD (Laser Photo Detachment) や ISA (Ion Separator for Anion) などの実用化が進んでいた。これらの技術は、小型加速器での高感度な重イオン AMS への道を拓くものとなる。

さらに興味深いのが PIMS (Positive Ion Mass Spectrometry) であり、これは、 ^{14}C -AMS の新しい方法の提案である(図 3)。PIMS では、ECR イオン源で正イオン化する。これは、 CO_2 を直接イオン源に導入できるメリットがあるという。しかし本来、 ^{14}C は負イオンを使うため、 ^{14}N の干渉を避けることがポイントであった。そこで、PIMS では、加速した正イオンをイソブタンセルに導入する。そこで一部が負イオン化する。負イオンのみを引き出せば、ここで ^{14}N が落とせるということである。もはや加速器も無いシステムであるが、これは、 ^{14}C だから可能になったと思われる。他の核種にとっては、前節で述べたように、加速するメリットが大きい。PIMS で負イオン化のセルが使われているので、その後にタンデム型加速器を通すと、正イオンを使った AMS が可能になるのではないかと思う。

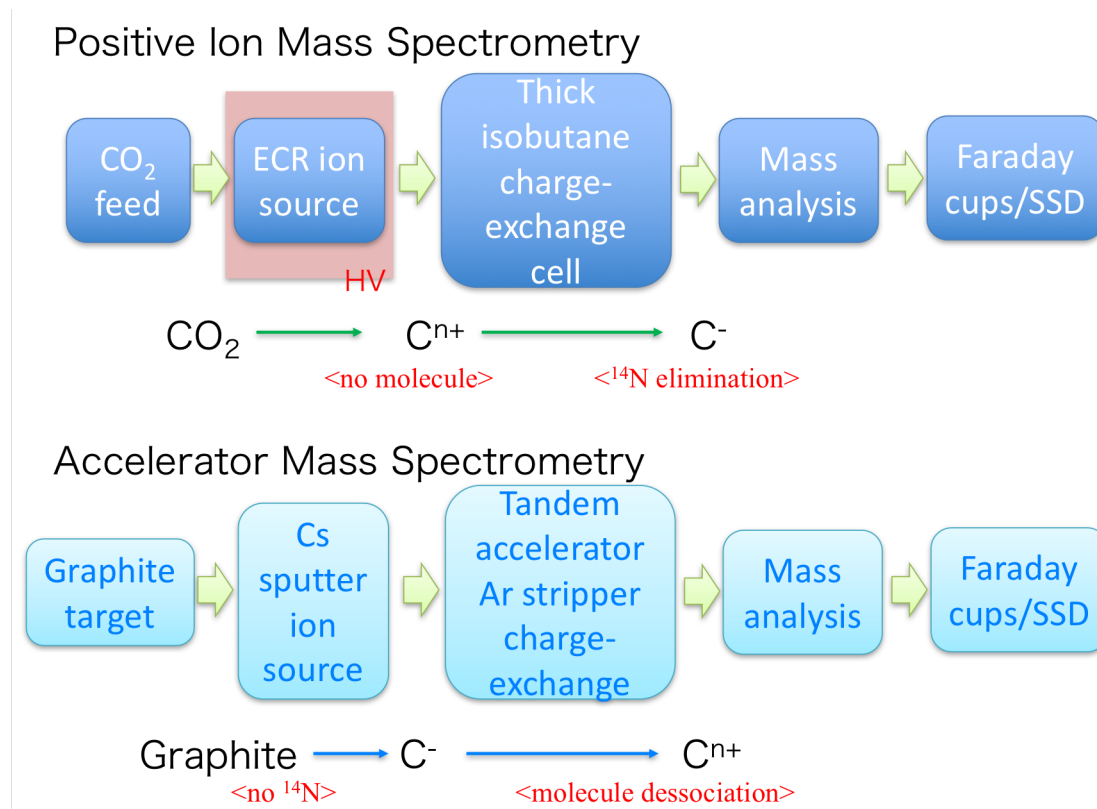


図 3. PIMS (Positive Ion Mass Spectrometry) と AMS (Accelerator Mass Spectrometry) との構成の比較。

3. 応用研究のトレンド

^{14}C -AMS については、年輪中に見出された 775 年のいわゆる「三宅イベント」の発見 [5] 以降、世界中で、そのような宇宙線の特異なイベント(急激な宇宙線強度変動を示す時期)を探そうとしているようである。そのようなイベントは、太陽物理的にも興味深いものであると同時に、正確な年代マ

ーカーになるため、年代学的にも極めて重要となる。しかし、そこでなされるのは、大量のサンプル処理システムと、安定した AMS 装置を組み合わせ、高品質なデータを大量生産することによって、いわば絨毯爆撃的にイベントを発見しようするものだ。

また近年、 ^{129}I や ^{236}U , ^{244}Pu 等の重い核種を用いた応用研究が目立った。これらの核種を測定できる施設が増え(特に ^{129}I)、これらの核種を使った研究が一つの研究領域になりつつあると言える。いずれも、人為起源核種であり、1950 年以降の近代における、環境影響評価研究、人為起源核種をトレーサーとして用いた新しい環境動態研究等が増えてきた。いったんこうした研究が始まると、試料処理技術の向上→より高精度・高感度測定への要望→装置の技術開発→新しい情報・新しい研究→...という良い循環に入っていくだろう。個人的には人為起源核種を使った研究については、まだまだ知られていない新しいアーカイブ試料があるように思う。

また、マンガングラスト中の ^{60}Fe の測定成功により、銀河宇宙内での太陽系の運動、といった新しい自然史観が拓けてきたように思う [6]。AMS でどこまで貢献できるかわからないが、夢のある研究領域だ。

AMS は、単なる環境トレーサーや年代測定としての利用にとどまらず、様々な時間スケールにおける、広く宇宙・地球環境史を紐解く重要なツールになりつつあると感じられる。

参考文献

- [1] 松崎浩之 (2007) 加速器質量分析の原理, 日本真空学会誌, Vol. 50, No.7, pp.467-474.
- [2] J. Vogel (2017) “The laser assisted sputter ion source” in AMS-14 conference, Ottawa.
- [3] Yokoyama, et al. (2010) “Developing ultra small-scale radiocarbon sample measurement at the University of Tokyo”, Radiocarbon, 52, 2-2, 310-318.
- [4] K.M. Wilcken, et al. (2010) “Improved ^{36}Cl AMS at 5MV”, NIM-B, 268, 748-751.
- [5] F. Miyake, et al. (2012) “A signature of cosmic-ray increase in AD774-775 from tree rings in Japan”, Nature, 486, 240-242.
- [6] A. Wallner, et al. (2016) “Recent near-Earth supernovae probed by global deposition of interstellar radioactive ^{60}Fe ”, Nature, 532, 69-72.

This is a blank page.

2. AMS 施設報告・技術開発

This is a blank page.

2.1 東大 MALT-AMS の現状 2017

2017 status report of MALT, The University of Tokyo

松崎浩之・徳山裕憲・土屋陽子・楠野葉瑠香・山道美和子・
吉田邦夫・堀内晶子・宮内信雄

Hiroyuki Matsuzaki, Hironori Tokuyama, Yoko S. Tsuchiya, Haruka Kusuno, Miwako Yamamichi,
Kunio Yoshida, Akiko Horiuchi, Nobuo Miyouchi

東京大学総合研究博物館タンデム加速器研究施設
MALT (MALT, The University of Tokyo)

**Correspondence to: Hiroyuki Matsuzaki; E-mail: hmatsu@um.u-tokyo.ac.jp*

Abstract

MALT (Micro Analysis Laboratory, Tandem accelerator), The University of Tokyo began its collaborating project program for scholars of other laboratories, institutions, and Universities since 1995. Total accelerator operation time had reached 110,213 hours at the end of the 2016 fiscal year. Totally 470 scientific projects had been adopted and 405 out of them are relating with AMS (Accelerator Mass Spectrometry). This year, we have not suffered from severe accidents at the time of the symposium.

Keywords: 東大 MALT; AMS; 共同利用; 加速器質量分析; 塩素 36

1. はじめに

東京大学 MALT (Micro Analysis Laboratory, Tandem accelerator) は 1995 年の共同利用開始以来、加速器質量分析 (AMS) および、核反応分析 (NRA) をはじめとする各種イオンビーム分析手法を多くの研究者に提供し、貢献して来た。2015 年 6 月 8 日に、加速器総運転時間 100,000 時間を達成した。また、これまでに採択された共同利用研究課題数は、470 課題に上り、そのうち AMS を利用した研究課題は 405 課題にのぼる (2017 年後期まで)。

2016 年度は、ペレットチェーンの破断、ビームダクト内のアインツェルレンズの不具合など、タンクをオープンしたり、加速管をパージしなければならない事態が多く起きたが、今年度は、これまでのところ大きなトラブルはない。今年度は、4 月-5 月に集中して学生実験を行い、6 月より通常のマシンタイムを行った。9/12-19 及び 10/02-12 に定期メンテナンスを行った。マシンタイムを中断するような大きな問題はなかったが、細かい不具合はいくつか生じている。停電後の SRS の不具合、一部ビームコース (ハードウェア) との通信の問題 (イオン源, BM01, BPM 等) がある。また、一部エアコンの更新 (イオン源・分析電磁石室) 等を行なった。なお、今年度累計加速器運転時間は、昨年 11 月 2 日から今年 10 月 31 日までで、5,792 時間となっている (今年度 4 月からの運転時間は 3027 時間)。

ただし、年が明けて 2018 年 1 月 24 日、 ^{129}I -AMS の立ち上げ最中に加速器系のメインブレーカーが突然壊れ、電源供給が止まった。ブレーカーの不具合であったが、交換部品が到着するまで 2 週間ほど加速器システムが止まり、マシンタイムとしては 3 週間ほど中断した。

2. 加速器運転状況

図1に現在のビームラインの状況を示す. 当初2台あったMC-SNICS イオン源の1つ(S2)は取り外し負イオンビームテストベンチに流用した. また, 分析電磁石後のマルチファラデーカップシステムでは, 程エネルギー側にカップを1台増設した.

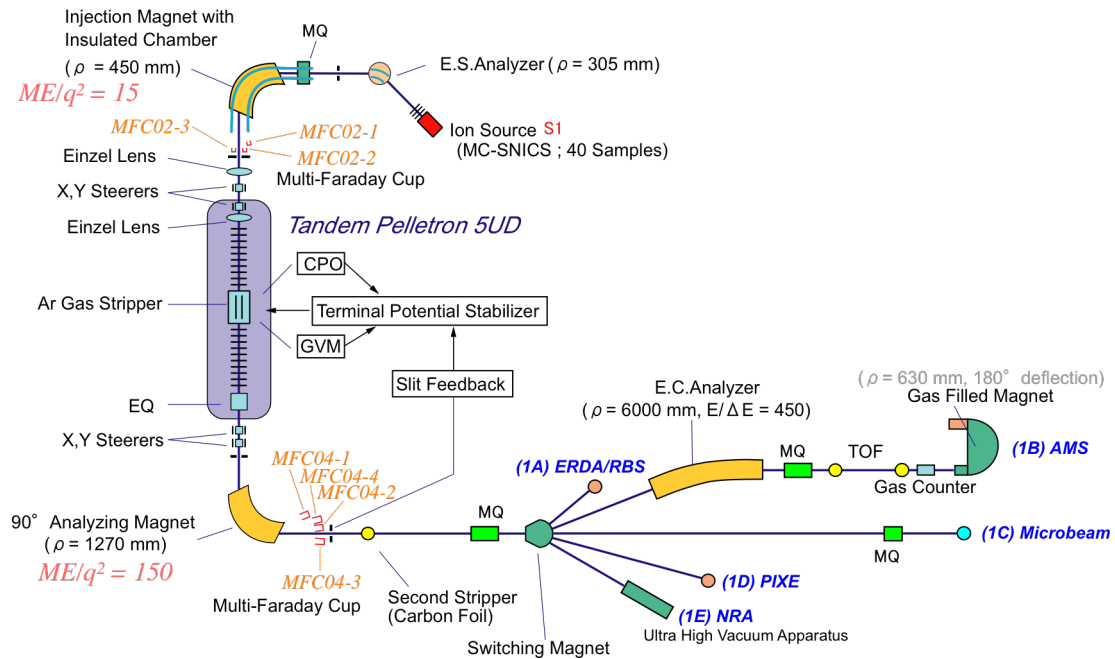


図1. MALT ビームライン

表1. MALT における 2017 年度の主なイベント・トラブル

月	イベント (2017年)	月	イベント (2017年)
1	S1イオン源Csフォーカスシステム取り外し		
2	S1イオン源セシウムオープン制御不能→電源交換		
3	S1イオン源アイオナイザーリード線断線→交換		
	Chain#2下部インダクターの位置調整	9	エクストラクターハウジング分解・固定
4	タンク底CPS電源の導線を調整		停電復帰時, 1階のMCCリレーが異音を発生, 謎の部品(振動止め?)を付けたら直った.
	加速管の抵抗体の緩みを矯正		停電後, 加速器タンク前後のゲート弁の調子が悪い.
	S1イオン源カソードとアイオナイザーが導通		
	S1イオン源Extractorが周期的に落ちる		
	S1イオン源カソードとアイオナイザーが導通		
	S1イオン源Extractorが周期的に落ちる→電源交換		
5	タンク下圧縮空気のチューブが破損・修理	10	ロータリーポンプオイル・館内冷却水フィルター交換
	セシウムフィードパイプのクリーニング		イオン源室エアコン交換
	イオン源室エアコン故障		振分け電磁石冷却水, 水漏れ.
6	S1イオン源カソードとアイオナイザーが導通		停電復帰時, 5階のMCCリレーが異音を発生, 謎の部品(振動止め?)を付けたら直った.
	S1イオン源冷媒のポンプから液漏れ・交換		イオン源ロータリーポンプ不調→11月交換.
			Be-AMS測定時に, m/k, transmissionが急に落ちる事象が発生し始める.

表1に, 2017年度の主なイベント・トラブルを示す. いずれも対策はそれほど難しいものはなかった. 一例を紹介する. 2016年度末, 加速器のチャージング電流が, Chain 1とChain 2とで大きく乖

離している状況が観測された(図 2a)2017 年 4 月の定期点検でこの原因を調べたところ、ペレットチェーンのインダクター電極の位置が、Chain 1 と Chain 2 とでずれていた。具体的には、Chain 2 の電極がチェーンから大きく離れていたため、これを是正したところ、チャージングのバランスは大きく改善した(図 2b)。一方、Chain 2 は 2016 年 7 月に新品に交換したばかりであるが、Chain 1 は長年使っているため、ペレット間距離が広がってきている。早い時期に交換が必要であると認識している。

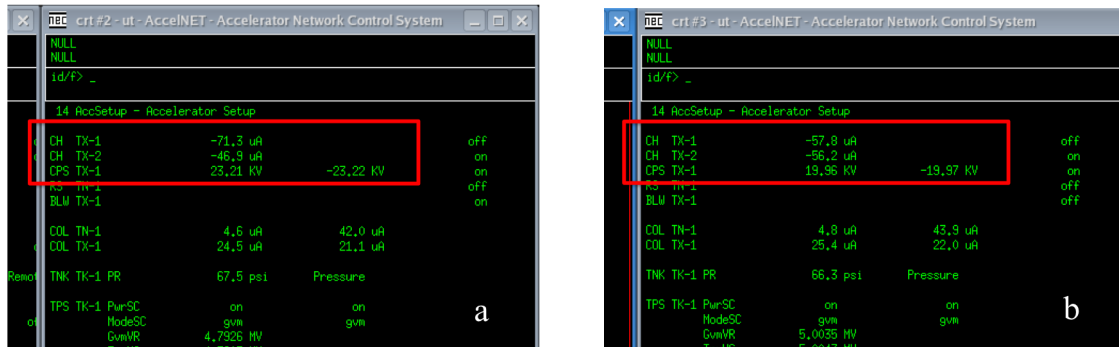


図 2. Chain のチャージの乗り (インダクター電極改善前 (a)と改善後 (b)).

3. AMS のパフォーマンス

近年、原子炉の冷却水中の ^{36}Cl 濃度の評価や、グリーンランド等の極地のアイスコア中の ^{36}Cl 濃度測定などから、 ^{36}Cl -AMS を定期的に行なっている。従来ガス・フィルド・マグネットのトランスミッションが悪く、また不安定であったが、入射系のオプティクスを全面的に見直したところ、劇的に改善した。その結果として、カウントレートも上がり、繰り返し精度も向上した。バックグラウンドは硫黄の影響により、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} \sim 1 \cdot 10^{-14}$ に止まるものの、実用的には十分なパフォーマンスを示す。図 3 は、 ^{36}Cl -AMS における検量線(a)と標準試料の繰り返し測定におけるバラツキ(b)である。

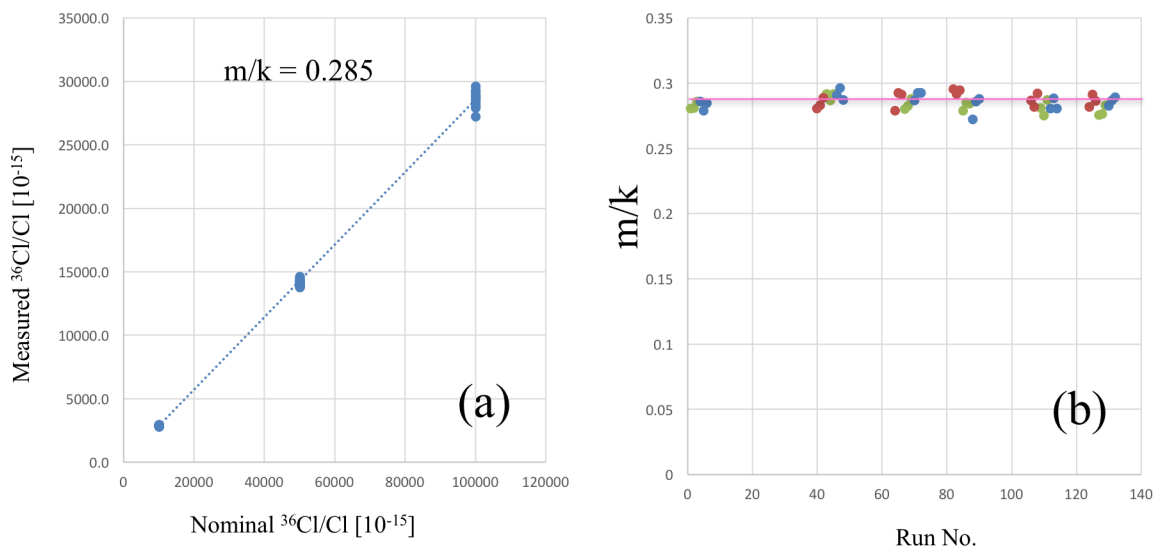


図 3. ^{36}Cl -AMS における検量線 (a) と標準試料の繰り返し測定におけるバラツキ (b). 繰り返し精度は 2.0%となっている。

一方で, ^{10}Be -AMS については, トランスミッション, 繰り返し精度ともにあまり良くないことが多い. チューニングパラメーターの抜本的な見直しが必要かもしれない. また, 負イオンの生成についても良い時と悪い時があり, イオン源の条件を掴みきれていないところが多い. 負イオンに関しては, ^{26}Al -AMS がより深刻であり, カレントが思うように出なくて中止されたマシンタイムも多い. 最後に, MALT における AMS のパフォーマンスを表 2 にまとめておく.

表 2. MALT における最新の AMS パフォーマンス

	^{14}C -AMS	^{10}Be -AMS	^{26}Al -AMS	^{36}Cl -AMS	^{129}I -AMS
Target	Graphite	BeO	Al_2O_3	AgCl	AgI
Typical Current	15 μA (MFC02-1, ^{12}C)	5 μA (MFC02-2, $^9\text{Be}^{16}\text{O}$)	300 nA (MFC02-3, ^{27}Al)	20 μA (MFC02-2, ^{35}Cl)	5 μA (MFC02-2, ^{127}I)
Injection	Sequential Injection	Sequential Injection	Sequential Injection	Sequential Injection	Sequential Injection
cycle sequence	1ms for ^{13}C 100ms for ^{14}C	1ms for $^9\text{Be}^{16}\text{O}$ 100ms for $^{10}\text{Be}^{16}\text{O}$	1ms for ^{27}Al 100ms for ^{26}Al	100ms for ^{36}Cl 1ms for ^{37}Cl	1ms for ^{127}I 100ms for ^{129}I
Terminal Voltage	4.8 MV	4.8 MV	4.3 MV	5.0 MV	3.48 MV
Stable Isotope Measurements	$^{12}\text{C}^{4+}$ from ^{12}CH (MFC04-1) * $^{13}\text{C}^{4+}$ (MFC04-2) $^{13}\text{C}^{4+}$ from ^{13}CH (MFC04-4) *	$^9\text{Be}^{3+}$ (MFC04-1) $^{17}\text{O}^{3+}$ (MFC04-3) **	$^{27}\text{Al}^{3+}$ (MFC04-3)	$^{35}\text{Cl}^{6+}$ (MFC04-2) $^{37}\text{Cl}^{6+}$ (MFC04-3)	$^{127}\text{I}^{5+}$ (MFC04-2)
Rare Isotope Detection	$^{14}\text{C}^{4+}$ (Havar + SSD)	$^{10}\text{Be}^{3+}$ (Gas Counter)	$^{26}\text{Al}^{3+}$ (Gas Counter)	$^{36}\text{Cl}^{6+}$ (Gas filled Magnet + Gas Counter)	$^{129}\text{I}^{5+}$ (Gas Counter)
count rate	100 cps (Modern carbon)	200 cps ($^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be} \sim 3 \times 10^{-11}$)	15 cps ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al} \sim 3 \times 10^{-11}$)	3 cps ($^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl} \sim 1 \times 10^{-11}$)	10 cps ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I} \sim 1 \times 10^{-11}$)
Background	$^{14}\text{C}/^{12}\text{C} < 3 \times 10^{-16}$	$^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be} < 1 \times 10^{-14}$	$^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al} < 1 \times 10^{-16}$	$^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl} < 1 \times 10^{-14}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I} < 2 \times 10^{-14}$ ***
Typical Precision	0.50%	0.5 ~ 3 % (due to statistics)	1 ~ 3 % (due to counting statistics)	2%	1%
Number of measured targets: average of 2014-2016	unknown: 190/yr standard: 40/yr	unknown: 975/yr standard: 180/yr	unknown: 230/yr standard: 60/yr	***	unknown: 975/yr standard: 180/yr
* $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ is estimated from molecular ion origin species ($^{13}\text{CH} \rightarrow ^{13}\text{C}$, $^{12}\text{CH} \rightarrow ^{12}\text{C}$) ** Amount of ^{10}Be can be also counted out by the current of accompanied $^{17}\text{O}^{3+}$ *** Before 2016, number of measured targets was quite few. Recently the ^{36}Cl -AMS has greatly increased. In 2017 it amounted 30 for standard and 90 for unknown. Actual machine background should be significantly lower than this value.					

2.2 名古屋大学タンデトロン AMS システムの現状 (2017 年度) Status and Application of AMS System at Nagoya University (2017)

中村俊夫^{1*}・南 雅代¹・増田公明¹・小田寛貴¹・池田晃子¹・山根雅子・栗田直幸¹・窪田 薫¹・
西田真砂美¹・藤沢純平²・方 雨婷²・徳丸 誠²・木田梨沙子³・酢屋徳啓⁴・北川浩之¹
Toshio Nakamura^{1*}, Masayo Minami¹, Kimiaki Masuda¹, Hirotaka Oda¹, Akiko Ikeda¹, Masako Yamane¹,
Naoyuki Kurita¹, Kaoru Kubota¹, Masami Nishida¹, Junpei Fujisawa², Fang Yuting², Makoto Tokumaru²,
Risako Kida³, Tokunori Suya⁴, and Hiroyuki Kitagawa¹

¹名古屋大学宇宙地球環境研究所、²名古屋大学大学院環境学研究科、³名古屋大学理学部、⁴放射線
医学総合研究所 (¹Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University, ²Graduate School
for Environmental Studies, Nagoya University, ³School of Science, Nagoya University, ⁴National Institute for
Radiological Sciences)

*Correspondence to: Toshio Nakamura; E-mail:nakamura@nendai.nagoya-u.ac.jp

Abstract

An AMS system (Model 4130-AMS) dedicated to ¹⁴C measurements, built by High Voltage Engineering (HVE), B.V., the Netherlands, was delivered to Nagoya University in 1996/97. Acceptance tests of its performance on carbon-isotope-ratio measurements were completed in January of 1999, and routine measurements began in mid-2000. The total number of targets measured by the end of 2017 is 25,287. We briefly describe the maintenance processes of the AMS system in the year of 2017.

The Tandetron AMS system at Nagoya University has encountered several problems in 2017. They are; (1) two big sparks seriously damaged the solid state RF driver for the high voltage generation, and the AMS system could not supply the high voltage of 2.5 MV used for ¹⁴C measurements. We replaced a damaged coil at the final part of the high-voltage power supply unit with a new coil; (2) a power supply unit for loading electrical current to correctly adjust the current for the recombinator magnet was in trouble. A resistance unit located at the end of current supply circuit was burnt out. We replaced it to a new one; (3) after a high-voltage spark, we could not apply high voltage to the accelerator. A control circuit board for supplying high voltage was checked and it was found out that the electrical board B-5-41-205-0001 was out of work. We replace the board to one repaired previously. We first checked all the parameter values of the power supplies to the AMS system, but we could not find any changes from their nominal values. We finally concluded that something wrong has happened inside the accelerator tank, and decided to open the tank after 5 years of previously opening the tank. Owing to these problems, we can process only 900 graphite targets in 2017.

Keywords: accelerator mass spectrometry, radiocarbon, high voltage control circuit, magnet power supply for high-resolution current adjustment

1. はじめに

名古屋大学には、1981-1982年にAMS専用機として、米国 General Ionex 社製の 3MV タンデトロンが導入された。この当時、General Ionex 社は 5 台の AMS 専用機を製造し、米国のアリゾナ大学、カナダのトロント大学、英国のオックスフォード大学、フランスの Gif-sur-Yvette 研究所、そして名

古屋大学にと、相次いで設置された。当時は、原子核物理学実験に使用されていた、加速電圧数ミリオンボルトの大型のタンデム加速器が、AMS 用に改造され利用されていた。1980 年代は、この 5 台の AMS 専用機が効率よく運用され、世界の ^{14}C データの大部分を生産していた。その後 1990 年代に入ると、高精度、高確度の改良型装置が出現し、測定精度 $\pm 20 \sim \pm 30$ 年の ^{14}C 年代測定が可能となった。名古屋大学では、1997 年 3 月に、新たに第 2 号機として、High Voltage Engineering (HVE) 社製の Tandetron AMS system (Model 4130-AMS) が設置された。この装置は、高性能の放射性炭素測定専用のシステムである。1999 年 1 月に $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 、 $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比測定の性能検収を終了し、2000 年度から学内共同利用を開始したものである(Nakamura et al. 2000)。現在では導入後 20 年近くを経過し、老朽化が目立っているが、 ^{14}C 測定の精度はそのまま維持されている。

1 号機の方では、2000 年から ^{10}Be の測定用に利用される計画が進められたが、当時、既に導入後 20 年近くが経過して老朽化が目立ち、高電圧が充分にあげることができず、分解能不足で、 ^{10}Be を識別することができなかった。ここ数年は、1 号機は停止の状態であり再利用の計画も無かったことから、加速器廃止が決まった。使用していた絶縁ガスの六フッ化硫黄 (SF_6) を業者に依頼して回収、分解を行った。その後、加速器タンクやビームラインを大気解放し、放射線測定の業者をお願いして、加速器を 20 年以上運転したことによる加速器部品の放射化、残留放射能が無いことを確認した。元来、 ^{10}Be 、 ^{14}C 、 ^{26}Al およびその同位体のみを測定することになっており、使用最大電圧 2.0 MV では、これらの同位体を加速して加速器を構成する材料物質と衝突させても核反応は発生しない。この事が、第 3 者である外部業者により確認され、その確認の報告書を添えて、1 号機の使用廃止の手続きを行った。この結果、原子力規制委員会から、改めて、2016 年 5 月 23 日付けの、1 号機の記載を削除した「放射性同位元素等使用承認証」が配布された。

名古屋大学の 2 号機もまた、導入以来 20 年を経過しており、老朽化が進んでいる。昨年来報告してきたように、装置のパーツの故障が多発し、応用研究を十分に進めることができていないのが現状である。ここでは、2017 年における Tandetron AMS 装置の修理と運転の状況を報告する。

2. 2017 年の装置の運転状況の概要

2016 年には、試料調製装置などの移設による混乱から、 ^{14}C 測定は停滞した。特に、2015 年末から 2016 年にかけての、加速器高電圧の制御システムの不安定が重なり、 ^{14}C 測定実験はほとんどはかどらなかった(中村ほか 2017)。2017 年になって、名古屋大学 AMS ^{14}C 測定グループの活動は平常に戻ってきた。2016 年の測定数 466 個から 2017 年は 900 個と増加している。表 1 に、過去 19 年間のターゲット測定数と測定時間を示す。1999 年から 2017 年までに、年ごとに測定したターゲット数の累積数を図 1 に、利用を開始した 1999 年から 2017 年までの毎年に測定したターゲット数の変動を図 2 に示す。

表 1 年間のターゲット測定数と測定時間 (1999 年の測定開始から 2017/12/31 まで)

項目 年	測定ターゲット (個)			測定時間 (時間)	
	年間	月平均	積算数	年間	月平均
1999	330	28	330	352	29
2000	1,430	119	1,760	2,234	186
2001	2,077	173	3,837	3,161	263
2002	1,003	84	4,840	1,545	129
2003	1,979	165	6,819	3,219	268
2004	1,679	140	8,498	2,837	239
2005	1,771	148	10,269	3,456	288

2006	1,115	159	11,384	1,584	264
2007*	1,339	134 ¹⁾	12,723	2,136	214 ¹⁾
2008*	866	144 ²⁾	13,589	1,488	248 ²⁾
2009	1,300	186 ³⁾	14,889	2,470	350 ³⁾
2010	1,701	155 ⁴⁾	16,590	3,027	279 ⁴⁾
2011	1,449	140 ⁵⁾	18,039	2,856	286 ⁵⁾
2012	1,634	163 ⁵⁾	19,673	3,204	320 ⁵⁾
2013	1,351	169 ⁶⁾	21,024	2,795	349 ⁶⁾
2014	1,741	145 ⁷⁾	22,765	3,571	298 ⁷⁾
2015	1,156	101 ⁵⁾	23,921	2,468	247 ⁵⁾
2016	466	93 ⁸⁾	24,387	974	195 ⁸⁾
2017	900	100	25,287	2,169	421 ⁹⁾

1) 耐震工事（実質的には2007/11/1-2008/06/20）の間は、年代測定装置は停止した。

2) 有効使用月：6 ヶ月

3) 有効使用月：7 ヶ月

4) 有効使用月：11 ヶ月

5) 有効使用月：10 ヶ月

6) 有効使用月：8 ヶ月

7) 有効使用月：12 ヶ月

8) 有効使用月：5 ヶ月

9) 有効使用月：9 ヶ月

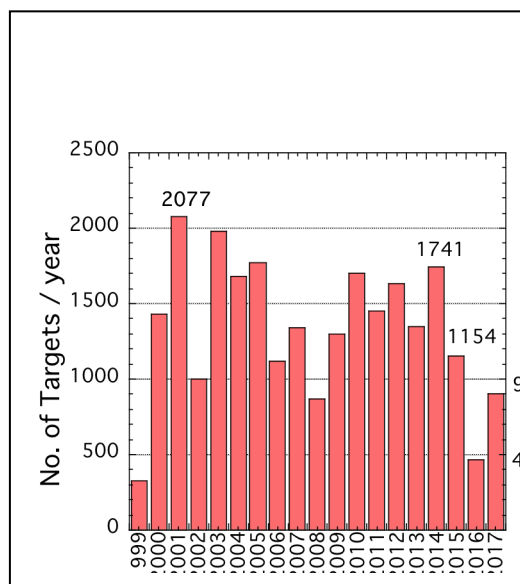


図1 年ごとのターゲット測定数(1999-2017)

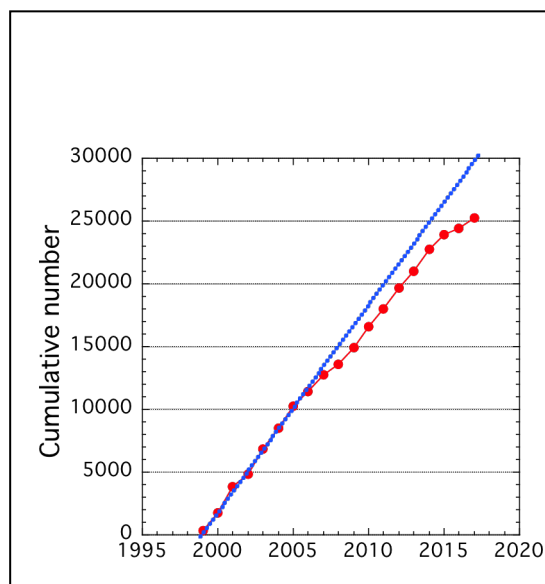


図2 測定したターゲットの積算数

(2017年12月末までで25,287個)

2017年に発生したタンデトロン分析計の主な不具合を以下に列挙する。

(1) 大音響の高電圧スパークが2回発生して、高電圧発生回路が故障した（2017年1月）。

2月に 高周波交流電圧出力トランスを交換し、更に回路の調整を行った。

(2) イオン入射部（加速器よりも上流側）の電磁石に微調整用に流す弱い電流を供給する電源が故障して、出力の抵抗が焦げてしまった。破損した抵抗を交換し再調整を行った（2017年4月）。

(3) 大音響の高電圧スパークが発生。その後は、加速器の高電圧が全く付加できなくなった。点検の結果、高電圧の制御回路 (Board:B-5-41-205-0001) の不具合と判明し、予備品と交換して復旧した（2017年7～8月）。

これらの不具合により、図3に示すように、2017年には、タンデトロン AMS システムを十分に稼働させることができなかった。

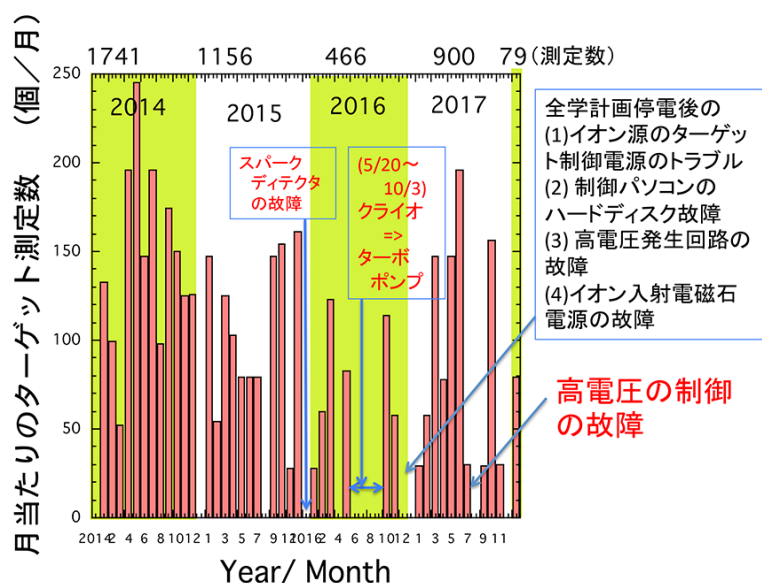


図3 2017年のさまざまな故障の発生による測定ターゲット数の減少

3. まとめ

名古屋大学 Tandetron AMS system による ^{14}C 年代測定では、約5千年前よりも若い試料について、ほぼ定常的に $\pm 20 \sim \pm 30$ 年の誤差(1標準偏差)で年代測定が可能である (Nakamura et al. 2004 ; 2007) ため、暦年代との比較が必然とされる文化財科学や考古学関連のさまざまな資料の年代測定についての利用が期待されている (名古屋大学加速器質量分析計業績報告書、1988~2016)。また、試料調製を含めた AMS ^{14}C 年代測定のバックグラウンドは、45,000~50,000BP に相当しており、一般の試料では、4 万年前の前半程度までの年代推定は可能である。引き続き、本システムの有効な利用を進めていく予定である。

謝辞 タンデトロン加速器質量分析計の改造や保守、さらに運転のための消耗品類の開発などにおいて、名古屋大学全学技術支援センターの教育・研究技術支援室(旧理学部 装置開発室)の皆様には大変お世話になっています。また、日本原子力研究開発機構むつ事務所の木下尚喜・甲 昭二の両氏には、同型の AMS system を使用していることから、さまざまな情報を互いに交換するなどして便宜を図って頂いています。故障の際には、株式会社エリコンのシステム部所属の菊池幸彦氏に多大なご支援を頂いています。ここに、記して関係者の皆様に深く感謝致します。

引用文献

- 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書 (1988~2016) 名古屋大学年代測定総合センター, (I ~ XXVII).
 名古屋大学年代測定研究 (2017) 名古屋大学宇宙地球研究所, vol. 1, 196p.
 Nakamura, T., E. Niu, H. Oda, A. Ikeda, M. Minami, H. Takahashi, M. Adachi, L. Pals, A. Gott dang, and N. Suya (2000) The HVEE Tandetron AMS system at Nagoya University. *Nucl. Instru. and Meth. in Phys. Res.*, B172, 52-57.
 Nakamura, Toshio, Etsuko Niu, Hirota ka Oda, Akiko Ikeda, Masayo Minami, Tomoko Ohta and Takefumi Oda (2004) High precision ^{14}C measurement with the HVEE Tandetron AMS system at Nagoya University. *Nucl. Instru. and Meth. in Phys. Res.* B223-224, 124-129.
 Nakamura, T., Miyahara, H., Masuda, K., Menjo, H., Kuwana, K., Kimura, K., Okuno, M., Minami, M., Oda, H., Rakowski, A., Ohta, T., Ikeda, A., and Niu, E. (2007) High precision ^{14}C measurements and wiggle-match dating of tree rings at Nagoya University, *NIM-B* 259, 408-413.

2.3 筑波大学 6 MV タンデム加速器質量分析装置による 多核種 AMS と応用研究の現状

Status Report of Multi-nuclide AMS and Applied Research by the 6 MV Tandem Accelerator Mass Spectrometry System at the University of Tsukuba

笹 公和^{1*}・高橋 努¹・松中哲也^{1,2}・細谷青児¹ 太田祐貴¹・

高野健太¹・落合悠太¹・本多真紀¹・末木啓介¹

Kimikazu Sasa^{1*}, Tsutomu Takahashi¹, Tetsuya Matsunaka^{1,2}, Seiji Hosoya¹, Yuki Ohta¹,
Kenta Takano¹, Yuta Ochiai¹, Maki Honda¹, Keisuke Sueki¹

¹ 筑波大学 AMS グループ (AMS, University of Tsukuba)

² 金沢大学 LLRL (LLRL, Kanazawa University)

**Correspondence to: Kimikazu Sasa; E-mail: ksasa@tac.tsukuba.ac.jp*

Abstract

The Tsukuba 6 MV AMS system for multi-nuclide measurements has been successfully established and operated at the University of Tsukuba since 2016. We improved detection conditions for each nuclides in the first year operation. Long-lived radionuclides of ^{10}Be , ^{14}C (graphite and CO_2), ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{41}Ca and ^{129}I have been detected with a five-anode ΔE -E gas ionization detector in the range of isotope ratios from 10^{-10} to 10^{-15} . The result of AMS performances achieved by the Tsukuba 6 MV AMS system is entirely satisfactory to measure cosmogenic nuclides for applications of earth environmental research field. The total number of samples was 1, 120 for AMS during the first year operation in 2016. In this paper, we report multi-nuclide AMS performances and applications for the Tsukuba 6 MV AMS system.

Keywords: AMS 施設現状; 6 MV タンデム加速器; 多核種AMS

1. はじめに

筑波大学 6 MV タンデム加速器は、東日本大震災で損壊した 12UD ペレトロンタンデム加速器の更新加速器として、2014 年 3 月に加速器本体が搬入された。加速器及び実験装置の開発と調整後に、2016 年 1 月に放射線発生装置の使用許可を得て、2016 年 3 月から利用実験を開始している[1]。AMS による一般的な測定対象核種である、 ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{129}I の検出に対応可能なシステム設計となっている。

2. 6 MV タンデム加速器質量分析装置の現状

2.1 装置概要

6 MV タンデム加速器質量分析装置[2]は、2 台の MC-SNICS と 6 MV タンデム加速器及び極微量核種検出ラインで構成されている。1 台の 5 枚電極型ガス ΔE -E 検出器により、全測定対象核種を検出可能である。6 MV タンデム加速器質量分析装置の概略を図 1 に示す。また、全景写真を図 2 に示す。

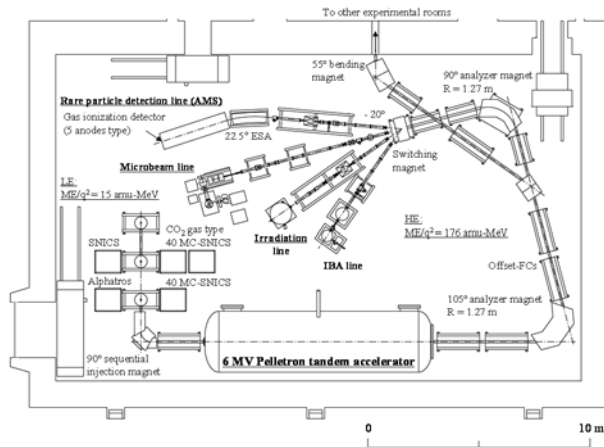


図 1 筑波大学 6 MV タンデム加速器
システムの概略図



図 2 筑波大学 6 MV タンデム加速器
システムの全景写真

2.2 装置運用上のトラブル

6 MV タンデム加速器質量分析装置が稼働を開始してから約 1 年半が経過した。大きなトラブルは発生していないが、以下に示す初期的ないくつかの問題が発生している。

- 荷電変換装置の故障
 ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{90}Sr -AMS で使用しているフォイルユニット(装填枚数 80 枚)について、位置ずれが生じている。フォイルの位置再現性がなく、ビーム透過率にも影響を与えている。また、荷電変換ガスについてもバルブの開閉制御に異常があり、ガス供給量の調整に支障を来している。2018 年 3 月の加速器整備期間に修理を予定している。
- 米国 NEC 製の AMS 制御プログラム(Accel-NET)の設定変更があり、再起動により修正を図った。
- 加速器入射側のビーム減衰器(減衰率 2%)における直線導入機ベローズ部分で真空漏れが発生して、低エネルギー側の加速管真空度が 10^{-7} Torr 後半まで悪化した。
- MC-SNICS イオン源の試料ディスクの回転異常による測定中止が、主に夜間に発生している。これまでに数回の測定が中断されている。

2.3 MC-SNICS イオン源レンズの改良

MC-SNICS のレンズ改良による、 CaF_3^- ビームの引き出し電流の増大を図っている。図 3 に示す収束レンズの改良により、 Cs^+ ビームをカソード上で 1 mm 以下に収束する計画である。

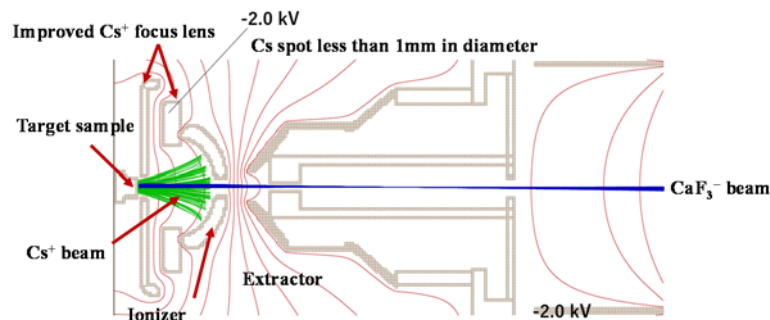


図 3 MC-SNICS の Cs^+ ビーム収束レンズの改良による CaF_3^- ビーム軌道計算

3. AMS による核種測定性能

^{14}C -AMS については、加速電圧 5.0 MV により荷電数 $q=4$ を用いて、加速エネルギー 25.0 MeV で測定を実施している。 ^{14}C -AMS の測定性能としては、0.2 % の測定精度と約 60,000 年のバックグラウンド (0.04 pMC) を達成している。 ^{10}Be の測定では、5 枚電極型ガス ΔE -E 検出器の入口にアブソーバーセルを設置して、妨害となる ^{10}B を除去する手法を開発した。 ^{10}BeO を 6.0 MV で加速して、20.3 MeV の $^{10}\text{Be}^{3+}$ を検出している。 ^{10}Be -AMS のバックグラウンドとしては、 $^{10}\text{Be}/\text{Be}$ 比で 1×10^{-15} を得ている。 ^{26}Al では、加速電圧 6.0 MV を使用しており、36.0 MeV の $^{26}\text{Al}^{5+}$ を検出している。 ^{26}Al -AMS のバックグラウンドは、 $^{26}\text{Al}/\text{Al}$ 比で 5×10^{-16} 以下となっている。 ^{36}Cl については、加速電圧 6.0 MV で荷電変換に炭素膜を用いて荷電数 $q=8$ として、54.0 MeV での AMS を実施している。AgBr を使用した試料装填方法などを開発して、妨害となる ^{36}S を除去しており、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比で 3×10^{-15} のバックグラウンドを達成している。

2016 年度は主に ^{41}Ca -AMS の開発を進展させた。 ^{41}Ca -AMS では、 CaF_2 試料から負分子イオンの $^{41}\text{CaF}_3^-$ を引き出している。加速電圧 6.0 MV により、これまでは 44.5 MeV の $^{41}\text{Ca}^{7+}$ を利用していた[3]。現在は荷電分布の割合が高い 32.5 MeV の $^{41}\text{Ca}^{5+}$ を検出しており、 $^{41}\text{Ca}/^{40}\text{Ca} = 3 \times 10^{-15}$ のバックグラウンドを得ている。図 4 にブランク試料と標準試料 $^{41}\text{Ca}/^{40}\text{Ca} - 1.16 \times 10^{-10}$ [4] を測定した 2 次元スペクトル図を示す。また、 ^{41}Ca -AMS の検量線を図 5 に示す。 ^{129}I -AMS では加速電圧 5.0 MV により $^{129}\text{I}^{5+}$ を検出して、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比で 10^{-13} から 10^{-14} レベルの測定が実施可能である。 ^{129}I -AMS の測定精度としては、 10^{-12} レベルで約 1% の評価を得ている。表 1 に筑波大学 6 MV タンデム加速器質量分析装置の AMS に関する測定性能を示す。

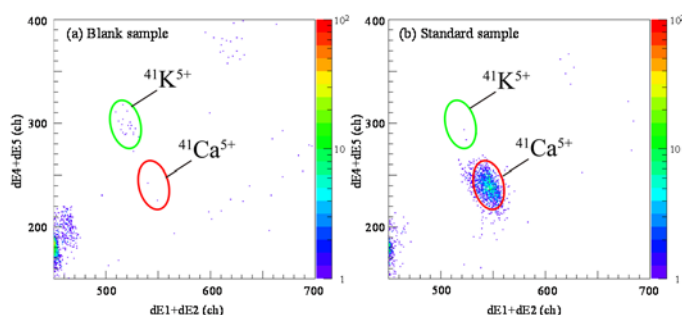


図 4 ^{41}Ca の 2 次元スペクトル図 (a) ブランク試料,
(b) 標準試料 $^{41}\text{Ca}/^{40}\text{Ca} = 1.16 \times 10^{-10}$

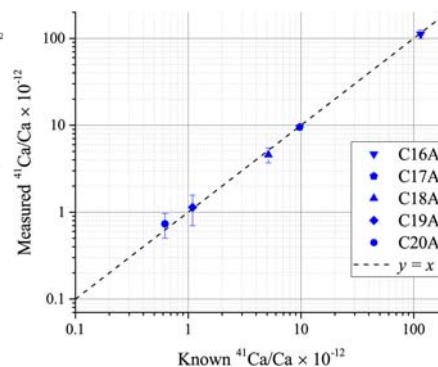


図 5 ^{41}Ca -AMS の検量線

表 1 筑波大学 6 MV タンデム加速器質量分析装置の核種測定性能

Isotopes	^{10}Be	^{14}C	^{26}Al	^{36}Cl	^{41}Ca	^{129}I
Half-life (yr)	1.36×10^6	5,730	7.17×10^5	3.01×10^5	1.03×10^5	1.57×10^7
Chemical form	BeO	Graphite, CO_2	Al_2O_3	AgCl	CaF_2	AgI
Injected ion	BeO^-	C^-	Al^-	Cl^-	CaF_3^-	I^-
Typical ion current (μA)	5 ($^9\text{BeO}^-$)	10 - 60 ($^{12}\text{C}^-$)	0.2 ($^{27}\text{Al}^-$)	10 ($^{35}\text{Cl}^-$)	0.5 ($^{40}\text{CaF}_3^-$)	5 ($^{127}\text{I}^-$)
Terminal Voltage (MV)	6.0	5.0	6.0	6.0	6.0	5.0
Detected ion (Stripper)	$^{10}\text{Be}^{3+}$ (gas)	$^{14}\text{C}^{4+}$ (gas)	$^{26}\text{Al}^{5+}$ (gas)	$^{36}\text{Cl}^{8+}$ (foil)	$^{41}\text{Ca}^{5+}$ (foil)	$^{129}\text{I}^{5+}$ (gas)
Beam Energy (MeV)	20.3	25.0	36.0	54.0	32.5	30.0
Transmission (%)	15	40	25	10	8	10
Precision (%)	2	0.2 (Graphite) 0.6 (CO_2)	2	2	3	1
Background (atom ratio)	$< 1 \times 10^{-15}$	$< 2 \times 10^{-16}$ (Graphite) $< 5 \times 10^{-15}$ (CO_2)	$< 5 \times 10^{-16}$	$< 3 \times 10^{-15}$	$< 3 \times 10^{-15}$	$< 1 \times 10^{-14}$

4. 6 MV タンデム加速器質量分析装置の利用状況

筑波大学 6 MV タンデム加速器は、2016 年 3 月より正式利用を開始した。2016 年度 (2016.03～2017.03)の総実験日数は 154 日となり、加速器運転時間は 1,867 時間であった。なお、ビーム加速時間 1,496 時間のうち、64.8%が AMS に利用された。

2016 年度における AMS 検出核種は、 ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{129}I の 6 核種である。研究課題は、学内課題 4 件及び学外課題 4 件 (炭素 14 自動処理装置 2 件を含む)を実施している。図 6 に示すように年間の測定試料数は 1,120 個であり、そのうち ^{129}I が全体の 43%、 ^{36}Cl が 16%の測定割合であった。 ^{14}C については、原子力施設周辺の年輪中 ^{14}C 測定と CO_2 ガスイオン源の試験測定を実施した。 ^{36}Cl では、福島第一原子力発電所 (FDNPP) 事故による土壌中の ^{36}Cl 測定や降水試料の ^{36}Cl 測定、中国天坑の表面照射年代測定、南極アイスコアを用いた宇宙線イベントの研究が実施された。 ^{41}Ca については、隕石の宇宙線照射年代研究が行われた。 ^{129}I では、FDNPP 事故の影響について土壌、降水、河川などの試料を用いた測定が行われた。また、日本海海洋循環トレーサー研究などが実施された。

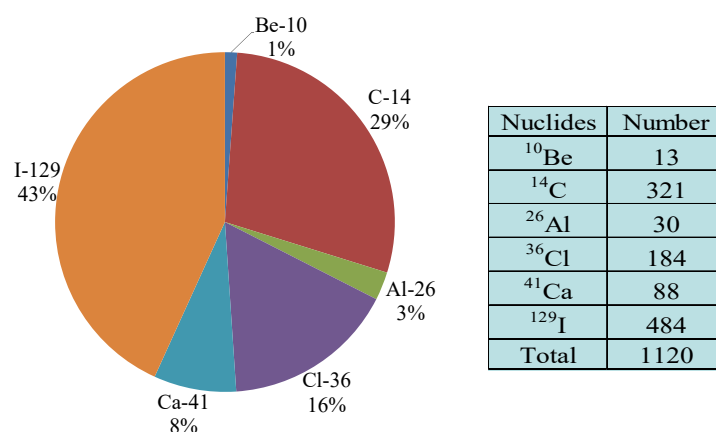


図 6 筑波大学 6 MV タンデム加速器質量分析装置による 2016 年度の測定試料数

5. まとめ

2016 年 3 月より稼働を開始した筑波大学 6 MV タンデム加速器では、AMS の利用研究がビーム時間の約 3 分の 2 を占めた。極微量核種である ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{129}I の測定が可能であり、2017 年度は ^{36}Cl と ^{129}I を中心に AMS による応用研究を実施している。また、現在は ^{90}Sr -AMS を開発中である。来年度以降は、 ^{129}I の標準試料の開発について、再開を予定している。その他、6 MV タンデム加速器質量分析装置の開発計画として、イオン源改良によるビーム引き出し電流の増強を検討している。将来計画では、ガス充てん型電磁石 (GFM) や Rb スパッタ負イオン源の導入による、 ^{135}Cs 等の新核種の高感度測定手法の開拓を進める予定である。

参考文献

- [1] 笹 公和, 日本加速器学会誌「加速器」, **14**(1) (2017) 5-14.
- [2] K. Sasa et al., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, **361** (2015) 124–128.
- [3] S. Hosoya et al., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, **406** (2017) 268–271.
- [4] K. Nishiizumi et al., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, **172** (2000) 399–403.

2.4 パレオ・ラボ Compact-AMS の現状(2017) Current status of the Compact AMS system at Paleo Labo Co., Ltd. (2017)

佐藤正教^{1*}・伊藤茂¹・廣田正史¹・山形秀樹²・

Z.Lomtatisze²・小林紘一¹・中村賢太郎²

Masanori SATO^{1*}, Shigeru ITOH¹, Masashi HIROTA¹, Hideki YAMAGATA²,

Zaur LOMTATISZE², Koichi KOBAYASHI¹, Kentaro NAKAMURA²

¹(株)パレオ・ラボ AMS 年代測定施設 (AMS Dating Facility, Paleo Labo Co., Ltd.)

²(株)パレオ・ラボ東海支店 (Tokai Branch, Paleo Labo Co., Ltd.)

*Correspondence to: Masanori SATO; E-mail: sato@paleolabo.jp

Abstract

In November 2004, Paleo Labo Co., Ltd., which conducts scientific researches in a variety of fields of archaeology, geology, installed a compact AMS system dedicated to ¹⁴C concentration measurement. We had measured 2,161 unknown samples and 944 standard and test samples through 2017. Since its installation, a total of 42,798 samples (31,748 unknown samples and 11,050 standard and test samples) have been measured until the end of 2017. The long term stability of measurement is demonstrated by the results obtained IAEA reference materials, measured routinely and regularly. In May 2014, an automated graphite preparation line was installed in AMS dating facility. This automated line consists of an elemental analyzer (EA Vario MICRO Cube, Elementar) and an automatic cryogenic CO₂ trapping system.

1. はじめに

2004 年 11 月に(株)パレオ・ラボが導入した米国 NEC 社製 Compact AMS は加速電圧 500kV の加速器を用いた ¹⁴C 濃度測定専用 の AMS である。分子イオン (¹³CH,¹²CH₂) の混入によるバックグラウンドの増加を防ぐため、荷電変換ガスストリッパの Ar ガス圧を高くすることにより、荷電変換後の電荷 q=1+ の測定でも約 6 万年(和光純薬、化学合成グラファイト)と十分なマシンバックグラウンドが得られている。装置が小型なため調整箇所は少なく、アインツェルレンズ 1 台、ステアラー 3 台、ESA1 台、電磁石 2 台のみである(図 1)。このように構成はシンプルであるが微妙な調整を行うことにより、数千年前の試料では ¹⁴C 年代で ±0.25~0.3% (±20~25

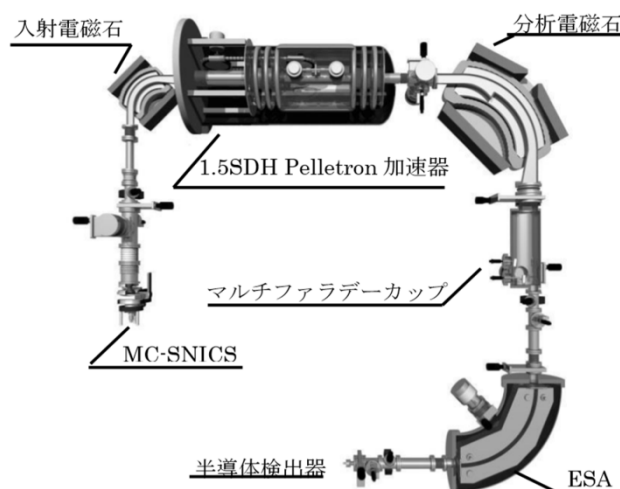


図 1 パレオ・ラボ Compact-AMS

年)、 $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比では $\pm 0.05\%$ 以下という非常に高精度の測定が可能である。

2. 運転・測定状況

2017 年は 11 月末までに 3,105 点(未知試料 2,161 点+標準試料 944 点)測定を行った。また、AMS を導入して以来の積算測定試料数は 42,798 点(未知試料:31,748 点、標準試料:11,050 点)に達している(図 2, 図 3)

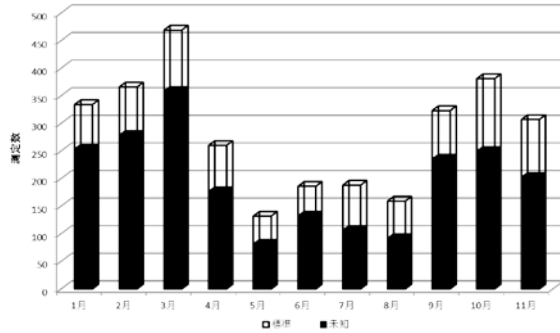


図 2 測定試料数の推移(2017)

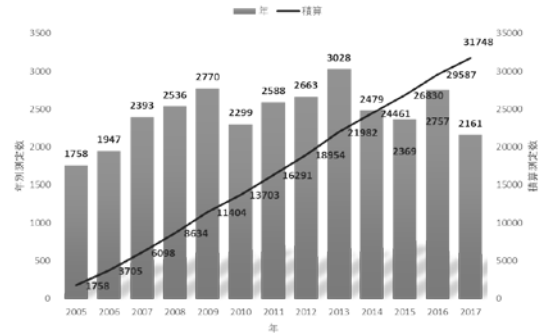
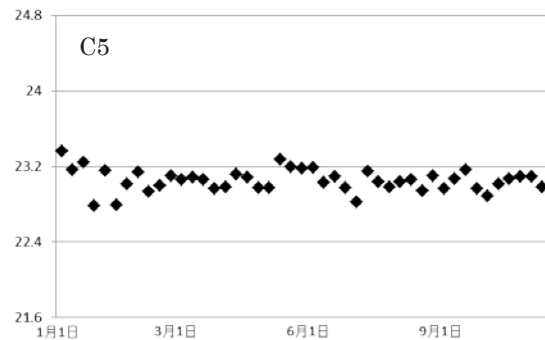
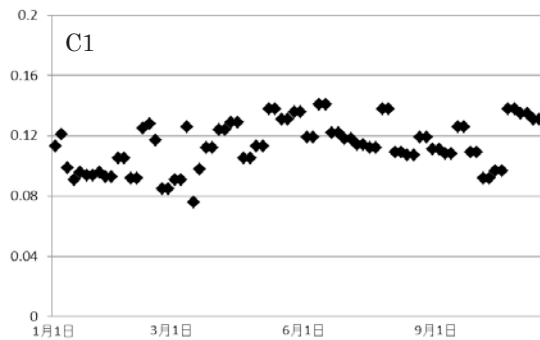


図 3 未知試料数の推移

通常、測定はバックグラウンド算出用に IAEA C1 を 2 個、チェック用に C5 を 1 個、C6 を 2 個入れて行っている。2017 年に測定した C1 の平均値及び標準偏差は $0.113 \pm 0.006 \text{ pMC}$ (推奨 値: $0.00 \pm 0.02 \text{ pMC}$)と十分に低く安定した値であった。C5 は $23.05 \pm 0.10 \text{ pMC}$ となった(推奨値: $23.05 \pm 0.02 \text{ pMC}$)。C6 は $149.14 \pm 0.26 \text{ pMC}$ となり、推奨値: $150.61 \pm 0.11 \text{ pMC}$ よりわずかに低い値を示した(図 4)。



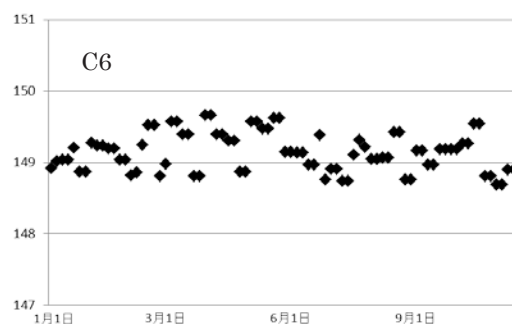


図4 IAEA C1, C5, C6 の測定値

3. トラブル・メンテナンス

2017 年は経年劣化のためのトラブルとしてターボポンプの故障が起こった。まず検出器前のターボポンプが故障したため代替の物と交換をした。その後、長年使用して故障の恐れがあったためイオン源後のターボポンプを新型のものを交換した。(図 5)

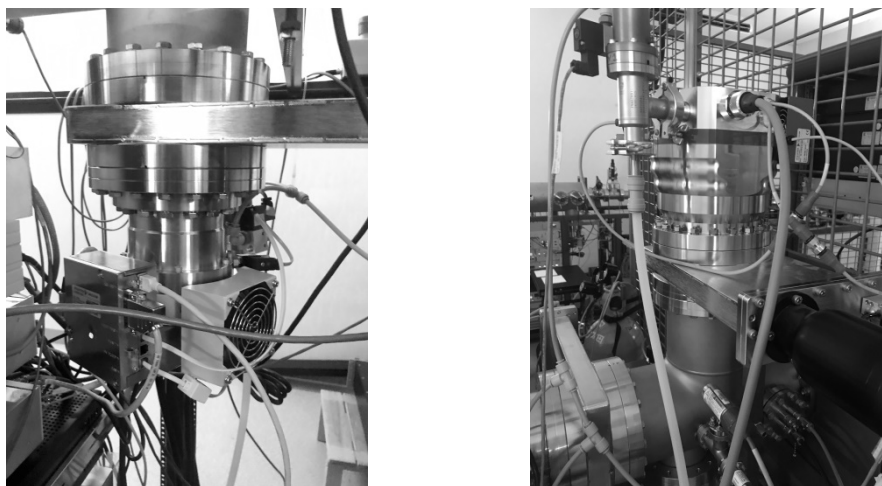


図5 交換後のターボポンプ

4. 自動化精製ライン

新技術開発の一環として AMS 測定用試料を多数グラファイト化するための自動化精製ラインを導入することとなり、2013 年 12 月末に自動試料前処理システム用の精製ラインを群馬県にある弊社 AMS 年代測定施設に導入した。その後 2014 年 4 月に vario MICRO cube を導入し自動試料前処理システムを本格的に稼働させた。弊社ラインはガス試料の精製にも対応できるように CO₂ ガス導入部を 3 箇所、ガストラップ部を 1 箇所増設したものになっている(図 6)。



図 6 自動化精製ライン

自動試料前処理システムを用いて精製した標準試料の平均値は IAEA C1=0.146±0.007pMC、IAEAC5=22.79±0.10pMC となった。バックグラウンド試料がパレオ・ラボ東海支店の手動ラインで処理したものより高い値を示したが問題ないレベルだと考えられる(図 7)。

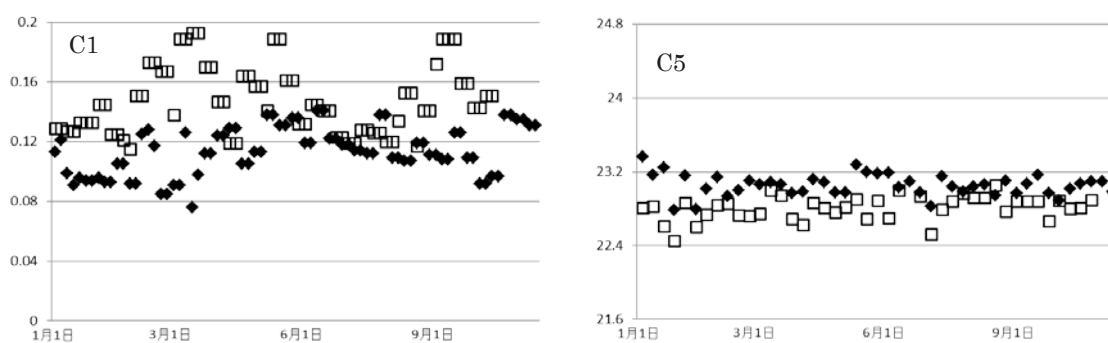


図 7 STD の手動処理と自動処理での比較

2.5 6 MV タンデム加速器による ^{90}Sr -AMS ^{90}Sr -AMS with the 6 MV tandem accelerator

細谷 青児^{1*}・笹 公和¹・高橋 努¹・本多 真紀¹・佐藤 志彦²・

高野 健太¹・落合 悠太¹・末木 啓介¹

Seiji Hosoya^{1*}, Kimikazu Sasa¹, Tsutomu Takahashi¹, Maki Honda¹, Yukihiro Satou², Kenta Takano¹,
 Yuta Ochiai¹, Keisuke Sueki¹

¹筑波大学 AMS グループ (AMS group, University of Tsukuba)

²原子力研究開発機構 (JAEA)

*Correspondence to: Seiji Hosoya; E-mail: s1620254@u.tsukuba.ac.jp

Keywords: 6MV タンデム加速器; ^{90}Sr

Abstract

Strontium-90 (^{90}Sr ; $T_{1/2} = 28.79$ years) is the fission product of Uranium and Plutonium. Therefore ^{90}Sr affects a potential health hazard from radiation accidents in nuclear facilities such as the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. A conventional analysis of ^{90}Sr is the β decay counting method. However β decay counting needs the milking process of ^{90}Y . It takes two or three weeks to wait ^{90}Y growth until the radioactive equilibrium. Recently the ICP-QMS technique was developed for a rapid analysis of ^{90}Sr . However it is not enough for the detection limit of ^{90}Sr . The AMS for ^{90}Sr analysis has the great potential to enable the prompt and high sensitive measurement. The sample for AMS is prepared as SrF_2 because Sr cannot form a monoatomic negative ion. Consequently, about 400 nA beam current of SrF_3^- obtained from SrF_2 sample mixed PbF_2 powder. Mixed ratio is $\text{SrF}_2:\text{PbF}_2 = 4:1$ weight ratio. In the case of ^{90}Sr AMS, isobar interference of ^{90}Zr has effects on ^{90}Sr measurements. Therefore we used the five-anode gas ionization detector to clearly separate ^{90}Zr . As the result, ^{90}Sr could be detected for the first time in Japan. The background level was achieved to $^{90}\text{Sr}/\text{Sr} \sim 6 \times 10^{-13}$ (~ 3 mBq) in the research progress.

1. はじめに

Strontium-90 (^{90}Sr ; $T_{1/2} = 28.79$ 年)はウランやプルトニウムの核分裂生成物として生成され、福島第一原子力発電所の事故によって環境中に放出された。SrはCaと同じアルカリ土類金属元素であり、化学的性質が似ている。その為、 ^{90}Sr が生体内に取り込まれると骨に蓄積し、内部被曝の原因となる。福島第一原発事故から6年以上が経過した現在でも測定に関する需要があり、放射性核種の環境や生体内での挙動の理解のために重要な核種である。従来は液体シンチレーションやチェレンコフ光を用いた β 線検出が一般的な分析方法であった。しかし、 ^{90}Sr の放出する β 線は0.54 MeVと低い

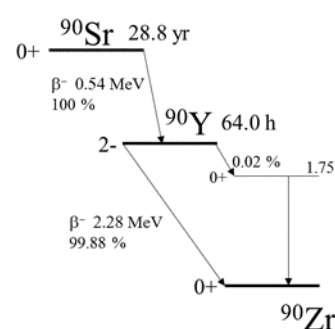


図 1 ^{90}Sr 崩壊図式

ている(図 1)。その為 ^{90}Y との放射平衡を待つミルキングという行程が必要であり、この行程には 2-3 週間を要する。近年では、新たにコリジョンセルを備えた ICP-QMS での ^{90}Sr の迅速測定手法が実用化された。しかし、その検出限界は約 20 mBq[1]であり、 β 線測定之感度には劣る。AMS による ^{90}Sr の分析法では同重体 ^{90}Y は ^{90}Sr の永続平衡に達してもその原子数は ^{90}Sr の約 4000 分の 1 しか存在しない。また、 ^{90}Y の半減期は 2 日と短いため、環境中の汚染は殆どない。従って、AMS では ^{90}Y の影響は殆ど無視することができる。また、同重体 ^{90}Zr に関しては安定同位体であるために環境中からの汚染が考えられる。その為、 ^{90}Zr は測定系で分離する必要がある。本研究では 5 枚電極型電離箱を用いてガス中でのエネルギー損失の違いを利用して ^{90}Sr と ^{90}Zr の分離識別を試みた。AMS

表 1 ^{90}Sr 定量方法の比較

	β 線測定	ICP-QMS	AMS
検出感度	~ 1 mBq	~ 20 mBq	~ 0.1 mBq ($^{90}\text{Sr}/\text{Sr} \sim 10^{-14}$)
測定時間	60 分+ミルキング 2-3 週間	~ 15 分	~ 30 分

によって $^{90}\text{Sr}/\text{Sr} \sim 10^{-14}$ のバックグラウンドを達成することができれば、試料装填ホルダーに $\text{Sr} \sim 1 \text{ mg}$ が装填されると仮定すれば $^{90}\text{Sr} \sim 0.1 \text{ mBq}$ のバックグラウンドを得ることができる。つまり、AMS による ^{90}Sr 定量方法が実現できれば、 β 線測定、ICP-QMS に代わる新たな高感度で迅速な ^{90}Sr 定量方法が期待される。表 1 に ^{90}Sr 定量方法の比較を示す。

2. 実験方法

本研究では筑波大学 6MV タンデム加速器を用いて実験を行った。図 2 に筑波大学 ^{90}Sr -AMS システムを示す。 Sr はアルカリ土類金属元素に属しており、その電子親和力は低い。その為、単原子負イオンを形成しないためイオン源からのビーム引き出しが困難になる。そこで、電子親和力の高いフッ素 (F) との化合物 SrF_2 試料から負の分子イオンビームを引き出すことを試みた。また、 SrF_2 は不導体であり、Cs スパッタの際に試料がチャージアップを起こして、ビーム引き出しが不安定になる恐れがある。その為、導電性の粉末と SrF_2 試料を混合する必要がある。その粉末の候補として PbF_2 、 Au 、 Ta の 3 つの物質について調べた。

同重体 ^{90}Zr による ^{90}Sr 検出の妨害を減らすために 5 枚電極型電離箱を用いた。同重体 ^{90}Zr と目的核種 ^{90}Sr をより効果的に分離識別するために電極前半部分 (dE1+dE2) と後半部分 (dE4+dE5) のエネルギー損失を 2 次元プロットにする試みを行った。分離識別と検出器構造の詳細については文献[2]、[3]を参照されたい。

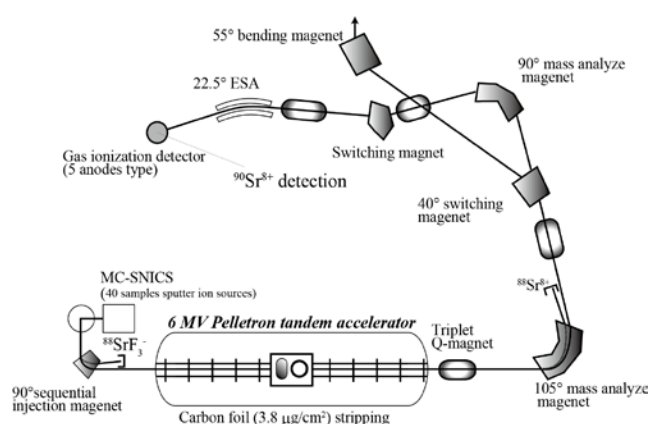
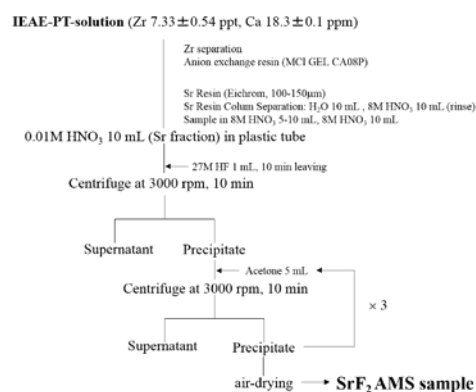
図 2 筑波大学 ^{90}Sr -AMS システム図 3 ^{90}Sr -AMS 標準試料の作成手順

表 2 IAEA-PT 試料の濃度

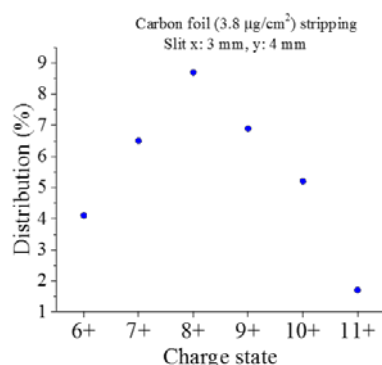
	^{90}Sr [Bq/kg]* ¹	Sr [ppb]	$^{90}\text{Sr}/\text{Sr}$ * ²	Zr [ppt]
IAEA-PT-217	14.7 ± 0.5	228 ± 2	1.98 × 10 ⁻⁸	7.33 ± 0.54
IAEA-PT-222	29.6 ± 0.8	196 ± 1	2.72 × 10 ⁻⁸	7.41 ± 0.54

また、標準試料に関しては、IAEA から提供された Proficiency Test (PT) 試料を用いて作製した。PT 試料は世界中の放射線測定施設の測定値相互評価を行うための試料である。つまりこの試料は、IAEA という世界的に信頼性の高い機関が放射性核種の濃度を示しているため、AMS の標準試料としてよく適している。表 2 に ^{90}Sr 濃度公称値と、Sr を ICP-MS にて測定して、 ^{90}Sr 同位体比を算出した結果を示す。同時に Zr の混入量の測定を行ったところ 7.3-7.4 ppt の Zr が IAEA-PT 試料に含まれていることが分かったため、Zr の除去については陰イオン交換樹脂(三菱化学 MCI GEL CA0P)を用いて ICP-MS の検出限界以下(0.001 ng/g)までの除去を行った。標準試料は図 3 に示す手順で作製した。

3. 実験結果

SrF_2 試料に混合する粉末として PbF_2 , Au, Ta 粉末を混ぜた結果を表 3 に示す。表 3 の結果より SrF_2 試料に PbF_2 粉末を重量比 1:4 で混合することによって $^{88}\text{SrF}_3^-$ を約 400 nA 引き出すことができた。また、 $^{88}\text{SrF}_3^-$ を 6 MV の加速電圧で加速させた際の荷電変換分布の測定結果(図 5)より、 $^{88}\text{Sr}^{8+}$ が約 8 % の最も高い分布をとることが分かった。以上の結果より、表 4 のような加速器システムのパラメータで測定を行った。5 枚電極型電離箱での ^{90}Sr と ^{90}Zr の分離識別に関しては、イソブタンガス 30 Torr を封入することによって最も高いスペクトルの分離が得られ、国内初となる AMS による ^{90}Sr の検出に成功した(図 6)。しかし、同重体 ^{90}Zr の混入が多い場合、エネルギー損失の違いだけでは高感度な測定ができない。そこで解析方法によって同重体 ^{90}Zr の妨害を減らすことを試みた。

dE1+dE2, dE4+dE5 の 1 次元ヒストグラムについてガウシアンフィッティングを行い、dE1+dE2 に関して

図 5 $^{88}\text{SrF}_3^-$ の 6 MV 加速での荷電変換分布表 3 SrF_2 試料に混合する物質

による $^{88}\text{SrF}_3^-$ 電流値の違い

混合粉末 (SrF_2 :X)	$^{88}\text{SrF}_3^-$ 電流値
PbF_2 (1:4)	~ 400 nA
Au (1:4)	~ 300 nA
Au (1:1)	~ 150 nA
Ta (1:4)	~ 100 nA

表 4 加速器システムのパラメータ

試料形態	SrF_2
引き出しビーム	$^{88}\text{SrF}_3^-$
加速電圧	6 MV
荷電変換	炭素薄膜 (3.8 µg/cm ²)
検出イオン	$^{90}\text{Sr}^{8+}$
荷電変換効率	~ 8 %
ビームエネルギー	51.8 MeV
検出器ガス	イソブタン
検出器入射窓	Si_3N_4 (膜厚: 75 nm)

*¹ No.217 は 2016 年 3 月, No.222 は 2015 年 3 月時点での公称値。

*² 半減期 28.79 年で計算。2017 年 6 月に壊変補正済。

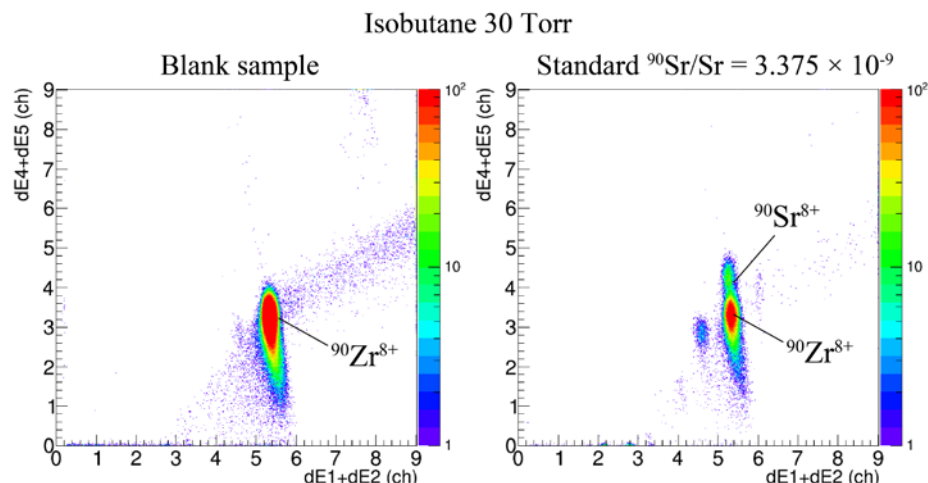


図 6 標準試料($^{90}\text{Sr}/\text{Sr} = 3.375 \times 10^{-9}$)とブランク試料(市販試薬)のスペクトル図

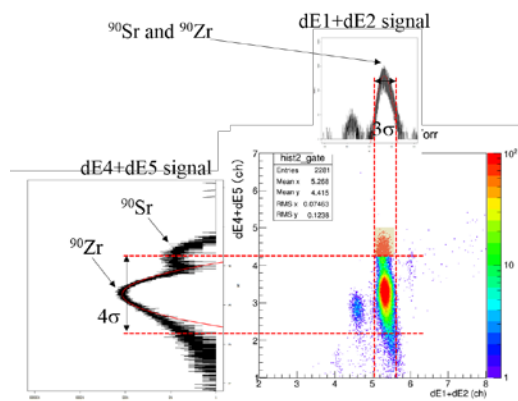


図 7 ^{90}Sr ゲート範囲設定方法

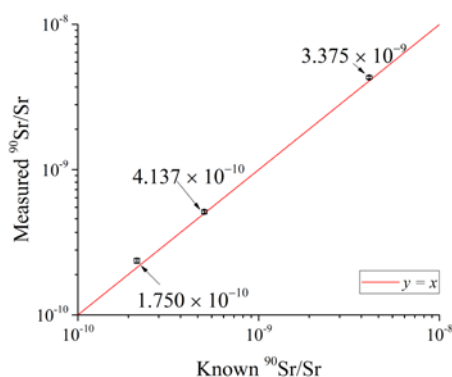


図 8 標準試料の検量線

は 3σ , $dE4+dE5$ に関しては 4σ の幅で ^{90}Sr のゲート範囲を設定することによって同重体 ^{90}Zr の妨害の影響を減らした(図 7)。その結果、バックグラウンド $^{90}\text{Sr}/\text{Sr} \sim 6 \times 10^{-13}$ (~ 3 mBq)を達成した。また、この解析方法で同様に 3 種類の標準試料の同位体比を算出し、検量線を引いた結果を図 8 に示す。図 8 より、3 種類の標準試料についても既知の値とほぼ一致し、標準試料、解析方法に問題がないことが確認された。

4. まとめ・今後の展望

現在 ^{90}Sr を測定できる施設は米国ローレンスリバモア国立研究所(10 MV タンデム加速器)のみである。そのバックグラウンドは $^{90}\text{Sr}/\text{Sr} \sim 5.98 \times 10^{-13}$ (~ 3 mBq)[4]であり、本研究で得られたバックグラウンド $^{90}\text{Sr}/\text{Sr} \sim 6 \times 10^{-13}$ は大型タンデム加速器と同等の測定性能を達成した。また、従来の ^{90}Sr 定量方法と比較しても β 線測定と同等の検出限界で迅速測定ができる結果を得た。しかし、3 章で述べた解析方法は ^{90}Sr の検出効率が犠牲になる難点があるため、イオン源の改良等によって $^{88}\text{SrF}_3^-$ のビーム電流を増やす等の改善が必要である。

【参考文献】

- [1] Y. Takagai et al., Analytical Method, 6 (2014) 355-362.
- [2] 細谷 青児 他, 第 18 回 AMS シンポジウム報告集, (2016) 67-70.
- [3] 細谷 青児 他, 第 19 回 AMS シンポジウム報告集, (2017) 49-52.
- [4] S.J. Tumey et al., Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 282 (2009) 821-824.

2.6 JAEA-AMS-TONO における $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比測定 of 整備 Improvement of methods for measurement of $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio at JAEA-AMS-TONO

岡部宣章^{1*}・藤田奈津子¹・松原章浩²・三宅正恭¹・西尾智博²・西澤章光²・磯崎信宏²・
渡邊隆広¹・國分(齋藤)陽子¹
N. Okabe^{1*}, N. Fujita¹, A. Matsubara², M. Miyake¹, T. Nishio², A. Nishizawa², N. Isozaki²,
T. Watanabe¹, Y. Saito-Kokubu¹

¹ 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター (Tono Geoscience Center, JAEA)

² 株式会社 ペスコ (Pesco Corp., Ltd.)

**Correspondence to: N. Okabe; E-mail: okabe.nobuaki@jaea.go.jp*

Abstract

Residence time of groundwater is one of the most important information to characterize coastal areas in terms of geological disposal. Iodine-129 (^{129}I) has relative long half-life (ca. 15.7 million year). Therefore, the $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ dating is effective to estimate the residence time of the old groundwater, such as fossil sea water. To measure $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio in the groundwater, we improved sample preparation method and AMS system at JAEA-AMS-TONO (Tono geoscience center, Japan Atomic Energy Agency).

Keywords: JAEA-AMS-TONO; $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$, 試料前処理法, 機器整備

1.はじめに

高レベル放射性廃棄物処分においては、その安全性を示すために最終処分施設周辺の地下水流動が緩慢であることを示すことが地質環境特性調査の重要課題の一つとなる。そのためには、岩盤の透水性や動水勾配に加えて、地下水の年代測定等によってその滞留時間を把握する必要がある。滞留時間の長い地下水を対象とした年代測定法として、長半減期核種であるヨウ素-129 (^{129}I) を利用する $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比年代測定法がある。日本原子力研究開発機構 (JAEA) 東濃地科学センターでは、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比による地下水の年代測定を行うため、平成 27 年度より AMS 装置 (JAEA-AMS-TONO) の整備を開始した。本稿では、現在の測定条件や前処理方法の整備状況について報告する。

2.JAEA-AMS-TONO における測定条件

これまで JAEA-AMS-TONO では、炭素-14、ベリリウム-10 及びアルミニウム-26 などの質量数の小さい核種の検出を行ってきた。それに比べて質量数の大きい核種である ^{129}I の検出にあたって、加速電圧の設定や電磁石磁場の調整などの測定条件の最適化を行う必要がある。まず、JAEA-AMS-TONO で検出できることを確認するため、JAEA 青森研究開発センターによって同位体比が $(3.25 \pm 0.03) \times 10^{-11}$ と値付けされている試料を用いて、Matsuzaki et

al. (2007)を参考に加速器質量分析装置の各パラメーターを検討し、加速電圧 3.5 MV、その他のパラメーターを表 1 に示した通りとしたところ、 ^{129}I の検出が確認できた（藤田他, 2018）。当センターでは $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比が 10^{-13} レベルの地下水試料の測定を目標としていることから、次の段階として低同位体比（ 10^{-13} レベル以下）の既知試料の測定を行い、現状での測定状況について確認を行った。しかし、lowest carrier（Woodward : $(0.31 \pm 0.04) \times 10^{-13}$ (Muramatsu et al., 2008)) を測定したところ、文献値よりも 2 桁高い結果となった。これは、 ^{127}I イオンによる干渉の影響であると考えられた。よって、干渉の影響を抑えるため、電圧を 4.5 MV まで上げて調査を行ったところ、lowest carrier の値は現状でも文献値より一桁程度高いものの、下げることに成功した。ただ、依然として文献値より同位体比が一桁高いため、バックグラウンドの低減や試料調製環境の検討を行う必要がある。その他の問題点としては、透過率が挙げられる。現時点での透過率は、約 0.2% と不十分であることから、今後向上を目指す予定である。

表 1 JAEA-AMS-TONO での $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比測定条件

電流	$\sim 7 \mu\text{A (I)}$
入射方法	逐次 (^{127}I : 1 ms, ^{129}I : 99 ms)
検出器窓	Si_3N_4
電離箱構成	$\Delta E_1 - \Delta E_{2-4}$
測定同位体	$^{129}\text{I}^{5+}/^{127}\text{I}^{5+}$

3. 試料前処理法及びカソードの検討

地下水の年代測定では、同位体比が 10^{-13} レベル以下での測定が必要なことから、バックグラウンドが低い測定試料の調製法及び高感度な測定が求められる。そこで、ヨウ素 (I) の抽出・精製方法、カソードへの充填方法について検討した。I の抽出・精製には主に四塩化炭素やクロロホルムが使用されているが (Togo et al., 2016 など)、これらの試薬は特定化学物質に指定されており、今後使用の制限がより厳しくなる。一方、四塩化炭素等の代替試薬として、海水試料に対する前処理に、ノルマルヘキサン (賀佐ほか, 2007) や陰イオン交換樹脂を用いる方法が報告されている。しかし、陰イオン交換樹脂法は、前処理時に人為起源の ^{129}I の混合が報告されている (楠野ほか, 2017) ことから、同位体比が低い地下水試料の試料調製には不向きであると考えられる。これらのことから、地下水中の I の精製・分離法として、ノルマルヘキサン溶媒抽出法の適用を検討した。その結果、I の抽出はできるものの、抽出時に地下水試料中に含まれる不純物が、抽出された I を含む有機層と一緒に分取される可能性があり、遠心分離等を利用した不純物の除去方法を確立する必要があることがわかった。

また、カソードの材質はこれまでの研究でアルミニウム (Al) と銅 (Cu) の二種類が報告されているため (Jabbar et al., 2011; Bautista VII et al., 2017)、それぞれにヨウ化銀 (AgI) を充填し試料の劣化や測定精度などを比較した。その結果、Al カソードは、ニオブ (Nb) の混合率を変えても Cu カソードに比べばらつきが見られた (図1)。測定前後のカソードを観察し

たところ、Al カソードでは充填部に化学反応の痕跡が確認され、これが測定結果のばらつきに影響を与えていると考えられる。このことから今後は Cu カソードを使用することとした。

測定時の I の引き出し効率を上げるために添加する Nb 粉末の混合率も最適条件の検討を行った。

重量比で AgI に対する Nb の割合を 10 倍まで増加させたところ、測定誤差は減少したものの、試料ごとの変動幅に違いは確認できなかった(図2)。今後、更に検討を重ね、実試料測定に最適な混合比を決定する。

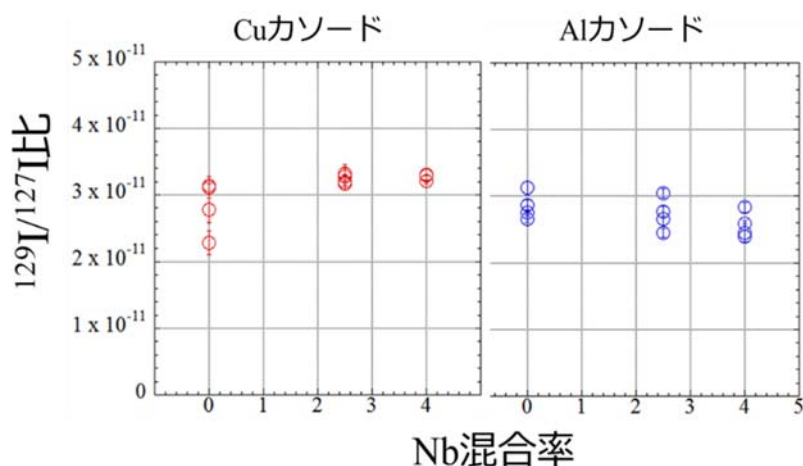


図1 カソードの材質に関する比較結果

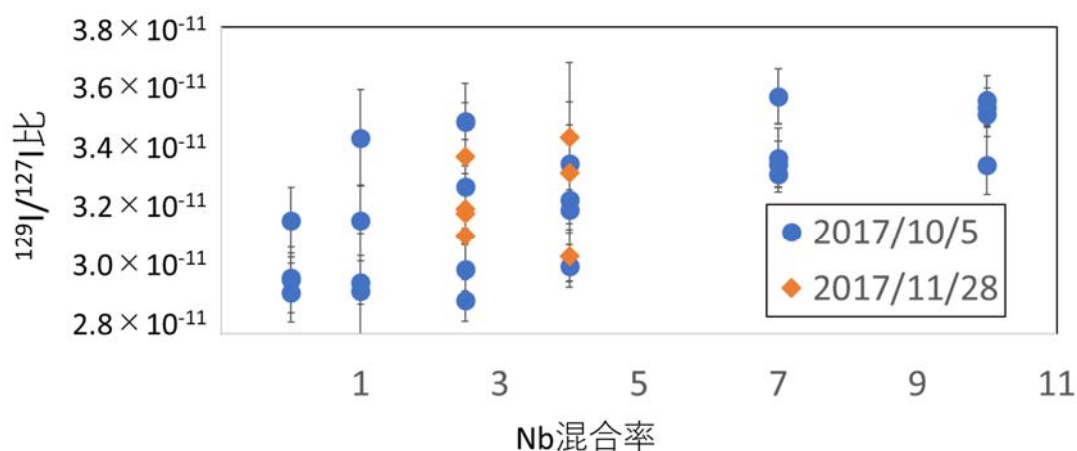


図2 Nb 混合率の比較結果

4.まとめ

JAEA-AMS-TONO での $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比測定の整備を行った。測定パラメーターは加速電圧を 3.5 MV に設定することで 10^{-11} レベルでの ^{129}I の検出を行うことができた。しかし、 10^{-13} レベルの試料の測定では、測定値は報告されているより高い傾向にあった。このため、バックグラウンドの低減や試料調製環境の検討を行う予定である。

また、測定カソードには AgI と反応が確認されなかった Cu カソードを使用することとした。Nb の混合率についても検討を行ったものの、最適な混合率の決定には至らなかった。今後、適当な測定条件となる割合を検討予定である。前処理方法について、ノルマルヘキサンをを用いた方法で行う方針であるが、不純物の除去方法は今後検討を行う。

本報告は経済産業省資源エネルギー庁委託事業「平成 28 年度地層処分技術調査等事業（沿岸部処分システム高度化開発）」及び「平成 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業（沿岸部処分システム高度化開発）」の成果の一部である。

Matsuzaki, H., Muramatsu, Y., Kato, K., Yasumoto, M., and Nakano, C., Development of ^{129}I -AMS system at MALT and measurements of ^{129}I concentrations in several Japanese soils, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 259(1), pp.721-726, 2007.

藤田奈津子, 三宅正恭, 渡邊隆広, 國分（齋藤）陽子, 石丸恒存, 松原章浩, 西尾智博, 加藤元久, 磯崎信宏, 虎沢 均, 西澤章光, JAEA-AMS-TONO加速器施設の現状（平成28年度）, 第30回「タンデム加速器及びその周辺技術の研究会」報告集, 2018(in press).

Muramatsu, Y., Takada, Y., Matsuzaki, H., & Yoshida, S. AMS analysis of ^{129}I in Japanese soil samples collected from background areas far from nuclear facilities, Quaternary Geochronology, 3(3), pp.291-297, 2008.

Togo, Y. S., Takahashi, Y., Amano, Y., Matsuzaki, H., Suzuki, Y., Terada, Y., Muramatsu, Y., Ito K. and Iwatsuki, T., Age and speciation of iodine in groundwater and mudstones of the Horonobe area, Hokkaido, Japan: Implications for the origin and migration of iodine during basin evolution, Geochimica et Cosmochimica Acta, 191, pp.165-186, 2016.

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, pp.155-162, 2007.

楠野葉瑠香, 松崎浩之, 山道美和子, 川本万里奈, 徳山裕憲, 永田 俊, 海水中無機ヨウ素の化学種別 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比分析の試み, 第 19 回 AMS シンポジウム・2016 年度「樹木年輪」研究会共同開催シンポジウム報告書, pp.90-93, 2017.

Jabbar, T., Steier, P., Wallner, G., Kandler, N., & Katzlberger, C. AMS analysis of iodine-129 in aerosols from Austria, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 269(24), pp.3183-3187, 2011.

VII, A. T. Bautista., Miyake, Y., Matsuzaki, H., & Siringan, F. P. A coral $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ measurement method using ICP-MS and AMS with carrier addition, Analytical Methods, 9(35), pp.5181-5188, 2017.

2.7 微量試料の高精度放射性炭素年代測定 High-precision Radiocarbon dating of small-scale samples

大森貴之^{1*}・山崎孔平¹・梶澤貴行¹・板橋 悠²・尾寄大真¹・米田 穰¹
Takayuki Omori^{1*}, Kohei Yamazaki¹, Takayuki Kabasawa², Yu Itahashi¹, Hiromasa Ozaki¹,
Minoru Yoneda¹

¹東京大学総合研究博物館
(The University Museum, The University of Tokyo)

²東京大学新領域創成科学研究科
(Graduate School of Frontier Sciences, The University of Tokyo)

**Correspondence to: T. Omori; E-mail: omori@um.u-tokyo.ac.jp*

Keywords: 放射性炭素年代測定; 微量分析

東京大学総合研究博物館放射性炭素年代測定室(以下、年測室)では、2017 年下半年期より微量試料の放射性炭素(¹⁴C)年代測定を本格的に開始した。分析実績は、2017 年 11 月現在で既に 250 点を超え、1 カ月に 1~2 回のマシンタイムを確保して分析を進めている。

微量試料のサンプルサイズは、現状、高精度で低バックグラウンド測定が可能な 100 μ gC (通常測定 of 1/10)を基本とし、分析試料の推定時期、試料の保存状態や必要とされる精度によってはより微量でも分析可能である。

放射性炭素年代測定室の微量分析では、微量試料から均質なターゲットを合成するため、グラファイトではなく鉄と炭素の化合物であるセメンタイト Fe₃C を用いる。セメンタイトの調製は、低温ガス浸炭技術を応用し、試料燃焼法の検討、CO₂還元を行う反応系の改良、Fe 触媒の最適使用条件の検討を進めることで、90%を超える収率で安定したセメンタイトターゲットの生成が可能となった。

微量セメンタイトの ¹⁴C 年代測定は、イオン化効率の最適条件を検討し、2~3 時間安定した電流値を維持可能なほか、同サンプルサイズのグラファイトと比較して、イオン源から生じる分子イオンが抑制できることが特徴である。これにより一般的に微量測定では困難な数万年を超える古い試料においても高精度な年代測定を可能とする。

分析精度は NIST (アメリカ国立標準技術研究所) SRM4990c の ¹⁴C/¹²C 測定で 0.3%程度に収まり、バックグラウンドはブランク測定用シュウ酸(和光純薬社製)で ¹⁴C/¹²C が 3.5E-15 程度 (0.34pMC) で十分実用可能なレベルに到達している*。

*年測室における微量試料の ¹⁴C 年代測定では、基本的に一般的な微量分析で行う現代混入炭素の補正は行っていない。

2.8 東京大学大気海洋研究所シングルステージ AMS の導入後の 5 年間 Status report of Single Stage AMS system at Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo

宮入陽介^{1*}・阿瀬貴博¹・平林頌子^{1,3}・佐藤菜央美^{1,3}・安藤有加¹・横山祐典^{1,2,3}
Miyairi Y^{1*}, Aze T¹, Hirabayashi S^{1,3}, Sato N^{1,3}, Ando Y¹ and Yokoyama Y^{1,2,3}

¹東京大学大気海洋研究所高解像度環境解析研究センター
(Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo)

²海洋開発研究機構

(Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology (JAMSTEC))

³東京大学 理学系研究科 (Graduate School of Science, The University of Tokyo)

*Correspondence to: Yosuke Miyairi; E-mail: miyairi@aori.u-tokyo.ac.jp

東京大学大気海洋研究所高解像度環境解析研究センターでは 2013 年 2 月に国内で初めて米国 NEC (National Electrostatics Corporation) 社製のシングルステージ型加速器質量分析計を導入した。本装置は 5m×7m(将来計画のデュアルイオン源オプション装備時:現在はシングルのイオン源として運用中)と小型で放射性炭素分析に特化した AMS 機器であり、250KV と低い加速電圧で放射性炭素分析を可能とした国内唯一の装置である。従来の AMS 装置にくらべメンテナンスが容易であり、測定効率も一か月に約 600 検体の分析が可能と非常に高い。また、設計測定精度も $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比測定 0.3%以下、 $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比測定 0.3%以下と非常に高い。測定限界も $^{14}\text{C}/^{12}\text{C} \leq 2.5 \times 10^{-15}$ と十分な性能を有している。

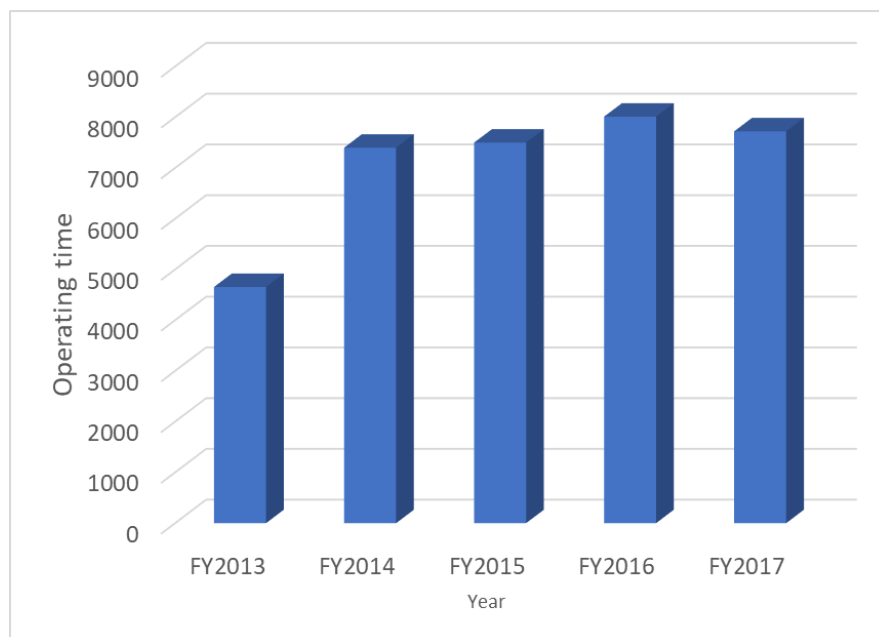


図1 過去 5 年間の加速器運転時間数

導入 2 年度目以降毎年 7,000 時間を超える活発な利用がある。

4月	イオン源清掃、表示乱れのためターボポンプ(TP01-1)のコントローラ交換(4/17) ターボポンプ(TP04-1)エラー(4/28)
5月	
6月	
7月	ターボポンプ(TP04-1)のコントローラ交換(7/5) イオン源清掃、セシウム交換、ターボポンプ(TP01-2)不調(7/24)
8月	BM01エラー(8/6)
9月	キャンパス停電(9/30)
10月	ターボポンプ(TP01-2)交換、ストリッパーガス交換、ターボポンプ(6台)のオイルリザーバーとロータリーポンプ(3台)のオイル交換(10/2)
11月	インデクサー不調
12月	イオン源清掃、イオンゲージ(IGC01)交換(12/11)
1月	
2月	イオン源清掃、セシウム交換(2/21)
3月	

図 2 2017年度の主なメンテナンス履歴
7月にターボポンプの故障が相次いだ。

2010年度より4箇年にわたりシングルステージ加速器質量分析計の導入作業を行い、2013年に装置のインストール、2013年8月より定常測定を開始した。2017年度で導入後5年を迎えることとなった。2014年以降加速器の運転時間は毎年7,000時間を超え旺盛な装置利用需要に応じている(図1)。

導入後5年目に入りイオン源のターボポンプの故障などいくつかの修理を必要とする主要部品の不具合も経験してはいるものの順調に測定を進めている(図2)。

装置の維持管理の制度面では、2014年度に本装置の利用体制が整備をおこない「高解像度環境解析研究センター加速器装置利用」を開始した。高解像度環境解析研究センター教員と共同研究体制を構築の上、装置維持のための利用分担金を負担することで本装置の環境解析分野外のユーザの利用が可能となった。更に2016年度からは前処理施設である加速器質量分析施設の大気海洋研究所(柏地区)共同利用への登録も始まり、AMS装置の利用と併せて、活用できる体制が整った。大規模な分析機器であるAMS装置を競争的研究資金を用いて購入したという、本装置の特殊な導入経緯のため、AMS装置の維持管理に関しては「高解像度環境解析研究センター加速器装置利用」という装置利用分担金による利用をし、前処理施設等の付帯設備は「大気海洋研究所(柏地区)共同利用」として提供されるというやや煩雑な体制となってしまったものの、2つのシステムを組み合わせることで、前処理からAMS測定までという一貫した外部利用も可能となった。

2017年度の加速器利用

2017年度の加速器運転時間は7,722時間であった。年間3,267試料の測定を行った(うち未知試料量は2,100個)(図1)。そのうち大気海洋研究所内の利用が約8割を占める。

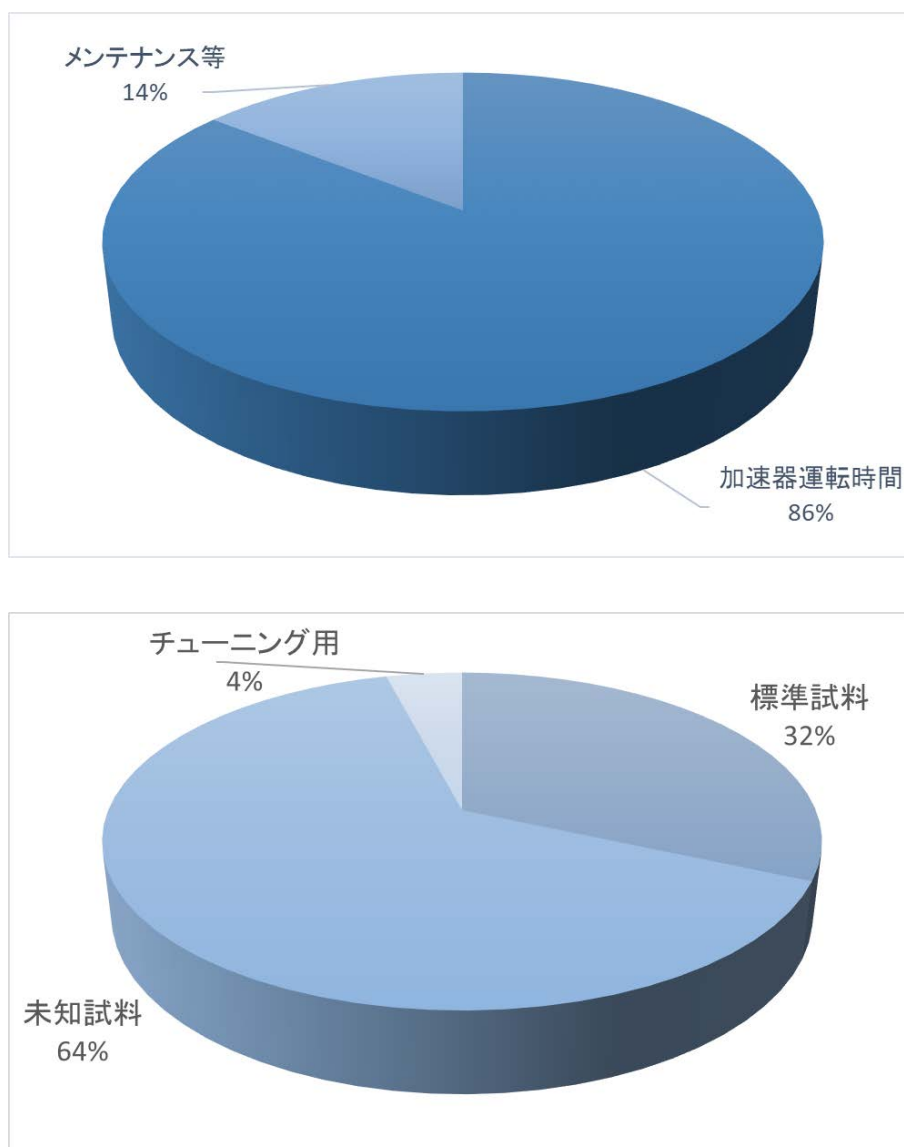


図3 2017年度の加速器運転時間・分析試料比率

上:運転時間比率 下:年間測定ターゲット数(3267 個)に対する測定試料種別比率

本装置での利用で特徴的なのは、少量試料の分析の利用が約1割を占めることである。導入当初から、少量サンプルでの測定システムの開発を進め、2014年度より、従来の約10分の1である0.1mg(100 μ g)Cでの測定を定期的に行う体制を整備した。昨年度より0.05mg(50 μ g)Cでの測定を開始、さらに現在では0.03mg(30 μ g)C以下での測定が可能となっている。現在さらなる少試料化の検討を行っているところであり0.01mg(10 μ g)C程度の測定の開発を進めている。前処理の工程の複雑さ等から、従来の1mgCの測定を置き換えるには至っていないが、少量の有孔虫化石の年代測定やサンゴ骨格を用いた高分解能炭酸塩試料の環境解析研究(たとえば Hirabayashi et al., 2017)、化合物レベル放射性炭素分析(CSRA: Compound Specific Radiocarbon Analysis)の分野(たとえば Yamane et al., 2014)では少量試料の測定のニーズが高く、さらなる微量分析技術の開発

を進めるとともに、定常分析に移行した試料量のカテゴリでは積極的な微量試料測定の利用が始まっている。

今後も新規技術開発とともに装置の良好なコンディションの維持にも注力し、装置の積極的な活用を図っていきたいと考えている。

引用文献

Hirabayashi, S., Yokoyama, Y., Suzuki, A., Miyairi, Y., and Aze, T. (2017) Multidecadal oceanographic changes in the western Pacific detected through high-resolution bomb-derived radiocarbon measurements on corals, *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, Volume18, pages1608-1617.

Yamane, M., Yokoyama, Y., Miyairi, Y., Suga, H., Matsuzaki, H., Dunbar, R.B., Ohkouchi, N. (2014) Compound-specific ^{14}C dating of IODP Expedition 318 core U1357A obtained off the Wilkes Land coast, Antarctica. *Radiocarbon*, Volume 56, pages 1009-1017.

2.9 東京大学総合研究博物館 Compact-AMS の現状(2017 年) Status report of Compact-AMS at UMUT (2017)

尾寄大真^{1*}・大森貴之¹・板橋悠¹・山崎孔平¹・金澤礼雄¹・

上原加津維¹・山口絢子¹・内田啓子¹・吉田邦夫¹・米田穰¹

Hiromasa Ozaki^{1*}, Takayuki Omori¹, Yu Itahashi¹, Kohei Yamazaki¹, Ayao Kanesawa¹,
Katsui Uehara¹, Ayako Yamaguchi¹, Akiko Uchida¹, Kunio Yoshida¹ and Minoru Yoneda¹

¹東京大学総合研究博物館 (The University Museum, The University of Tokyo)

**Correspondence to: Hiromasa OZAKI; E-mail: ozaki@um.u-tokyo.ac.jp*

Abstract

In March 2015, compact-AMS system (1.5SDH-1 manufactured by NEC) dedicated to ^{14}C measurement was introduced in the Radiocarbon Dating Laboratory at the University Museum, the University of Tokyo, and measurement of unknown sample was started in December 2015. In fiscal 2016, we conduct our first full year operation, total number of measurements of unknown sample reached 2,000 by November 2017.

Keywords: Compact-AMS; 放射性炭素年代測定; 操作ブランク

1. はじめに

東京大学総合研究博物館放射性炭素年代測定室では 2015 年 3 月に炭素 14 測定専用の Compact-AMS (NEC 社製 1.5SDH-1) を導入し、2015 年 12 月に未知試料の測定を開始した。2016 年度は初めての通年運用を行い、2017 年度も 11 月現在長期間にわたる装置停止もなく、定常的な運用を行っている。2017 年 4 月に定期メンテナンスを行った際には、加速器タンク前後のイオンゲージフィラメントが頻繁に断線することに対して、 SF_6 ガスのビームラインへの漏洩を確認し、その対処を行った。

2. 運用実績

2015 年 3 月に CAMS を導入し、2015 年 12 月に実際に未知試料の分析を始めてから、2017 年 11 月までに測定した未知試料の総数はちょうど 2000 点となった。その内訳は 2015 年度が 12 月からの運用で 294 点、2016 年度が 954 点、2017 年度が 11 月までで 752 点である。利用分野としては、東京大学総合研究博物館放射性炭素年代測定室では AMS 測定のみではなく、資料の前処理から ^{14}C 年代測定におけるすべての実験操作を行っていることから、実験設備を持たない考古学や人類学などといった分野からの利用が多い。

ほとんどの測定試料を年代測定室で準備していることで、AMS での測定条件を大きく変える必要がなく、測定品質を一定に制御することができている。他の実験室で準備された試料の測定も行っているが、年代測定室の試料調整法になるべく合わせた試料を準備していただいたり、調整用試料も同様に準備していただいたりすることで測定品質を保っている。

3. SF₆ガスのビームラインへの漏れ対処による ¹³C/¹²C 比測定値の安定化

2016 年度から通年運用を始め、毎年 4 月に定期メンテナンスを行うこととし、2017 年 4 月には加速器タンクを開放しての掃除や各種点検整備を行うと同時に、加速器付近のイオンゲージフィラメント断線の原因と推測されるビームラインへの SF₆ガスの流入について検証および対処を行った。

SF₆ガスの流入については、ビームラインに Q-mass を設置して、SF₅⁺イオンの質量数 127 のピークを確認し、ストリッパガス供給ラインのメータリングバルブの開閉と連動していることも明らかになった。さらに He ガス噴霧とリークチェッカーによる精査により、ストリッパガス供給ラインコネクタ部の緩みが原因と特定し、当該コネクタについて、配管自体にゆがみがあったため、そのストレスを排除すべく配管から施工しなおした。

結果として、ストリッパガス圧が安定したものになり、ストリッパガス圧の調整頻度が明らかに少なくなった。また、2～3 日間にわたって行う一連の測定における同位体比も安定したものになり(図 1)、¹³C/¹²C 比の分析精度が向上した。

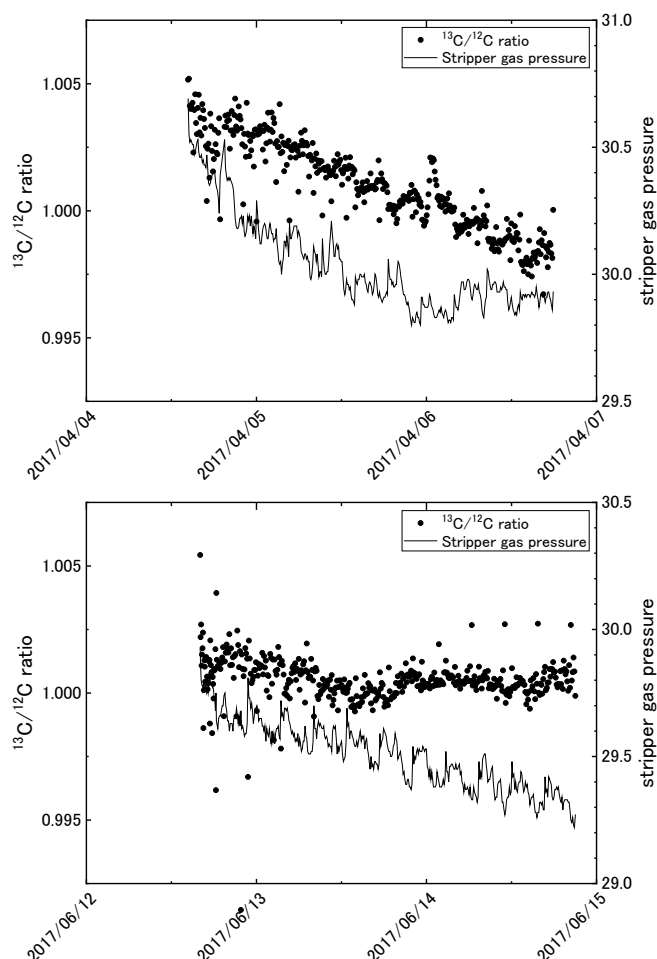


図 1 SF₆ガス漏洩対処前後のストリッパガス圧と ¹³C/¹²C 比測定値の変動(上図:対処前、下図:対処後)

4. 測定品質

4-1. 燃焼法とリン酸法による操作ブランクの違い

AMS による ¹⁴C 測定においては、測定試料調整における現代炭素の汚染(操作ブランク)を評価するため、¹⁴C を含まない試料として IAEA から販売されている C1 が広く用いられており、年代測定室でも IAEA C1 を長らく用いてきた。しかし、多くの未知試料が石英管に酸化銅などとともに真空封入し、加熱燃焼することで二酸化炭素を発生させているのに対し、炭酸塩試料である C1 は二又管などにリン酸とともに真空封入したのち、リン酸と反応させることで炭酸塩から二酸化炭素を発生させている。この二酸化炭素発生プロセスの違いによって、操作ブランクに違いがある可能性については黙視してきた。実際に ¹⁴C 年代にして 1 万年より若いものについては誤差に対しても小さな違いしかなく、ほとんど影響がない。

しかし、数万年くらいになるとその違いによる影響は必ずしも無視できるものではなくなって

くる。IAEA C1 に代わる¹⁴C を含まない試料として、市販のグラファイトやシュウ酸が用いられることがある。筑波大学の光信理化学社製の自動炭素精製ラインを用いて、和光純薬社製グラファイト、シュウ酸からグラファイトを作成し、¹⁴C 測定を行い、IAEA C1 と同等レベルであることを確認した上で、現在は燃焼法で準備した試料の操作ブランクとしては和光純薬社製のシュウ酸を用いている。図 2 にはこれまでの測定における操作ブランクの pMC 値の変遷を示した。

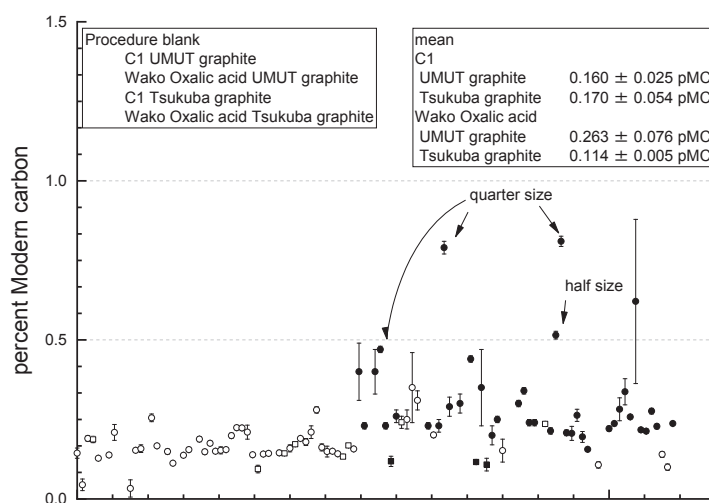


図 2 操作ブランク IAEA C1、和光シュウ酸の測定値の変遷

図 2 にはこれまでの測定における操作ブランクの pMC 値の変遷を示した。リン酸法による IAEA C1 が平均 0.160 ± 0.025 pMC であるのに対して、燃焼法の和光シュウ酸は 0.263 ± 0.076 pMC と少し高めの値となっている。図 2 でも和光シュウ酸の方が全体的に高めとなっており、燃焼法による操作ブランクがリン酸法と比較して高いことがわかった。

4-2. IAEA 標準試料の測定結果

現在、通常の測定において操作ブランクとしての IAEA C1 あるいは和光シュウ酸、現代炭素の標準として NIST 標準試料 (OXII, SRM-4990c) を用い、測定品質の評価のために IAEA C6 及び C8 を未知試料とともに測定している。これまでのそれぞれの測定値を pMC 値で図 3 に示した。図中に C6、C8 それぞれの推奨値とその誤差範囲も示した。

C6 の測定値は全体的に推奨値 (150.6 ± 0.11 pMC) に対して低い値となっており、平均は 150.17 ± 0.38 pMC であった。IAEA による C6 の推奨値は少し高いという報告 (Xu et al., 2010) もあり、Xu et al. (2010) の報告値 150.2 ± 0.02 pMC とはよく一致している。

C8 については平均値が 15.19 ± 0.31 pMC と推奨値 (15.02 ± 0.17

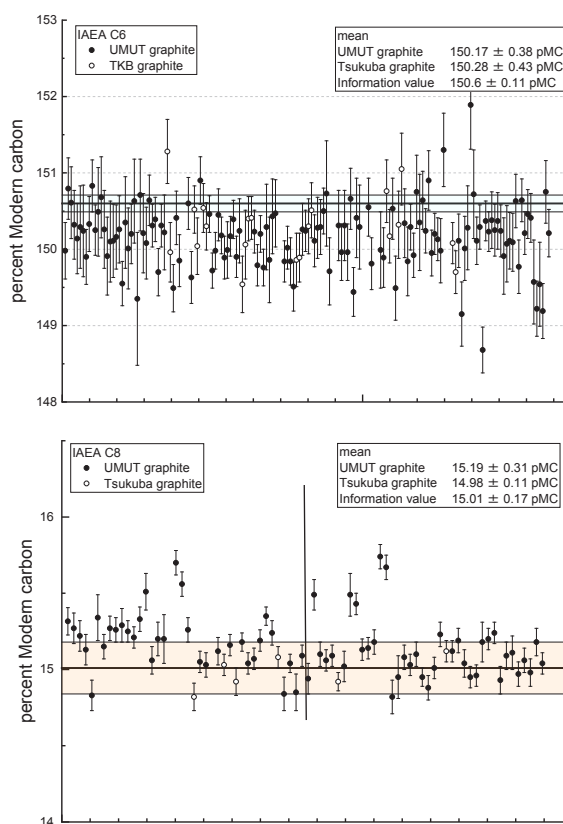


図 3 IAEA C6(上図)、C8(下図)の¹⁴C 測定値の変遷

pMC)に対して若干高い値と
なっている。図3には用いた
操作ブランクを IAEA C1 か
ら和光シュウ酸に変更した時
期を縦線で示したが、C1 を
用いていた時期と比較して、
和光シュウ酸を用いてからは
数点の例外はあるものの、
推奨値とよく一致するよう
になっている。このことから、
燃焼法の操作ブランクとして
は C1 より和光シュウ酸を用
いることで正しい ^{14}C 値が
得られていることがわかる。

4-3. 未知試料の測定精度

図4には未知試料の ^{14}C
年代値に対する誤差を年度
ごとに分けて示した。未知
試料測定開始当時の 2015
年度や 2016 年度の初めは
誤差の大きなものが散見さ
れるが、2017 年度に入り、
年度当初のメンテナンス以
降は非常に安定した測定が
できている。

5. まとめ

2015 年 12 月に未知試料
の測定を始めて以来、2017
年 11 月までに未知試料の
測定数は 2000 点にまで達
した。この間、いくつかの
トラブル対処により、測定
品質も向上し、測定試料
数も徐々に増加している。
今後も測定試料調整過程
も含めた体制の充実を図
り、放射性炭素年代測定
を利用した研究促進に貢
献していきたい。

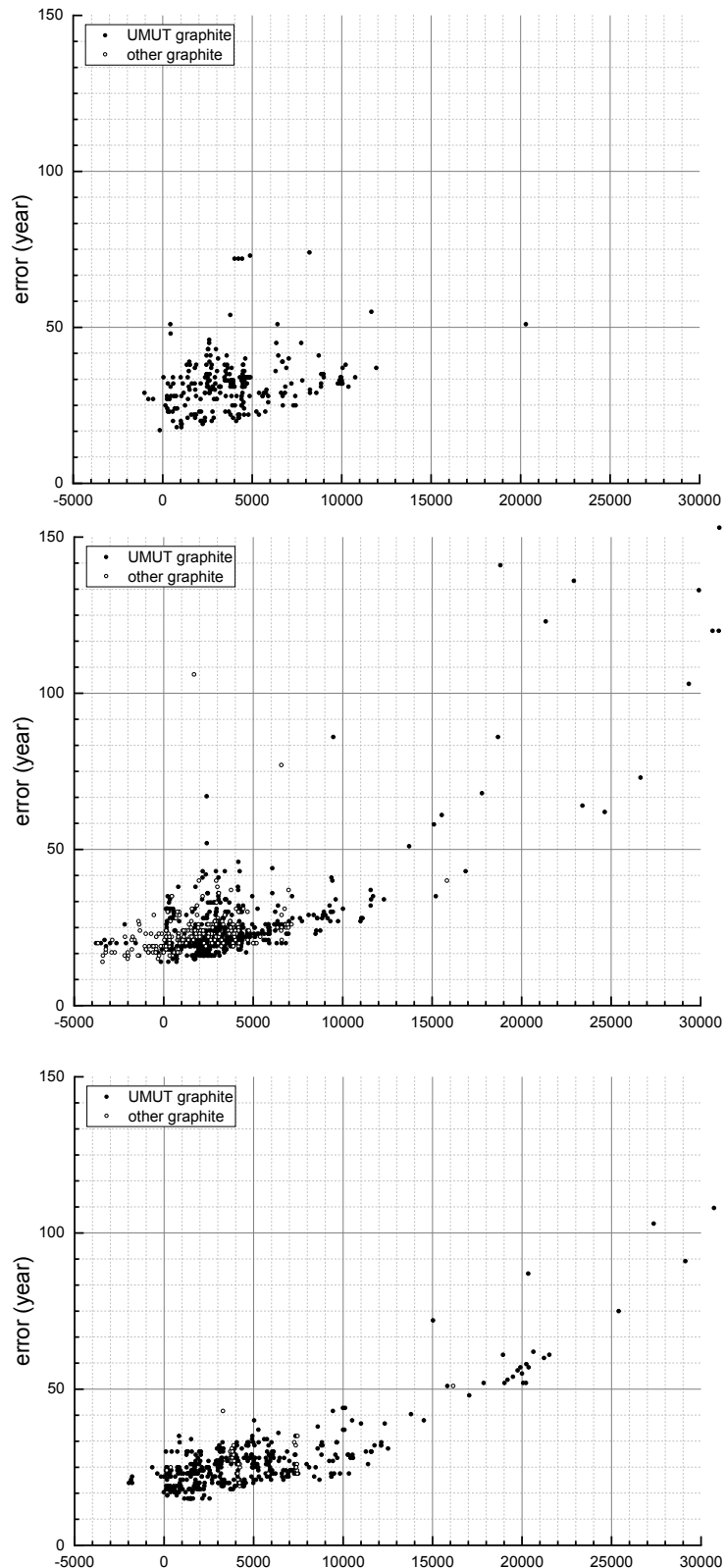


図4 未知試料の ^{14}C 年代値に対する誤差
(上:2015 年度、中:2016 年度、下:2017 年度)

2.10 山形大学高感度加速器質量分析センターの現状 2016-2017

Present status of YU-AMS 2016-2017

森谷 透^{1*}・武山美麗¹・木村弘志¹・設楽理恵¹・
佐藤里美¹・門叶冬樹¹・櫻井敬久¹・豊口禎子²
T. Moriya^{1*}, T. Takeyama¹, K. Kimura¹, R. Shitara¹,
R. Sato¹, F. Tokanai¹, H. Sakurai¹, T. Toyoguchi²

¹山形大学 高感度加速器質量分析センター
(Center for Accelerator Mass Spectrometry, Yamagata Univ.).

²山形大学 医学部附属病院
(University Hospital, Faculty of Medicine, Yamagata Univ.).

*Correspondence to: Toru Moriya; E-mail: moriya@sci.kj.yamagata-u.ac.jp

Abstract

An accelerator mass spectrometry (AMS) system and an automated graphitization line were installed at Yamagata University (YU) in 2009. In March 2014, a second automated graphitization line and an additional ion source for the YU-AMS system were installed. Performance tests on the YU-AMS system were carried out by measuring the C-series standard samples (C1-C9) and oxalic acid II (HOxII) obtained from IAEA and NIST, respectively. In this paper, we present the status of the YU-AMS system.

Keywords: YU-AMS; Ion source; graphitization line

1. はじめに

山形大学では2010年3月にコンパクトAMSシステム (NEC 1.5 SDH-1) 及びグラファイト作製システム (YU-AMS) を山形県上山市にある山形大学総合研究所に導入し [1,2], 2011年2月に山形大学高感度加速器質量分析センターとして運営を開始した。

本センターに導入した¹⁴C濃度測定用グラファイト作製システムは、元素分析計 (Elementar 社製、Vario MICRO cube)、質量分析計 (IsoPrime 社製)、ガラス真空ラインで構成された自動型システムである [3,4]。このグラファイト作製システムでは、月平均10回の処理が可能であり、年換算で2,400個のグラファイト作製が一人のマンパワーで可能である事がわかった。また、グラファイト作製の過程で懸念された同位体分別効果は、標準試料の $\delta^{13}\text{C}$ 測定を行った結果からほとんどなく、測定に影響がない事が示された [4]。

2013年度は、文部科学省教育研究力強化基盤整備費により新しいグラファイト作製システムとイオン源システムを導入した。グラファイト作製システムは、元素分析計 (Elementar 社製、Vario MICRO cube) とガラス真空ラインで構成された自動型システムである。この自動型システムの特徴は、20サンプルのガス化・回収までを6時間で行うことができる点である。またAMSシステムに導入した新型イオン源システム (MC-SNICS II) は、これまでと同様の40試料が装填できるセシウムスパッタ型負イオン源である。また、2014年度にはガラスラインを手動モードで操作するリン酸処理システムを導入し、本システムを用いて貝殻等の試料のグラファイト化も安定に行っている。

2. YU-AMS 運用状況

YU-AMS の年間測定数と 2010 年度から 2017 年 12 月末時点での測定数累計を図 1 の左に、測定カテゴリー別合計を図 1 の右に示す。2016 年度は標準試料も含め 2,131 点の測定を行い、累計測定数は 15,000 点を超えた。測定試料をカテゴリー別にまとめると、年輪・植物片が 72.3%と 1 番多く、次いで炭化物 (9.2%)、土壌 (6.2%) であった。

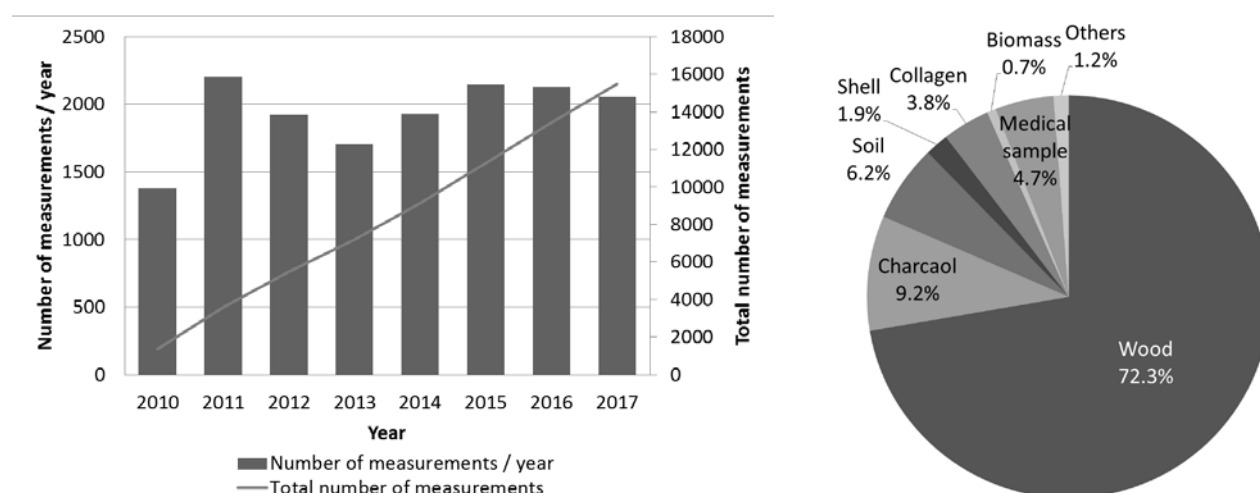


図 1 YU-AMS の年間測定数と累計数 (左図)、測定カテゴリー別合計 (右図)

3. YU-AMS システムの安定性評価

本センターでは、AMS システムとグラフィット作製システムの安定性評価のため、IAEA (国際原子力機関) が提供する C1 から C9 の試料の測定を行った。文献値と測定結果を表 1 に示す。IAEA-C2 から C9 の測定結果は、IAEA-C1 のバックグラウンド値を引いたものである。測定結果と文献値は良い一致を示し、本システムの安定性を評価することができた。

表 1 IAEA-C1 から C9 の文献値と測定結果の比較

Sample type	Consensus value IAEA standard [pMC]	Measured value YU-AMS system [pMC]
IEAE-C1	0±0.02	0.20±0.01
IEAE-C2	41.14±0.03	41.77±0.11
IEAE-C3	129.41±0.06	129.76±0.20
IEAE-C4	0.20 - 0.44	0.06±0.01
IEAE-C5	23.05±0.02	23.10±0.07
IEAE-C6	150.61±0.11	150.28±0.21
IEAE-C7	49.53±0.12	49.52±0.11
IEAE-C8	15.01±0.17	15.00±0.06
IEAE-C9	0.12 - 0.21	0.16±0.01

また、2010 年度から 2017 年 12 月までに測定した IAEA-C7 を図 2 に示す。破線は文献値のエラーである。平均値 49.54 ± 0.14 pMC であり、文献値 49.53 ± 0.12 pMC と良い一致を示し、長期的に安定した測定を行っていることを確認した。

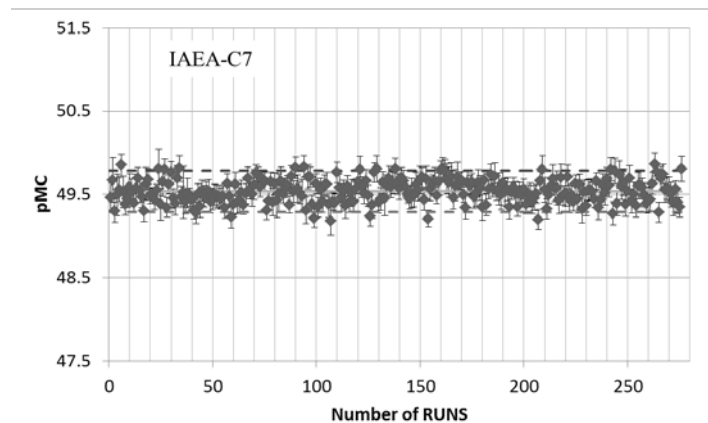


図 2 IAEA-C7 を用いた長期安定性評価

4. トラブルおよびメンテナンス

2016 年 12 月のタンク開放によるメンテナンス時に、フランジのエッジ部分の鈍りにより真空保持が困難になるトラブルが発生した。AMS システムの加速タンク HE 側とビームライン接続部分の ConFlat フランジを図 3 に示す。そのため、21 mm 厚のステンレススチール板から ConFlat フランジを機械加工し、旧フランジを切り取った部分に溶接を行った。リークテストの後、ビームラインへの取り付けを行った。

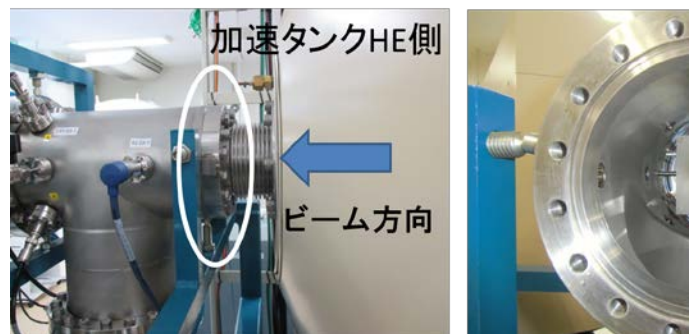


図 3 ConFlat フランジとフランジのエッジ部分の写真

また、2017 年 5 月に AMS システムを設置している部屋の空調機 (ACP) が故障した。空調機の設定温度 20℃に対し、実際の室温は図 4 の左の様に $21.2 \pm 0.5^\circ\text{C}$ と不安定になった。そのため、空調機の点検、冷媒漏えい部分の補修を行い、図 4 の右の様に $19.9 \pm 0.1^\circ\text{C}$ と安定することを確認した。

定期メンテナンスは、アイオナイザー交換作業を計 5 回、約 13 か月間使用した SSD の交換作業を行い、その他のメンテナンスは、2016 年 12 月に IDLE PULLEY の交換、2017 年 3 月にアイオナイザーのリビルドを行った。

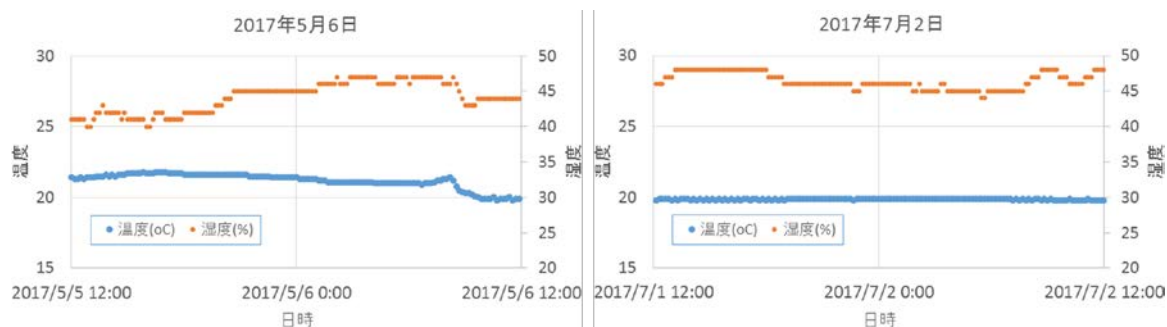


図4 ACP 修繕前の AMS 装置部屋の温度変化 (左) と修繕後の温度変化 (右)

謝辞

AMS システムとグラフィット作製装置の保守と運転のために、伯東株式会社の齋藤氏、高橋氏、村田氏、遠藤氏、庵下氏、ジャスコインターナショナル株式会社の大久保氏、井上氏、杉原氏に大変お世話になりました。また、株式会社パレオ・ラボの伊藤氏、中村氏、廣田氏からは、AMS 運営において多くの支援をいただきました。ここに記して、深く感謝します。

参考文献

- 1) “Compact AMS system at Yamagata University”, F. Tokanai et al., AIC Conf. Proc., 1336, 70-74, 2011.
- 2) “Present Status of the YU-AMS System, Yamagata University”, F. Tokanai et al., Radiocarbon, 55, 251-259, 2013.
- 3) “Automatic Sample Combustion and CO₂ Collection System for AMS-¹⁴C”, K. Kato et al., Radioisotopes, 61, 469-473, 2012.
- 4) “Automated sample combustion and CO₂ collection system with IRMS for ¹⁴C-AMS in Yamagata University, Japan”, K. Kato et al., Radiocarbon, 56, 327-331, 2014.

2.11 イオンチャネリングを利用した同重体分別技術の開発 Development of Isobar Separation Method based on Ion Channeling

松原章浩^{1*}・藤田奈津子²・三宅正恭²・磯崎信宏¹
A. Matsubara^{1*}, M. Miyake², N. Fujita², and N. Isozaki¹

¹株式会社ペスコ, ²日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター
¹PESCO CO., Ltd., ²Tono Geoscience Center, JAEA

*Correspondence to: A. Matsubara; E-mail: matsubara.akihiro@jaea.go.jp

Abstract

An application based on the passage of channeled ions through a crystalline membrane is proposed for an isobar separation method in accelerator mass spectrometry (AMS). A channeling degrader for isobar separation improves the ion transmission from the membrane to a detector even with the use of a thick membrane to create sufficient difference in energy between an AMS nuclide and its isobar. A proof-of-principle experiment showed its potential comparative advantage.

Keywords: isobar separation; ion channeling; degrader; ion transmission; JAEA-AMS-TONO.

1. はじめに

AMS の同重体分別法にディグレーダーと呼ばれる方法がある[1]. これは、イオンビームを薄膜に通し、阻止能の原子番号依存性より目的核種と同重体のエネルギーの差を作り両者を分別する方法である。ディグレーダー膜は、図 1 に示すように、通常、分析電磁石と静電偏向器の間に設置される。この方法は、イオンのエネルギーが低すぎアブソーバーが使用できない場合や、同重体入射率が電離箱の限界 (5 kHz 程度) を超える場合などに有効とされる。ディグレーダー膜には、従来、厚さ数十 nm の非晶質膜 (代表的には窒化ケイ素の膜) が用いられている。著者らは、ディグレーダー膜として結晶薄膜を用い、そこに現れうるイオンチャネリングを同重体分別に利用する技術を開発している[2]. イオンチャネリングの利点は二つある。一つはビーム発散の抑制である。イオンチャネリングでは、イオンが結晶の空隙を進むため、角度ストラグリングが格段に低減する。もう一つは十分な阻止能である。イオンチャネリングでの阻止能はイオンと結晶中の電子との相互作用により、非チャネリングの場合の 1/2 程度確保できる[3]. この二つの利点により、測定目的核種と同重体のエネルギーの差を十分作ることで厚さ 1 μm 程度の比較的厚い膜でもビーム広がりが抑えられ分別能力が向上すると考えられる。ここでは、この原理実証について報告する。

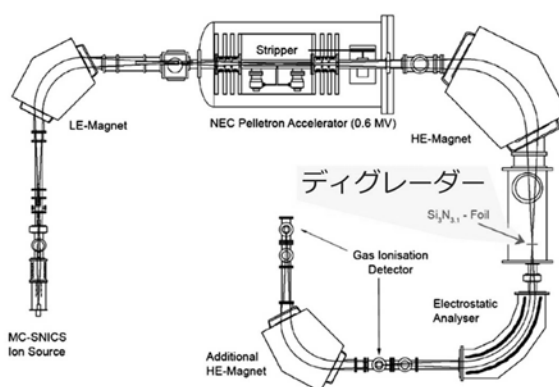


図 1 ディグレーダー付 ¹⁰Be-AMS 装置[1]. Additional HE-Magnet は膜でのエネルギーストラグリングで混入する ⁹Be を除去するために追加された電磁石である。

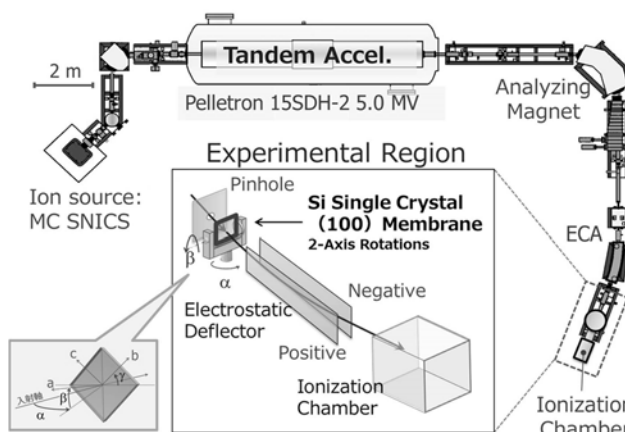


図 2 JAEA 東濃地科学センターの AMS 装置の模式図、および実験領域。

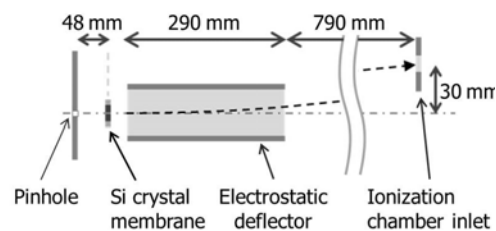


図 3 実験領域のビームライン機器の配置。

2. 実験方法及び実験装置

実験装置として日本原子力研究開発機構(JAEA) 東濃地科学センターの加速器質量分析装置(最大ターミナル電圧 5 MV)を使用した(図 2). 実験では, ターミナル電圧は 1 MV とし, 2.44 MeV の $^{10}\text{Be}^{2+}$ とその同重体 $^{10}\text{B}^{2+}$ を厚さ 2 μm , 縦横 4.8×4.8 mm の Si 単結晶薄膜に入射した後, 静電偏向器(印加電圧 V_D)で軌道を曲げ電離箱に導く系を設定した. Si 単結晶薄膜の入射面は (100)面とし, この角度調節は 2 軸回転のゴニオメーターで行った. 角度の定義としては, 図 2 に示すように [100]軸チャネリングが起きる条件, すなわちビーム軸と薄膜のなす角が直角になる時を $\alpha = \beta = 0^\circ$ とした. 後述の非チャネリング条件では, $\alpha = 8.5^\circ$, $\beta = 5^\circ$ とした. 本実験では, ベリリウム試料として Nishiizumi 作製の標準試料(STD01-5-1)[4]を用いた. 加速器に入射する BeO^- 電流は 1-2 μA であった.

実験領域のビームライン機器の配置図を図 3 に示す. Si 単結晶薄膜の手前 48 mm の位置に内径 1 mm のピンホールを設置した. これにより, イオンビームの発散角は, 0.06° (1 mrad)未満に制限した. この角度は, 2.44 MeV での $^{10}\text{Be}^{2+}$ と $^{10}\text{B}^{2+}$ の臨界角 0.5° よりも小さいため, イオンのほとんどがチャネリング可能となる. 電離箱の位置は中心軸から偏向方向に 30 mm ずらした. 電離箱の入射窓は, 厚さ 50 nm の Si_3N_4 膜とした. なお, Si 単結晶薄膜をビームから遠ざけビームを電離箱に直接入射し, ^{10}Be と ^{10}B の入射比 ($^{10}\text{Be}/^{10}\text{B}$ 比)を測定した結果, 7×10^{-5} であった. これは, Si 単結晶薄膜に入射する $^{10}\text{Be}/^{10}\text{B}$ 比を与える.

3. 実験結果及び考察

図 4 に静電偏向器への印加電圧 V_D に対する規格化計数の変化(以後, 偏向特性)を示す. 図 4(a)に示すチャネリング条件での変更特性には, 荷電分布の構造が比較的明瞭に現れていることが分かる. さらに, $^{10}\text{B}^{2+}$ と $^{10}\text{Be}^{2+}$ のピークを与える V_D のずれは, 膜での両者の阻止能の違いにより, エネルギーの差が十分作られていることを示唆する. これにより, 特に $V_D = 2.5 \text{ kV}$ 付近では ^{10}B の抑制, ^{10}Be の増加が見られ, 同重体分別能力が高くなる. この時, ^{10}B に対する ^{10}Be の計数の比, $^{10}\text{Be}/^{10}\text{B}$ 比は 3×10^{-3} に達する. したがって, 前節に述べた元の入射比 7×10^{-5} から 40 倍程度改善したことになる. 図 4(b)に示す非チャネリング条件では, 荷電分布の構造ははっきりしない. 図 4(c)は $^{10}\text{Be}/^{10}\text{B}$ 比の V_D 依存性である. チャネリング条件での最大値 3×10^{-3} は, 非チャネリング条件の一桁程度高くなっている. これらは, チャネリング条件では, 前に述べた所期の二つの効果, すなわち(i)チャネリン

グによる大角散乱の抑制と(ii)十分なディグレーダー機能が現れたことによる。

(i) チャネリングによる大角散角の抑制は、チャネリング条件で観測されたイオンビームの幅と矛盾しない。電離箱の入射口で測定された ^{10}B のビーム幅[最大の $1/e^2$ を与える位置の全幅 $\text{FW}_{e^{-2}\text{M}}$]は 9.2 mm であった。一方、非チャネリング条件では、そのビーム幅は 100 mm 程度に達した。したがって、チャネリング条件で得られた荷電分布の構造は、チャネリング条件での細いビームによる空間分解の向上でもたらされたと考えられる。実際、そのビーム幅に基づくイオン軌道の単純な解析的計算は、得られた偏向プロファイルを再現する。そのようなチャネリングと非チャネリングのビーム幅の大きな違いは、図 4(a) 及び図 4(b)に示すように、規格化計数がチャネリング条件で非チャネリング条件の数十倍になる事実とも矛盾しない。

(ii) 十分なディグレーダー機能は、前にも述べた通り、図 4(a)に示す $^{10}\text{Be}^{2+}$ 及び $^{10}\text{B}^{2+}$ のピークの明瞭な分離から分かるが、この状況は、図 5 に示す電離箱で得られたエネルギースペクトルのピークの分離と定性的に一致する。同図の ^{10}Be ピークの同定は、ブランク試料を用いた場合のスペクトル(同図(b))で ^{10}Be のピークが消失したことによって裏付けられる。

チャネリング・ディグレーダーの性能を客観的に把握するために、非チャネリングの場合に加え、従来の窒化ケイ素膜を使用した場合(以下、従来法)の同重体分別の性能と比較した(表 1)。ディグレーダー膜から電離箱への透過率は、チャネリング条件の場合、非チャネリング条件よりも一桁以上高く、従来法の倍に近いことが分かる。一方、エネルギー分離比は、従来法で著しく低くなっている。従来法は、エネルギー分離比よりも透過率を重視していることが分かる。ところで、同重体分別性能の指標として、その透過率とエネルギー分離比の積と置くと、この値は、非チャネリング条件及び従来法に比べチャネリング条件で一桁以上高くなっていることが分かる。

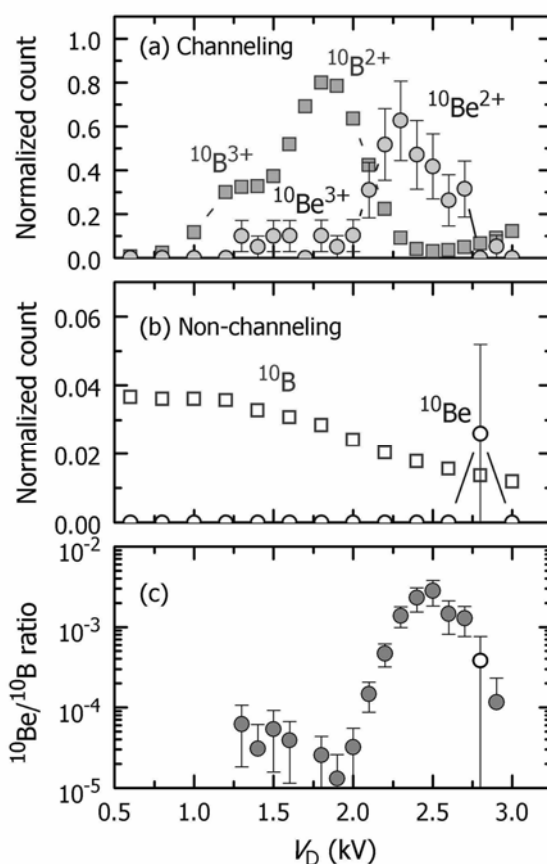


図4 偏向器への電圧 V_D に対する規格化計数の変化。 ^{10}Be の計数は 5000 倍拡大。(a) チャネリング条件, (b) 非チャネリング条件, (c) $^{10}\text{Be}/^{10}\text{B}$ 比の V_D 依存性。中塗り: チャネリング条件, 白抜き: 非チャネリング条件。

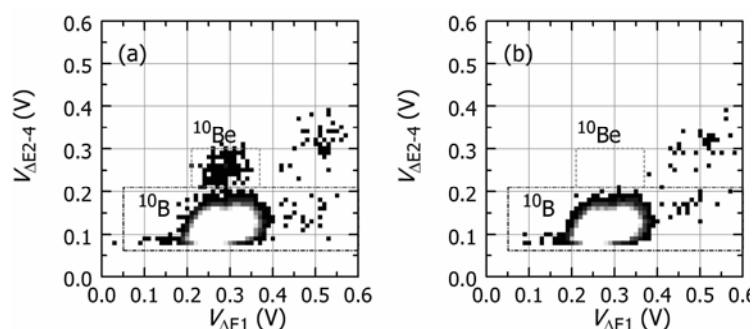


図5 電離箱によるスペクトル。(a) Be01-5-1, (b) BLK。

表 1 同重体分別性能比較.

	チャネリング	非チャネリング	参考：従来方法[1]
ディグレーダー膜	Si単結晶薄膜 2 μm 厚		$\text{Si}_3\text{N}_{3.1}$ 膜 67 nm厚
$^{10}\text{Be}/^{10}\text{B}$ 比	$(3\pm 1)\times 10^{-3}$ ¹⁾	$(4\pm 4)\times 10^{-4}$ ²⁾	4×10^{-2}
膜-電離箱の透過率 ①	26% ³⁾	1% ³⁾	15% ⁴⁾
エネルギー分離比 $(E_{\text{Be}}-E_{\text{B}})/E_0$ ②	12% ⁵⁾	16% ⁶⁾	2%
同重体分別性能 ①×② (ローカルな定義)	320	16	30

¹⁾ $V_D=2.5$ kV での値. ²⁾ $V_D=2.8$ kV での値. ³⁾ $^{10}\text{B}^{2+}$ での最大値. ⁴⁾ $^{10}\text{Be}^{2+}$ の値. ⁵⁾ $E_{\text{Be}}=1.4$ MeV, $E_{\text{B}}=1.1$ MeV (測定結果・フィッティング), ⁶⁾ $E_{\text{Be}}=0.9$ MeV, $E_{\text{B}}=0.5$ MeV (測定結果・フィッティング).

次に、チャネリング・ディグレーダーの実用性を、計数効率の面から議論する. この実験で $^{10}\text{Be}/^{10}\text{B}$ 比の最高値 (3×10^{-3}) が得られたとき、 ^{10}B 計数率は 65 Hz であった. この低い計数率は、膜の前に位置するピンホールでビーム強度が弱められた結果である. この実験でのピンホールの役割は、イオンビームの平行性を高めるものでもあるが、図 4(a) に示したような ^{10}B が抑制される結果を実証するためにビーム強度を減少させるものであるという役割が大きい. ところで、ピンホールのない場合のビームの広がり角は、上述したチャネリングの臨界角よりも小さいと考えられるため、ピンホールがない場合でも、ほとんどのイオンがチャネリングできると期待できる. 仮にピンホールを除去することで、 ^{10}B の計数率が 2 桁以上、例えば約 5 kHz の限界値まで増加した場合、 $^{10}\text{Be}/^{10}\text{B}$ 比の最高値 3×10^{-3} に対応する ^{10}Be 計数率は約 15 Hz となる. この値は、典型的な 5 MV の AMS システムの計数率の約 20% に相当する. なお、本実験結果は、わずかなイオン偏向で得られたものであり、しかもイオン光学系は考慮されていない. したがって、偏向の程度を大きくし、イオン光学系を最適化すると、チャネリング・ディグレーダーの計数効率を大幅に改善することが期待できる.

4. 結論

AMS の同重体分別の方法として、チャネリング・ディグレーダーを提案し、この原理実証を行った. この結果、所期の二つの効果、すなわちイオンの大角散乱の抑制による膜から電離箱までの高い透過率、そして十分なディグレーダー機能による ^{10}B と ^{10}Be の高いエネルギー分離比が得られることが分かった. したがって、チャネリング・ディグレーダーでは、比較的厚い膜でエネルギー差を大きくしても、チャネリングでビーム広がり低減し分別能力が向上することが実証された. 上述で定義した同重体分別能力は、チャネリング・ディグレーダーの場合、従来法に比べ一桁以上高いことが分かった. 今後は、実用試験段階として、単結晶薄膜の前段に設置していたピンホールを取り除き、ビーム強度を実際の大きさに近づけ、本方法の実用性を明らかにする.

謝辞

本研究開発は、科学研究補助金 基盤研究 C (17K05127, 平成 29 年度～平成 31 年度) の支援を受けました. JAEA-AMS-TONO のスタッフ諸氏のご協力に感謝いたします.

参考文献

- [1] A. M. Muller, et al., Nucl. Instr. and Meth. B 266 (2008) 2207.
- [2] A. Matsubara, et al., submitted to Nucl. Instr. and Meth. B.
- [3] D. V. Morgan, Channeling (John Wiley and Sons, 1973).
- [4] K. Nishiizumi, et al., Nucl. Instr. and Meth. B 258 (2007) 403.

2-12 リアクションセル ICP-MS、ICP-MS/MS のための ^{129}I 標準溶液の作製 Preparation of ^{129}I standard solutions for reaction cell ICP-MS and ICP-MS/MS

本多真紀^{1*}・高久雄一²・鹿籠康行³・中野かずみ³・松崎浩之⁴・

笹 公和¹・高橋 努¹・細谷青児¹・末木啓介¹

Maki Honda^{1*}, Yuichi Takaku², Yasuyuki Shikamori³, Kazumi Nakano³, Matsuzaki Hiroyuki⁴,
Kimikazu Sasa¹, Tsutomu Takahashi¹, Seiji Hosoya¹, Keisuke Sueki¹

¹筑波大学 AMS グループ (AMS group, University of Tsukuba)

²環境科学技術研究所 (Institute for Environmental Science)

³アジレント・テクノロジー (Agilent Technologies)

⁴東京大学総合研究博物館 AMS 分析室 (MALT, The University of Tokyo)

**Correspondence to: Maki Honda; E-mail: m-honda@ied.tsukuba.ac.jp*

Abstract

AMS has been recognized as the most reliable analytical method for the isotopic ratio $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$, and its limit of detection reaches as low as $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} < 10^{-14}$. Recently triple quadrupole ICP-MS (ICP-MS/MS) is becoming an alternative analytical method for the rather high isotopic ratio range, $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} > 10^{-8}$. Absolute ICP-MS/MS measurements require reliable standard materials for calibration. In this study, ^{129}I standard solutions “tRIC-1” and “tRIC-2” were prepared from a laboratory-stored ^{129}I solution and the ^{129}I radioactivity standard of NIST SRM 4949d, respectively. The isotopic ratios of $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ were determined to be $(6.54 \pm 0.23) \times 10^{-5}$ for tRIC-1 and $(3.41 \pm 0.12) \times 10^{-6}$ for tRIC-2 from the measurement results of AMS and ICP-MS/MS. The ^{127}I concentrations were determined by ICP-MS/MS to be $9.51 \pm 0.04 \mu\text{g g}^{-1}$ for tRIC-1 and $831 \pm 7 \mu\text{g g}^{-1}$ for tRIC-2. These ^{129}I standard solutions “tRIC-1” and “tRIC-2” were demonstrated to be applicable standards when using ICP-MS/MS. From the ^{129}I and ^{127}I concentrations each calibration line in ICP-MS/MS was used to calculate the $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ isotopic ratios which were $(6.51 \pm 0.26) \times 10^{-5}$ for tRIC-1 and $(3.34 \pm 0.13) \times 10^{-6}$ for tRIC-2. These isotopic ratios of $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ agree with the value from AMS. It was proved that the two home-made standard solutions could be measured using the ICP-MS/MS and reliable isotopic ratios of $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ were obtained.

Keywords: ^{129}I ; AMS; ICP-MS/MS; 標準溶液

1. はじめに

放射性核種である ^{129}I (半減期 1570 万年) は自然に生成される他に、使用済み核燃料再処理工場の稼働など様々な核活動によって継続的に自然環境に放出されている。核活動による継続的な ^{129}I の放出によって、地球表層環境での ^{129}I 濃度は上昇しており、特に核燃料サイクル施設近傍では ^{129}I 濃度が高いことが分かっている[1]。AMS は NIST の標準物質の値付けに用いられており、最も信頼のおける ^{129}I の分析方法であるとされているが、近年では、高濃度の ^{129}I ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I} > 10^{-8}$) の分析には、リアクションセル ICP-MS やタンデム四重極型リアクシ

ンセル ICP-MS (ICP-MS/MS) が利用され始めている [2, 3]。大型装置である AMS と比較すると、ICP-MS/MS や ICP-MS はベンチトップ型のシンプルな構造で、装置管理が容易である。そのため、サイクル施設近傍での平常時の環境モニタリング等のルーチン分析に最適である。更に、これらの装置を液体クロマトグラフィー等と組み合わせることにより、 ^{129}I の定量だけでなく化学形態分析も可能となる。測定には信頼のおける標準物質が必要不可欠であるが、現在では $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ が値付けされた認証標準物質の頒布が中止してしまっている。そこで本研究では、リアクションセル ICP-MS、ICP-MS/MS 用の ^{129}I 標準溶液を作製するために、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ が異なる 2 種類の ^{129}I 標準溶液 (tRIC-1, 2) を調製し、AMS で値付けした[4]。また、ICP-MS/MS による ^{129}I 分析の確度を確認するため、ICP-MS/MS の測定結果 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) を AMS と比較した。

2. ^{129}I 標準溶液 (tRIC-1, 2) の調製

tRIC-1 は、研究用原子炉で作成した ^{129}I の結晶を溶解した水溶液 (0.1 M KOH, 0.1 M K_2SO_3 , 1 mg mL^{-1} ^{127}I , 0.5 Bq mL^{-1} ^{129}I) 10.1 g を PFA ボトルに分取し、2% TMAH (TAMAPURE-AA, 多摩化学) で希釈して全量を 1015 g とした。tRIC-2 は NIST SRM 4949d (^{129}I 2.747 ± 0.030 kBq g^{-1}) 10.1 mg を PFA ボトルに分取し、ヨウ素担体 (Orion Ionplus Application Solution Iodine Standard 0.1 M, Thermo Scientific, $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} < 2 \times 10^{-13}$) 54 g と Na_2SO_3 1.3 g を添加し、これに超純水 (18.2 M Ω cm) を加えて全量を 1510 g とした。

調整した tRIC-1 をガラスビーカーに 0.1 mL 分取し、ヨウ素 698 mg (Orion Ionplus Application Solution Iodine Standard 0.1 M を 55 mL)、1% Na_2SO_3 0.1 mL を添加し $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ を希釈した。この溶液に 50% AgNO_3 3 mL、conc. HNO_3 0.2 mL を添加してハロゲン化銀の沈殿を生成し、この沈殿を 10% アンモニア水、超純水で洗浄して AgI を精製した。tRIC-2 も同様の手順で AgI を精製し、精製した AgI を 60°C で乾燥して AMS 用のターゲットとした。

3. $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 、 ^{129}I 濃度の求め方と拡張不確かさ

東京大学 MALT の ^{129}I -AMS システムのバックグラウンドは $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} < 2 \times 10^{-14}$ であり、測定結果 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) は標準物質 (Z94-0596, PRIME Lab.) で規格化した。Z94-0596 の最新の公称値は $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 6.54 \times 10^{-11}$ [5] であり、この値には 2.9% (2σ) の不確かさがある[6]。tRIC-1, 2 それぞれの $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は ICP-MS/MS (^{127}I 濃度) と AMS の測定結果より求めた。1 回のビームタイムでの $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は、4 個又は 5 個のカソードに充填した AgI の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ を平均して求めた。tRIC-1 の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は 5 回のビームタイムで得られた $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ を平均し、この $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ と ^{127}I 濃度より ^{129}I 濃度を求めた。tRIC-2 は 1 回のビームタイムの測定結果より $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ を求め、この $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ と ICP-MS/MS で求めた ^{127}I 濃度より ^{129}I 濃度を求めた。 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 、 ^{129}I 濃度に対する 2σ での拡張不確かさは、AMS の統計誤差 2.0%、AMS の標準物質の誤差 2.9%、ICP-MS/MS の統計誤差 $< 1\%$ より、3.6% となる。

ICP-MS/MS (Agilent 8800) の測定条件を表 1 に示す。質量差別効果の補正ができないため、本実験で

表 1 ICP-MS/MS の測定条件

Sample introduction system	Parameters
Plasma	
RF power	1550 W
Plasma gas flow rate	15 L min^{-1}
Auxiliary gas flow rate	0.90 mL min^{-1}
Nebulizer gas flow rate	1.01 mL min^{-1}
Solution uptake rate	0.1 mL min^{-1}
Spray chamber temperature	2°C
Sampling depth	8 mm
Lens	
Extraction lens 1, 2	0 V, -200 V
Cell focus	2.0 V
Cell entrance	-50 V
Cell exit	-60 V
Deflection	2.0 V
Plate bias	-60 V
Cell	
O_2 gas flow rate	0.8 mL min^{-1}
Octopole bias	-5.0 V
Octopole RF	200 V
Energy discrimination	-7.0 V
Other	
Integration time for $m/z = 127, 128, 129$	0.5, 1.0, 10 s
Repetition, sweep	10, 100 times

は ^{127}I 、 ^{129}I それぞれの検量線を作成して定量し、 ^{127}I と ^{129}I の濃度より原子数比 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) を求めた。 ^{127}I の検量線は Orion Ionplus Application Solution Iodine Standard 0.1 M を、 ^{129}I は NIST SRM 4949d を希釈して作成した。ICP-MS/MS では、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ に対する 2σ での拡張不確かさは、 ^{127}I の統計誤差 $< 1\%$ 、 ^{129}I の統計誤差 $< 3.8\%$ 、NIST SRM 4949d の誤差 1.1% より、 4.0% となる。 ^{129}I 濃度の拡張不確かさは、 ^{129}I の統計誤差より 4.0% (2σ) である。

4. 結果と考察

AMS において tRIC-1、2 は再現よく測定できた (図 1)。ICP-MS/MS (^{127}I 濃度) と AMS の測定結果から、tRIC-1、2 の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は $(6.54 \pm 0.23) \times 10^{-5}$ 、 $(3.41 \pm 0.12) \times 10^{-6}$ 、 ^{129}I 濃度は $4.13 \pm 0.15 \text{ mBq g}^{-1}$ ($0.622 \pm 0.022 \text{ ng g}^{-1}$)、 $18.8 \pm 0.7 \text{ mBq g}^{-1}$ ($2.83 \pm 0.10 \text{ ng g}^{-1}$) となった。

ICP-MS/MS では、図 2 の検量線より tRIC-1 の ^{127}I 、 ^{129}I 濃度を求め、それぞれ $9.51 \pm 0.04 \mu\text{g g}^{-1}$ 、 $0.629 \pm 0.025 \text{ ng g}^{-1}$ ($4.11 \pm 0.16 \text{ mBq g}^{-1}$)、tRIC-2 はそれぞれ $831 \pm 7 \mu\text{g g}^{-1}$ 、 $2.81 \pm 0.11 \text{ ng g}^{-1}$ ($18.4 \pm 0.7 \text{ mBq g}^{-1}$) となった。 ^{127}I 、 ^{129}I 濃度より、tRIC-1、2 の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は $(6.51 \pm 0.26) \times 10^{-5}$ 、 $(3.34 \pm 0.13) \times 10^{-6}$ となった。本実験での ^{127}I 、 ^{129}I の検出限界は 0.18 ng g^{-1} and 0.10 pg g^{-1} 、バックグラウンド相当濃度は 1.0 ng g^{-1} 、 0.28 pg g^{-1} であった。ICP-MS/MS で求めた $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は tRIC-1、2 共に AMS と良く一致している。従って、ICP-MS/MS による ^{129}I 分析で信頼のある測定値が得られることを示せた。本測定条件では ^{129}I の統計誤差が約 2% (1σ) であった。今後は、 ^{129}I の積分時間を増やすことで統計誤差を 2% 以下に抑え、AMS と同等の拡張不確かさまでに改善する。

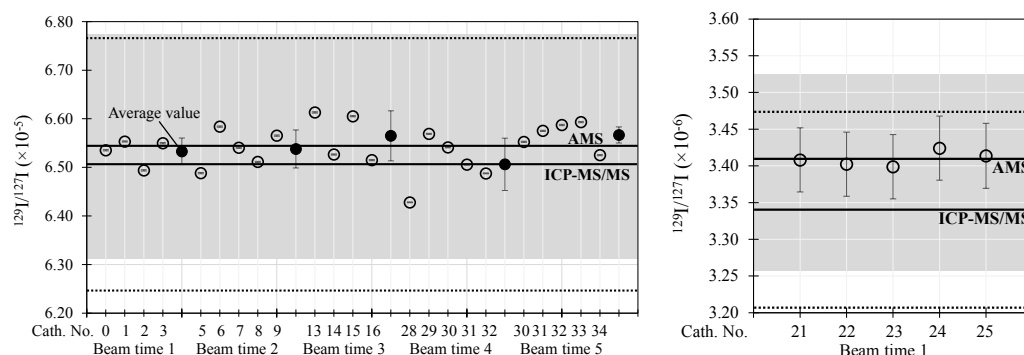


図 1 AMS による tRIC-1 (左)、tRIC-2 (右) の測定結果と ICP-MS/MS の測定結果。縦軸は標準溶液の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ に換算した値を示す。灰色の領域は AMS の 2σ での拡張不確かさ、点線は ICP-MS/MS の 2σ での拡張不確かさを示す。

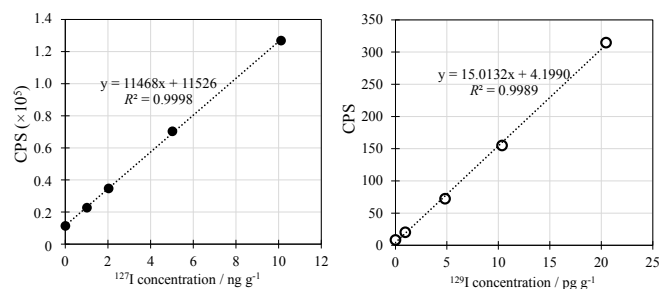


図 2 ICP-MS/MS による ^{127}I (Orion Ionplus)、 ^{129}I (NIST SRM 4949d) の検量線

5. まとめ

2 種類の ^{129}I 標準溶液 (tRIC-1、2) を調製し、最も信頼のおける分析方法である AMS で値付けた結果、tRIC-1 は $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 6.54 \times 10^{-5}$ ($\pm 3.6\%$, 2σ)、tRIC-2 は $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 3.41 \times 10^{-6}$ ($\pm 3.6\%$, 2σ) となった (表 2)。ICP-MS/MS の測定結果より tRIC-1、2 の ^{127}I 濃度は $9.51 \mu\text{g g}^{-1}$ 、 $831 \mu\text{g g}^{-1}$ ($\pm <1\%$, 2σ) となった。本研究で、リアクションセル ICP-MS、ICP-MS/MS に最適な信頼のおける標準溶液を作製できた。また、ICP-MS/MS による ^{129}I 分析の確度を確認するために、ICP-MS/MS で tRIC-1、2 を測定した。その結果、tRIC-1 は $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 6.51 \times 10^{-5}$ ($\pm 4.0\%$, 2σ)、tRIC-2 は $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 3.34 \times 10^{-6}$ ($\pm 4.0\%$, 2σ) となった。ICP-MS/MS で求めた $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は AMS で求めた $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ と良く一致することから、ICP-MS/MS で信頼のある ^{129}I の分析ができることが示せた。

表 2 ^{129}I 標準溶液 (tRIC-1、2) の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 、 ^{127}I 、 ^{129}I 濃度

	AMS* ¹		ICP-MS/MS* ²		
	^{129}I [mBq g ⁻¹]	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ [atoms/atoms]	^{127}I [μg g ⁻¹]	^{129}I [mBq g ⁻¹]	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ [atoms/atoms]
tRIC-1	4.13 ± 0.15	$(6.54 \pm 0.23) \times 10^{-5}$	9.51 ± 0.04	4.11 ± 0.16	$(6.51 \pm 0.26) \times 10^{-5}$
tRIC-2	18.8 ± 0.7	$(3.41 \pm 0.12) \times 10^{-6}$	831 ± 7	18.4 ± 0.7	$(3.34 \pm 0.13) \times 10^{-6}$

*1 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 、 ^{129}I 濃度に対する 2σ での拡張不確かさは 3.6%

*2 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 、 ^{129}I 濃度に対する 2σ での拡張不確かさは 4.0%、 ^{127}I 濃度は < 1%

参考文献

- [1] Y. Muramatsu et al., *Quat. Geochronol.*, **3** (2008) 291 – 297.
- [2] A. V. Izmer et al., *J. Anal. At. Spectrom.*, **18** (2003) 1339 – 1345.
- [3] T. Ohno et al., *J. Anal. At. Spectrom.*, **28** (2013) 1283 – 1287.
- [4] M. Honda et al., *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **18** (2018) 1 – 4.
- [5] H. Matsuzaki et al., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, **361** (2015) 63 – 68.
- [6] P. Sharma et al., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, **123** (1997) 347 – 351.

2.13 簡易型自動グラファイト処理装置の開発

Development of simplified automatic graphitization system

大森貴之^{1*}・山崎孔平¹・板橋悠¹・尾寄大真¹・米田 穰¹

Takayuki Omori^{1*}、Kohei Yamazaki¹、Yu Itahashi¹、Hiromasa Ozaki¹、Minoru Yoneda¹

¹東京大学総合研究博物館 (The University Museum, The University of Tokyo)

**Correspondence to: T. Omori; E-mail: omori@um.u-tokyo.ac.jp*

Abstract

An original automated graphitization system developed, whose design concept features a simple mechanism with high flexibility at low cost. To simplify the automation system, consisting of an elemental analyzer and a vacuum line, minimalized vacuum line components, a single-board microcontroller for automation, and the Zn reduction method for graphitization were employed. Using this system, sample combustion and CO₂ purification of 10 samples could be finished in about 3 hr. The results of initial ¹⁴C measurements of reference materials (IAEA-C5, C6, C8, and ¹⁴C-free material) are in good agreement with the consensus values, and the background is below 0.2 pMC. This paper shows the possibility of easily advancing the use of low-cost laboratory-made automation for sample preparation in any laboratory.

Keywords: 放射性炭素年代測定; 試料調製; 自動処理システム; 亜鉛還元

1. はじめに

近年、放射性炭素 (¹⁴C) 年代測定を目的とした加速器質量分析計の研究開発では、装置の小型化や迅速分析に注目が集まり、よりカジュアルな ¹⁴C 測定に向けて技術改良が急速に進められている。このような測定技術の進展によって応用研究の高時間解像度化も促進され、¹⁴C 年代測定研究では大量のデータ生産が要請されるようになった。¹⁴C 年代測定を安定的に推進するためには、試料調製、とりわけグラファイト生成の効率化も必須となり、今日では、自動処理システムの開発も盛んに進められている。Ionplus 社や光信理化学製作所の開発する自動処理システムでは 1 日あたり最大 20 試料程度のグラファイト生成が可能であり、これまでの作業効率を革新的に向上させることができる。しかし、既存のシステムは、導入コストやランニングコストが非常に高価であったり、操作の煩雑さやシステム自体の自由度の低さなどから、多くの研究室で汎用的に運用するには難しさもある。

そこで、東京大学総合研究博物館放射性炭素年代測定室では、元素分析計 (vario ISOTOPE select、エレメンターUK 社製) を用い、様々な試料 (種類やサイズ) に対応可能な自由度と、シンプルな構造をコンセプトとした簡易型自動グラファイト処理装置の開発を完全内製で進めてきた。本稿では、システム概要について紹介する。

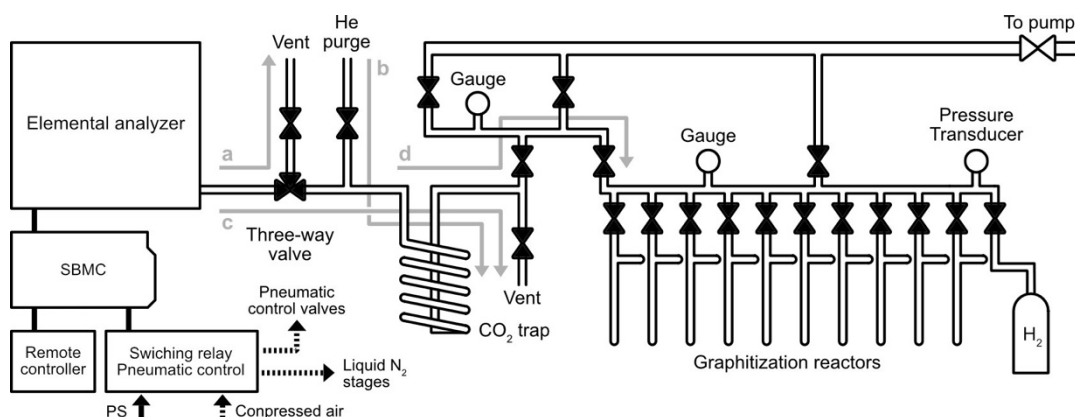


図 1 簡易型自動処理システムの概念図。図中矢印は図 2 で示される元素分析中のガス流路をあらわす。

2. 自動処理システムの概要

簡易型自動処理システム構築における基本的なコンセプトは、

- コンパクトさ
- 拡張性の高さ
- 低価格

とした。試料の燃焼から CO_2 の単離までは元素分析計を用い、真空ラインを使って CO_2 の還元までを行うプロセスは、従来の処理プロセスと大きな違いはない。しかし、メカニカルな操作を最小限にとどめ、システムをコンパクトに設計することで、トラブルが少なく、低コストな自動処理システム導入が期待できる。システム構築の鍵は、使用する真空ラインを最低限にと留めること、コントロールを市販のマイクロコントローラで行うこと、亜鉛を還元材としたグラファイト生成を採用することの 3 点である。

簡易型自動処理システムの概念図を図 1 に示した。マイクロコントローラは、主に元素分析計の CO_2 排出シグナルの受信、ニューマチックバルブの開閉をコントロールし CO_2 を真空ラインへ導入する役割を持つ。一連の動作は、マイクロコントローラに実装したプログラムにより自動的に実施される。 CO_2 還元には、Zn を用いたグラファイト化を採用することを想定し、処理プロセスとシステム構造を限りなく単純化した。プロセスが少なくメカニカルな動作をする極力省略することで容易にシステム構築が実現できるほか、マイクロコントローラ上のプログラムを書き換えれば多様な処理動作に対応することもできる。

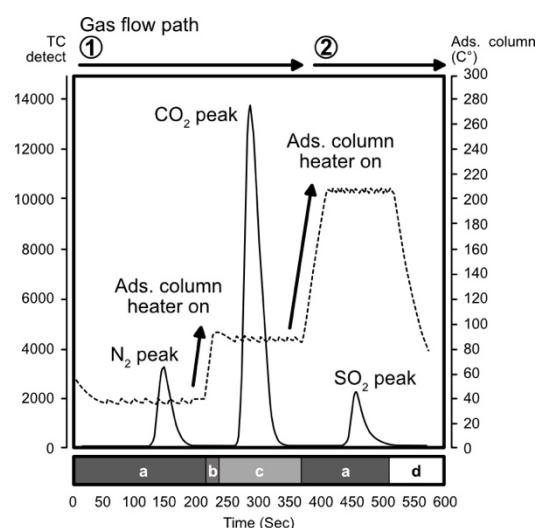


図 2 元素分析計によって分離定量される CNS。図下部には分析中における真空ライン内ガス流路を示した。

3. グラファイト生成

放射性炭素年代測定室では、これまで Kitagawa et al. (1993)を踏襲したグラファイト生成法を行ってきた。本システムでもグラファイト生成条件についてはこれらに依拠する。

処理するサンプルは、最終的なグラファイトが 1.0mg を基本に秤量し、480℃で焼き出した Ag カプセルに包み、元素分析計にセットする。元素分析計の分析条件は、燃焼温度 950℃、還元温度 850℃、吸脱着カラムの温度設定を行なった。オペレートは CNS 分析モードで行い、カラムは CNS モードで必要とされる充填材を適宜準備した。

CO₂の還元を用いる Fe 触媒は、添川理化学株式会社の 7-5 μm サイズ鉄粉を用い、Fe:C が 2:1 になるよう約 2.0mg を秤量し、二又の CO₂リアクタの片方に入れたあと、これを水素雰囲気下で>2 時間程度 480℃で加熱し、再還元を行う。二又リアクタのもう片方には、還元剤である亜鉛を 100mg 程度秤量して、入れておく。処理システムで生成した CO₂ をリアクターに入れたあと、Fe 触媒を 600℃、亜鉛還元材を 400℃で加熱しグラファイト生成を行う。水素還元によるグラファイト化を行う場合には、CO₂を移送したのち、二又リアクタの Fe 触媒側を 620℃に加熱し、もう片方をペルチェ素子で冷却し、生成される水をトラップする。グラファイト化は、グラファイト生成状況を見ながら>6 時間程度行う。

4. システム導入と処理性能

システムの構築は、EA の改造、コントローラの電子工作、ラインの整備を含めておよそ 2 週間程度で完成させることができた。システム構築で必要となった主なパーツは、EA 本体を除き、手に入れやすい汎用品で、低コストで容易に修理改造可能なものを採用した。

本システムにより、CO₂生成までは 10 サンプルおよそ 3 時間程度で処理が可能である。元素分析計でのサンプル燃焼および CO₂の単離は、およそ 10 分程度で完了し、その後、5 分程度で CO₂をリアクタに移送することができる。1 サンプルの処理が完了したのち、およそ 5 分弱でラインの真空引きが完了し、次のサンプル調製を開始することができる。

表 1 に、本システムで処理したバックグラウンド標準物質、IAEA-C シリーズの標準試料の分析結果を示した。分析結果はいずれも指標値とよく合致し、運用可能レベルなレベルに到達している。東京大学総合研究博物館放射性炭素年代測定室では、2017 年 12 月より当該システムの本格的な運用を開始した。

表 1 システム構築直後の標準試料分析結果

Sample	Concences value		Reduction	pMC (%)	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)
	pMC (%)	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)			
Oxalic acid (Wako Pure Chem.)	¹⁴ C free material	-29.1 ± 0.2	H ₂	0.090 ± 0.010	-31.0 ± 0.7
			Zn	0.159 ± 0.014	-39.1 ± 0.3
IAEA-C5	23.05 ± 0.02	-25.5 ± 0.7	H ₂	23.06 ± 0.09	-26.8 ± 0.7
			Zn	23.13 ± 0.11	-24.4 ± 0.3
IAEA-C6	150.61 ± 0.11	-10.8 ± 0.5	H ₂	150.19 ± 0.36	-10.7 ± 0.7
			Zn	149.92 ± 0.48	-10.4 ± 0.3
IAEA-C8	15.03 ± 0.17	-18.3 ± 0.1	H ₂	14.99 ± 0.07	-20.7 ± 0.7
			Zn	15.14 ± 0.01	-19.7 ± 0.3

5. まとめ

本システムは、元素分析計さえ準備できれば、低コストでどこでもプロセスの自動化を導入できることを示している。実際、放射性炭素年代測定室では、廃棄寸前の真空ラインや関連分品を再活用し、本システムを構築した。現状ではグラファイト生成のためのリアクターが 10 本のみで一度に処理できる試料数に限りがあるが、今後、必要に応じてリアクタの数を増加させることで、より効率的なグラファイト調整が期待できる。自動処理システムを用いたグラファイト処理は、 ^{14}C 迅速分析を可能とするだけでなく、従来法と比較して、ランニングコストも抑えることも期待できる。今後中長期的にシステムを運用し、高精度 ^{14}C 年代測定に向けた技術的改良を進めていく予定である。（* 元素分析計の改造はあくまで自己責任でお願いします。）

This is a blank page.

3. AMS 応用研究

This is a blank page.

3.1 過去 3000 年間の宇宙線強度年変動

Annual variation of cosmic ray intensities for the past 3,000 years

三宅美沙^{1*}・増田公明¹・中村俊夫¹・箱崎真隆²・木村勝彦³・門叶冬樹⁴・森谷透⁴・武山美麗⁴・
A J T Jull⁵・I P Panyushkina⁶
Fusa Miyake^{1*}, Kimiaki Masuda¹, Toshio Nakamura¹, Masataka Hakozaiki², Katsuhiko Kimura³,
Fuyuki Tokanai⁴, Toru Moriya⁴, Mirei Takeyama⁴, A J T Jull⁵, I P Panyushkina⁶

¹名古屋大学 宇宙地球環境研究所 (Institute for Space-Earth Environmental Research,
Nagoya University)

²国立歴史民俗博物館 (National Museum of Japanese History)

³福島大学共生システム理工学類 (Faculty of Symbiotic Systems Science, Fukushima
University)

⁴山形大学 高感度加速器質量分析センター (Center for Accelerator Mass Spectrometry,
Yamagata University)

⁵アリゾナ大学 AMS 研究所 (Laboratory of Tree-Ring Research, University of Arizona)

⁶アリゾナ大学年輪研究所 (AMS Laboratory, University of Arizona)

**Correspondence to: Fusa Miyake; E-mail: fmiyake@isee.nagoya-u.ac.jp*

要旨

近年、世界各地の年輪試料を用いた ^{14}C 濃度の単年分解能の測定が進められている。このような測定から、AD774-775 年と AD993-994 年の ^{14}C 濃度の急増加が報告された。これらイベントの ^{14}C 増加量が非常に大きいこと、全世界的にイベントが記録されていること、さらに氷床コアの ^{10}Be 濃度にも同じイベントが記録されていることから、これらのイベントは地球への宇宙線量が急増したものを反映しており、その原因は大規模な Solar Proton Event が妥当と考えられている。

このような単年の宇宙線増加イベントをとらえるのに必要な単年 ^{14}C データは、先行研究では～AD1350 年以降の数百年間しか取得されていないため(それ以外にもいくつかの年代において単年データが存在するが、数十年程度の短いものしかない)、単年の測定が行われていない過去の長い期間に同様の宇宙線イベントが多数存在する可能性が高い。本研究は、過去長期にわたる ^{14}C 濃度を単年分解能で測定し、宇宙線イベントの頻度や起こり方を明らかにすることを目的としている。

我々は、主に日本産の樹木を用いて、約 BC1000 年～AD600 年の ^{14}C 濃度を単年分解能(隔年間隔)で測定してきた。これにより、先行研究と合わせて過去約 3000 年間の連続データを取得した。その結果、過去 3000 年間に於いて、AD775 年イベントが最大の単年 ^{14}C 増加を示すことが明らかとなった。

Keywords: 放射性炭素; 単年宇宙線イベント; Solar Proton Event;

はじめに

樹木年輪の ^{14}C 濃度は過去の到来宇宙線強度を記録した指標であり、その強度は様々な時間スケールで変化していたことが IntCal [Reimer et al. 2013]をはじめとする過去の ^{14}C 濃度データから知られている。数十年程度の ^{14}C 濃度変動は太陽磁場活動による宇宙線変動に、また約千年以上の長期変動は地磁気の変動や、深海の炭素循環に主に起因すると考えられている [Beer et al. 2012]。

一方で、近年 AD 774-775 年と AD 993-994 年にそれぞれ ^{14}C 濃度の急上昇が検出された [Miyake et al. 2012, 2013]。これらのイベントは世界各地の樹木サンプルを用いて独立に再現されているため [Usoskin et al. 2013, Jull et al. 2014, Güttler et al. 2015, Rakowski et al. 2015, Park et al. 2017, Fogtmann-Schultz et al. 2017]、その起源は地球外にあり、上記それぞれの年代に地球へ大量の宇宙線インプットがあったと考えられる。地球への宇宙線量が増加すれば、 ^{14}C だけではなく、 ^{14}C と同様に宇宙線が生成する核種 ^{10}Be の濃度も増加するはずである。南極とグリーンランド氷床 (DF, WDC, NGRIP, NEEM) の ^{10}Be 濃度の約 1 年分解能の測定も行われ、顕著な濃度上昇が検出された [Miyake et al. 2015, Sigl et al. 2015, Mekhaldi et al. 2015]。
 ^{10}Be の濃度上昇が確認されたことから、2 つの ^{14}C 増加イベントは宇宙線量の急増を反映したものであることが決定的となったが、それだけではなく ^{14}C と ^{10}Be の生成比から、原因は太陽面爆発 (太陽フレア、コロナ質量放出) に起因する Solar Proton Event (SPE) が妥当と考えられている [Usoskin et al. 2013, Mekhaldi et al. 2015]。

AD775 年と AD994 年イベントの報告後、いくつかの似たような ^{14}C 急増が報告された。Wang et al. [2017] は中国の木材サンプルを用いて BC3372-3371 年にかけての ^{14}C 濃度の急増加を検出し、AD775 年と AD994 年のイベントに続く 3 例目の単年宇宙線イベントを報告した。また、前出の 3 つのイベントのように 1 年での変化ではないが、Miyake et al. [2017] は BC5480 年付近に 10 年かけての ^{14}C 大増加を、また Park et al. [2017] は BC660 年付近に 3 年かけての ^{14}C 増加を報告した。これらの ^{14}C 変動は、他の 1 年分解能の ^{14}C データと比べると明らかにその増加率が大きい (前出の 3 イベントを除く)、通常の宇宙線変動とは別の何らかの理由で地球への宇宙線強度が上昇したものと考えられる。

^{14}C 濃度の急激な変化は、高精度な年代測定に応用できる。特に AD775 年イベントのような 1 年での変化は、1 年の年代束縛点を提供し、単年精度の年代測定を可能にする (= "Carbon-14 spike-matching")。既に AD775 年イベントを利用して、中国北朝鮮国境の白頭山とアイスランドの Katla 山の噴火年代をそれぞれ AD946 年冬と AD822 年冬と決定された [Oppenheimer et al. 2017, Hakozaki et al. 2017, Büntgen et al. 2017]。

このように近年の 1 年分解能の ^{14}C データの蓄積から、1~数年の大きな ^{14}C 変動がいくつも存在することが明らかになってきた。しかし、未だ単年の ^{14}C データは限られた年代でしか取得されていない (主に過去 1500 年間) ことから、 ^{14}C 濃度の大変動がどのような頻度で発生していたかよく分かっていない。特に、775 年、994 年、BC3371 年のような 1 年での ^{14}C 増加は、大規模な SPE と結び付けられて考えられているが、これらのイベントを説明するためには観測史上最大の太陽面爆発よりも規模が大きいイベントが発生していなければならない、そのような大規模 SPE は大規模停電や人工衛星の故障等、私たちの生活に大きな影響を与える。したがって、さらに長期間の単年 ^{14}C データを取得し、どのような頻度で宇宙線増加イベントが発生していたか明らかにすることが重要である。これは、複数の年代束縛点を提供できるという意味においても重要である。我々は、主に日本産の樹木サンプルを用いて単年分解能の ^{14}C 濃度を隔

年間隔で測定してきた。

方法と結果

年輪年代法で年代が決定された年輪サンプル(屋久島、鳥海山、佐渡、北米)を1年ずつ剥離し、酸アルカリ処理、亜塩素酸ナトリウム処理によりセルロースを抽出した。得られたセルロースからグラファイトを抽出し、名古屋大学、山形大学、アリゾナ大学の AMS で ^{14}C 濃度を測定した。先行研究では AD600～1020 年、AD1346 年～現在までの単年 ^{14}C データが既に取得されており、本研究ではそれ以外のほぼ全ての年代について測定した(図1:BC991～999 年、BC433～463、AD204～258 年は未測定)。

測定の結果、過去 3000 年間に於いて、単年の ^{14}C 増加イベントがいくつか検出された。最も大きい ^{14}C 増加量であったのが AD774-775 年イベント(約 15‰)であり、他に、AD775 年イベントのほぼ半分の増加量を示す AD993-994 年イベントと BC660 年イベント(ただし BC660 年イベントは 1 年での増加ではなく約 3 年かけての増加)が検出された。これらのイベントは、先行研究で既に報告されているものである。それ以外の年代に於いて、隔年で測定誤差の 3 倍程度の比較的小さい ^{14}C 増加を示す年代が 3 つあった(BC241 年、AD638 年、AD1179 年)。しかし、BC241 年前後について再現性を確かめるために 1 年分解能で再度測定を行ったところ、隔年測定で見えていたほど大きな ^{14}C 増加ではないことが明らかになった。他の 2 つの年代については再測定を行っていないため、今後検証が必要である。本研究で得られた重要な点は、AD775 年イベントが過去 3000 年間で最大であり、このような現象が頻繁に起きているわけではないということである。今後さらなるイベントの検出には、測定精度を上げることによる小型イベントの検出がカギとなる。

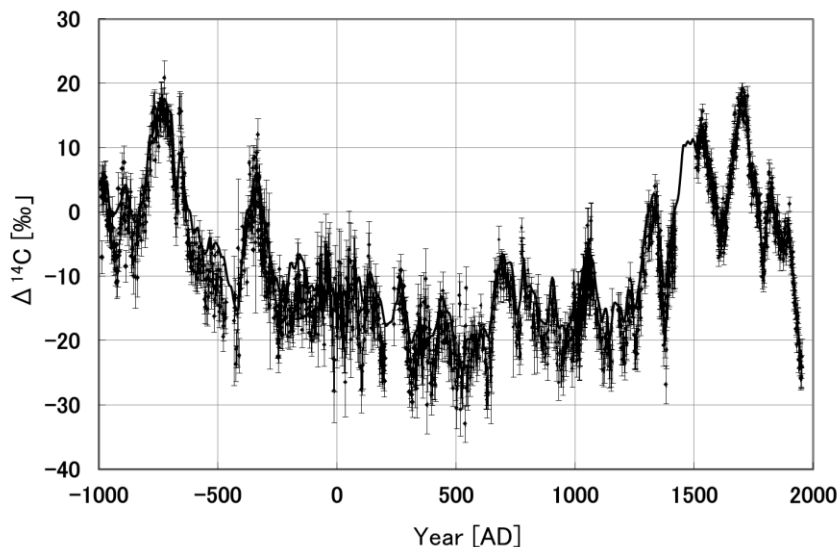


図1: 本研究と先行研究[Stuiver et al.1998, Miyake et al. 2013]により得られた過去 3000 年間の ^{14}C 濃度。

参考文献

J. Beer, et al., Cosmogenic Radionuclide Theory in the Terrestrial and Space Environments, Springer, Berlin (2012).

- U. Büntgen et al., Multi-proxy dating of Iceland's major pre-settlement Katla eruption to 822–823 CE, *Geology*, 45, 783-786 (2017).
- A. Fogtmann-Schulz et al., Cosmic ray event in 994 C.E. recorded in radiocarbon from Danish oak, *Geophys. Res. Lett.*, 44, doi:10.1002/2017GL074208 (2017).
- D. Güttler et al., Rapid increase in cosmogenic ^{14}C in AD 775 measured in New Zealand kauri trees indicates short-lived increase in ^{14}C production spanning both hemispheres. *Earth and Planetary Science Letters* 411: 290–297 (2015).
- M. Hakozi et al., Verification of the annual dating of the 10th century Baitoushan volcano eruption based on an AD 774-775 radiocarbon spike, *Radiocarbon*, DOI:10.1017/RDC.2017.75 (2017).
- A. J. T. Jull et al., Excursions in the ^{14}C record at A.D. 774–775 in tree rings from Russia and America, *Geophys. Res. Lett.*, 41, doi:10.1002/2014GL059874 (2014).
- F. Mekhaldi et al., Multiradionuclide evidence for the solar origin of the cosmic-ray events of AD 774/5 and 993/4 *Nat. Commun.*, 6:8611 (2015).
- F. Miyake et al. A signature of cosmic-ray increase in AD 774-775 from tree rings in Japan, *Nature*, 486: 240–242 (2012).
- F. Miyake et al. Another rapid event in the carbon-14 record of tree rings, *Nat. Commun.*, 4:1748 (2013).
- F. Miyake et al. Cosmic ray event of A.D. 774–775 shown in quasi-annual ^{10}Be data from the Antarctic Dome Fuji ice core, *Geophys. Res. Lett.*, 42: 84-89 (2015).
- F. Miyake et al., Large ^{14}C excursion in 5480 BC indicates an abnormal sun in the mid-Holocene, *PNAS*, 114: 881-884 (2017).
- C. Oppenheimer et al., Millennium Eruption” of Changbaishan to late 946 CE, *Quaternary Science Reviews*, 158, 164–171 (2017).
- J. Park et al., Relationship between solar activity and $\Delta^{14}\text{C}$ peaks in AD 775, AD 994, and 660 BC, *Radiocarbon*, 59, 4, 1147–1156 (2017).
- Z. Rakowski et al., Increase of radiocarbon concentration in tree rings from Kujawy (SE Poland) around AD 774–775, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 361, 564–568 (2015).
- P. Reimer et al., IntCal13 and Marine13 Radiocarbon Age Calibration Curves 0–50000 Years cal BP, *Radiocarbon*, 55, 1869–1887 (2013).
- M. Sigl et al., Timing and climate forcing of volcanic eruptions for the past 2,500 years, *Nature*, 523: 543-549 (2015).
- M. Stuiver, et al., High-precision radiocarbon age calibration for terrestrial and marine samples, *Radiocarbon* 40, 1127–1151 (1998).
- I.G. Usoskin et al., The AD775 cosmic event revisited: the Sun is to blame, *Astron. Astrophys.*, 552: L3 (2013).
- F. Wang, et al., A rapid cosmic-ray increase in BC 3372–3371 from ancient buried tree rings in China, *Nat. Commun* 8:1487 (2017).

3.2 1998-2014 年の大気中 ^7Be , ^{10}Be 濃度

Correlation between atmospheric concentration of cosmogenic Be isotopes and solar activity during 1998 to 2014

山形武靖^{1,*}, 永井尚生¹, 松崎浩之²
T. Yamagata¹, H. Nagai¹, H. Matsuzaki²

日本大学文理学部¹, 東京大学総合研究博物館²
College of Humanities and Sciences, Nihon University¹
The University Museum, the University of Tokyo²

Abstract

The concentrations of ^7Be and ^{10}Be were investigated at Dazaifu, Fukuoka (1998-2002) and Tokyo (2002-2014) during 1998 to 2014. The seasonal variations were same each year; high concentrations and high isotopic ratios of $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ that was caused by strong stratosphere-troposphere exchange (STE) were appeared in March to June, and various concentrations but constant $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ by vertical convection in troposphere were appeared in July to December. The concentrations were reconstructed by the box model formula. The parameters of the mean residence time and STE intensities, and period, were constant. The amplitudes of production rate were higher than the amplitude of cosmic ray neutron flux observed at Oulu near earth's surface by a factor of 3. Since the neutron flux amplitude at polar region that was little influenced by geomagnetic field was only 10% higher than Oulu, the high amplitudes of production rate were assumed that caused by changing of energy spectrum of galactic cosmic ray.

1. 緒言

宇宙線生成核種である ^7Be , ^{10}Be は二次宇宙線である中性子と ^{14}N , ^{16}O の核反応で生成する。大気中の生成速度は宇宙線フラックスと大気の種類で決定されるため、大気の深さに対して指数関数的に減少しており、成層圏下部が最大となるため、全体の 2/3 が成層圏で、1/3 が対流圏で生成している [1]。生成後は酸化され、エアロゾルに吸着し移動する。大気の組成は一定であるため、生成速度は太陽活動の盛衰とともに変動している宇宙線フラックスに依存し変動する。そのため大気中を定常状態とし、海底堆積物やアイスコア中の ^{10}Be 濃度から復元した ^{10}Be フラックスは太陽活動を復元するプロキシとして用いられる [2]。しかし大気中の ^7Be , ^{10}Be の移動速度は一定ではない。吸着したエアロゾルの平均滞留時間が 1-2 年と ^7Be の半減期より長い成層圏では ^{10}Be が蓄積する一方であるのに対し、 ^7Be は蓄積すると同時に壊変により減少するため成層圏の ^7Be , ^{10}Be 濃度, $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ は高くなっている。北半球では春期に成層圏-対流圏の大気交換 (Stratosphere-Troposphere Exchange: STE) が起きるため、地表付近に成層圏大気の影響が表れ、 ^7Be , ^{10}Be 濃度, $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ が高くなる [3]。STE は近年の温室効果によって 21 世紀前半に 10 年で 3% 増加する予測されている [4] など一定であることは無く、情報が非常に少なく不確定な要素が多い。対流圏においても大気循環、降水の分布によって ^{10}Be フラックスは分布を持つため、アイスコア内の ^{10}Be 濃度を変動させる要因として、気候は無視できない可能性が示唆されている [5]。現在の ^{10}Be フラックスと太陽活動の関係から、これら気象学的な影響を評価することが望ましいが、降水から求める ^{10}Be フラックスは回収時の降水量の影響を強く受けるため、評価は難しい [6]。大気中の ^7Be , ^{10}Be 濃度は、対流圏における平均滞留時間が一定であるならば、降水の影響をあまり受けず宇宙線フラックスの変動を反映するため、さらに STE の強度等の大気循環の変動の影響を受けて宇宙

線フラックスの変動と異なる変動パターンを示す場合は、濃度に加え $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ を用いることで成層圏起源成分の寄与を推定できるため、降水より直接的に太陽活動との関係を見積もることが出来るトレーサーであると考えられる。そこで本研究では東京、太宰府において 1998-2014 年まで ^{7}Be 、 ^{10}Be 濃度の観測を行い、モデルを用いて解析することで地表付近の大気中の ^{7}Be 、 ^{10}Be の移動の情報を得ることを目的とした。

2. 実験

試料は福岡県太宰府にある福岡県保健環境研究所 (1998 年 9 月-2002 年 7 月) と東京の日本大学文理学部 (2002 年 4 月-2014 年 12 月) においてハイボリュームエアサンプラーを用いて、太宰府は石英フィルター (QR-100 20.3x25.4 cm:ADVANTEC) に、東京はペーパーフィルター (NO. 41 20.3x25.4 cm: Whatman) にエアロゾルを回収したものを用いた。採取期間は太宰府が 3 日、東京は 1 週間、積算流量は太宰府が 4000 m^3 、東京が $2000\text{-}3000 \text{ m}^3$ であった。太宰府で回収した試料は二つ折りにした後、約 1/2 パンチでくり抜いた後に圧縮して、東京の試料は非破壊で γ 線スペクトロメトリーを行い ^{7}Be ($E_\gamma=477.6 \text{ keV}$) の定量を行った。測定後、太宰府は試料の 1/2 (ろ紙全体の 1/4) に Be 担体 0.5 mg を加えフッ化水素で、東京は試料の 1/4 に Be 担体 0.5 mg を加え硝酸で分解し、ろ過を行った。ろ液から陽イオン交換を用いて Be を単離し、BeO として東京大学 MALT において ^{10}Be -AMS を行い ^{10}Be の定量を行った。測定試料中 $^{10}\text{Be}/^{9}\text{Be}$ は $(0.5\text{-}5)\times 10^{-12}$ 、ブランク試料は 0.04×10^{-12} であった。

3. 結果と考察

1998 年から 2014 年の大気中 ^{7}Be 、 ^{10}Be 濃度、 $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ を Fig. 1 に示す。太宰府、東京都心の大気中 ^{7}Be は毎年 3-6 月と 10-11 月にピークを持つ、 ^{10}Be 濃度は 3-6 月に大きな、10-11 月に小さなピークを持つ季節変動を示した。 $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ は 3-6 月に一つのピークを持つ季節変動を示した。3-6 月のピークは ^{7}Be 、 ^{10}Be 濃度と $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ が同時に上昇してい

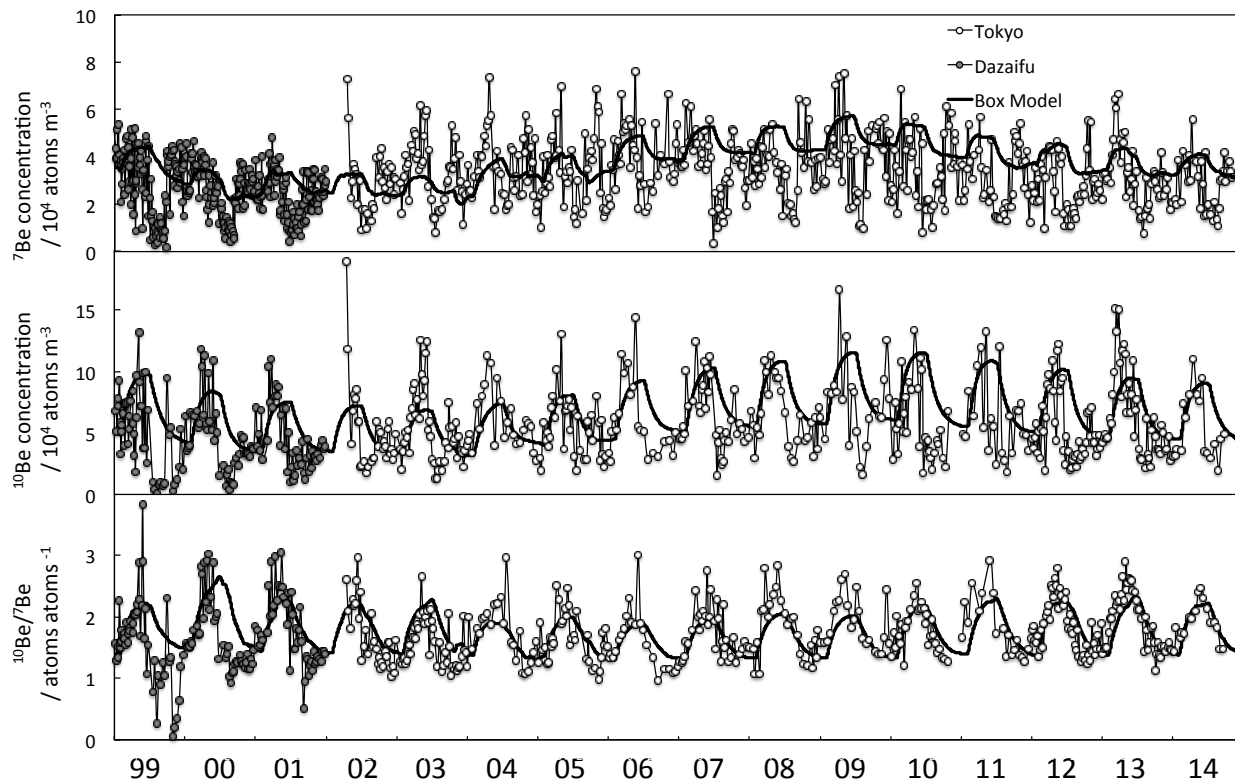


Fig. 1 The decadal variations of ^{7}Be , ^{10}Be concentration and $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ in the atmosphere in Dazaifu and Tokyo during 1999 to 2014. The solid line is the concentration calculated using 3-box model formula described in the manuscript.

ることから、北半球の春に起きる STE の影響と見なすことが出来る。年の後半 (7-12 月) は $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ が一定であることから、成層圏エアロゾルの流入による影響は小さく、対流圏内における物質の鉛直輸送量が変化することによって濃度が変動していると判断することが出来た。1999 年 11 月に $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ が 0.06-0.7 と生成速度比の推定値 0.5-1 より低い観測結果が得られた。 $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ は生成後 ^{7}Be が壊変することによってのみ変動するため、0.5 より低い値を示すことは無いと考えられる。同時期の ^{7}Be 濃度は同季節の東京都心の結果と同程度であるため、 ^{10}Be 濃度の過小評価が原因と考えられる。そのため ^{10}Be の再測定を含めた検討が必要である。

大気中の ^{7}Be , ^{10}Be 濃度は季節変動が強いいため、宇宙線フラックスと直接比較することは出来ない。以下の式に表す 3 ボックスモデルを用いて大気中の ^{7}Be , ^{10}Be 濃度, $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ を再現することを試みた。大気のボックスは生成がある成層圏と上部対流圏、生成がない大気境界層の 3 つを定義した。大気境界層は対流圏の最下層で、1000m ほどの厚みがある。地表との摩擦が多いため対流圏上層と比較し風速が遅く、放射冷却等の地表と大気の相互作用が大きい層である。

$$dN_{10S}/dt = J_{CR}P_{10S} - k_S N_{10S}$$

$$dN_{10T}/dt = J_{CR}P_{10T} - k_T N_{10T} + k_S N_{10S}$$

$$dN_{10b}/dt = -k_T N_{10T} + k_T N_{10T}$$

$$dN_{7S}/dt = J_{CR}P_{7S} - (k_S + \lambda_7) N_{7S}$$

$$dN_{7T}/dt = J_{CR}P_{7T} - (k_T + \lambda_7) N_{7T} + k_S N_{7S}$$

$$dN_{7b}/dt = -(k_T + \lambda_7) N_{7b} + k_T N_{7T}$$

ただし、 N は各リザーバ内の原子の個数、 J_{CR} は宇宙線の相対強度、 P は生成速度、 k は除去定数 ($1/\tau$)、 λ_7 は ^{7}Be の壊変定数 ($\ln 2/T_{1/2}$) を示す。添字の 7, 10 はそれぞれ ^{7}Be , ^{10}Be を示し、S, T, b は成層圏と対流圏と大気境界層を示す。生成速度は Nagai et al. [9] が求めた全球平均を用いた。成層圏-対流圏の大気交換が起きている時期は 2-6 月とした。このモデルに対し、ノルウェーのオウル地表付近で観測された中性子フラックスに依存して生成速度を変動させた。

モデルの解と実測値の残差平飽和が最小になるようにモンテカルロ法でパラメーターを求めた。パラメーターはまず成層圏-対流圏の大気交換時期以外の $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ から求めた。この時期の $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ は主として対流圏の平均滞留時間によって決定される。その後、成層圏-対流圏の大気交換の時期とその他の時期の交換速度の差 k を求め、成層圏の平均滞留時間を求めた。このモデルは全球的な $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ の平均を再現するモデルであるため、必ずしも濃度は一致しないが、最後に日本の大気境界層における観測した濃度と一致させ大気境界層における平均滞留時間を求めた。モデルパラメータを表 1 に示す。成層圏、対流圏、大気境界層の平均滞留時間はそれぞれ 2 年、54.7 日、3.3 日と現在推定されているエアロゾルの平均滞留時間と一致した。成層圏-対流圏の大気交換の速度は 2-6 月に他の期間より交換速度定数 (平均滞留時間の逆数) が 6 倍になることを見積もることが出来た。

生成速度を宇宙線フラックスと同じ相対変動として計算すると、相対的な変動は一致していたものの、振幅が非常に小さく観測結果と一致しなかった。そこで再び STE 強度の変動を検討したが、除去定数 k を大きくすると、一時の $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ は一致するものの濃度は一致せず、さらに平均滞留時間が短くなるため、その後の $^{10}\text{Be}/^{7}\text{Be}$ が小さくなり観測結果と一致させることは不可能であった。そこで宇宙線フラックスの変動に対し生成速度を 0.1-5 倍大きく変化させた結果と比較したところ、オウルで観測された中性子フラックスの振幅である 10% に対し生成速度が 3 倍 ($\pm 30\%$) 変動すると観測結果と良く一致することがわかった。この原因として、宇宙線の地磁気によるカットオフの違いと高層大気中性子フラックスは地表付近の 3 倍変動するという 2 つが考えられる。太陽活動の変動に伴う宇宙線フラックスの変動は地磁気の影響が少ない極域が中緯度域より大きい。極域で生成した成分が中緯度域に流入することにより、日本で観測される ^{7}Be , ^{10}Be 濃度は極域の宇宙線フラックスの変動と同じ振幅を持つ可能性も考

えられる。そこでオウルの中性子フラックスと南極で観測された中性子フラックスと比較したところ、南極はオウルより振幅が10%大きいことが確認された。しかし、3倍の振幅を説明するためには不足であった。上層大気の中性子フラックスの変動を観測することは非常に難しいが、Masarik and Beer[10]はモデル計算から太陽活動の変動により大気に入射する一次宇宙線スペクトルが変動し、 ^7Be 、 ^{10}Be の生成速度が太陽活動最小時に40%増加すると算出している。そのため生成速度が地表付近で観測される宇宙線フラックスの振幅に対し3倍変動することは、一次宇宙線のエネルギースペクトルの変化が原因であると考えられる。

このモデルより計算された大気境界層のモデルの濃度と観測値を比較すると春と秋は比較的よく一致するが、夏期の濃度がモデル値と比較し観測値が低かった。日本付近では春期と秋期に移動性高気圧と低気圧が交互に通過するため、鉛直混合が活発になり平均的な濃度を示し、夏期は小笠原気団の南からの張り出しの影響により鉛直混合が妨げられ上層から物質が降下しづらくなり、モデルに対し観測値が低くなったと考えられる。またモデルによって求められた成層圏と上部対流圏の ^7Be 、 ^{10}Be 濃度はそれぞれ36-331, 66-886と8-270, 8-417 ($\times 10^4 \text{ atoms m}^{-3}$)であり、Jordan et al. [11]が航空機観測した濃度とよく一致した。そのため高層大気濃度もよく再現していると考えられる。

4. まとめ

1998年9月から2014年12月までの大気中 ^7Be 、 ^{10}Be 濃度を観測した。大気中 ^7Be 、 ^{10}Be 濃度は毎年2-6月に ^7Be 、 ^{10}Be 濃度と $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ が成層圏-対流圏の大気の交換(STE)の影響で大きくなり、その他の時期は対流圏内での鉛直輸送量が変化するため濃度は変動するが $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ は一定という同じ季節変動を示した。大気中 ^7Be 、 ^{10}Be 濃度を再現する2ボックスモデルから、大気中における平均滞留時間、STEの強度は10年間の間ほぼ一定で、生成速度がオウルの地表付近で観測された中性子フラックスの相対強度に対し3倍変動することがわかった。

5. 参考文献

- [1] Lal, D. and Peters, *Handbuch der physik*, vol. 46/2, Springer, Berlin, pp. 511-612, 1967.
- [2] McCracken, K.G., Beer, J., McDonald, F.B., *Adv. Space res.*, **34**, pp. 397-406, 2004.
- [3] 山形武靖, 齊藤 敬, 永井尚生, 松崎浩之, 第6回環境放射能研究会プロシーディングス, pp. 45-48, 2005.
- [4] Butchart, N., and Scalfè, A.A., *Nature*, **410**, pp. 799-802 (2001).
- [5] Field, C.V., Schmit, G.A., Koch, D. and Salyk, C., *J. Geophys. Res.*, **111**, D15107 (2006).
- [6] Heikkilä, U., Beer, J., and Alfimov, V., *J. Geophys. Res.*, **113**, D11104 (2008).
- [7] On-line database of cosmic ray intensities, Proceedings of ICRC 2001 (<http://cosmicrays.oulu.fi/>), pp.1-4 (2001)
- [8] Yamagata, T., Saito, T., Matsuzaki, H., Nagai, H., *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **7**, p. 193 (2006).
- [9] Nagai, H., Tada, W. and Kobayashi, T., *Nucl. Instr. and Meth.*, **B172**, pp. 796-801 (2000).
- [10] Masarik, J. and Beer, J., *J. Geophys. Res.*, **D104 (10)**, pp. 12,099-13,012 (1999).
- [11] Jordan, C. E., Dibb, J. E. and Finkle, R. C., *J. Geophys. Res.*, **108**, D8, 4,234 (2003).

3.3 琵琶湖に流入する安曇川、野洲川の河床堆積物中 ^{10}Be 濃度の粒径依存性 Grain size dependence of meteoric ^{10}Be concentrations in bed-sediments of Ado and Yasu rivers flowing into Lake Biwa

藤沢純平¹・南 雅代^{2*}・國分(齋藤)陽子³・松崎浩之⁴
J. Fujisawa¹, M. Minami^{2*}, Y. Saito-Kokubu³, H. Matsuzaki⁴

¹名古屋大学大学院環境学研究科・²名古屋大学宇宙地球環境研究所・

³日本原子力研究開発機構東濃地科学センター・⁴東京大学総合研究博物館

¹ Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University

² Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University

³ Tono Geoscience Center, JAEA

⁴ The University Museum, The University of Tokyo

**Correspondence to: Masayo Minami; E-mail: minami@isee.nagoya-u.ac.jp*

Abstract

To investigate grain size dependency on concentration of meteoric ^{10}Be extracted from river bed-sediment, we analyzed the ^{10}Be in bed-sediments of Yasu and Ado rivers flowing into Lake Biwa, Shiga Prefecture, central Japan. The sediments were sieved into 5 grain size fractions (180-150 μm , 150-125 μm , 125-63 μm , 63-32 μm , and <32 μm). Each of the fractions was sequentially leached with 1M MgCl_2 , 0.5M HCl , and 1M $\text{NH}_2\text{OH-HCl}$ to extract Ex (Exchangeable), Am-Ox (amorphous oxy-hydroxide) and X-Ox (crystalline oxy-hydroxide) phases, respectively, and the ^{10}Be concentrations of the leachates were measured.

Most meteoric ^{10}Be (93-95% of the total ^{10}Be) was located in the Am-Ox and X-Ox phases of bed-sediments for all grain size fractions. The ^{10}Be concentrations of bulk and extracted fractions decreased with increasing grain size. Furthermore, the bed-sediments from upper stream showed higher ^{10}Be concentration than those from downstream, and this tendency was stronger in Yasu river than in Ado river. The difference between Yasu and Ado river sediments could be due to lower pH of Yasu river water (7.2-7.4) than pH of Ado river water (7.9-8.0), that is, due to more partitioning of Be into water relative to sediment particles in Yasu river. Consequently, ^{10}Be concentration of Yasu river water was significantly higher (about three times) than that of Ado river water. The results indicate that meteoric ^{10}Be concentration in river bed-sediment is not only grain size-dependent but also strongly dependent on pH of river water.

Keywords: meteoric ^{10}Be ; grain size; bed-sediment; Ado river; Yasu river

1. はじめに

^{10}Be は高層大気中で生成される宇宙線生成放射性核種であり、酸化物や水酸化物の形でエアロゾルなどに付着して大気中に滞留した後、降水とともに地表面に沈降する。地表に降下した ^{10}Be (meteoric ^{10}Be) は、河川などを通じて運搬され、海底や湖底に堆積していく。その

ため、堆積物中の ^{10}Be は、太陽活動や地磁気変動のほか、地球表層における大気循環や水循環など、堆積場の変化を記録しており、過去の環境変動を調べる指標の一つとして有効である (e.g. Willenbring and von Blanckenburg, 2010)。

土屋 (2004) は琵琶湖湖底堆積物コアの ^{10}Be 濃度を測定し、堆積物中の ^{10}Be の 90% 以上は、大気から地表に沈積した集水域の ^{10}Be が、河床堆積物により琵琶湖へ輸送された二次的な堆積である可能性を示した。つまり、湖底堆積物の ^{10}Be 変動から古環境変動の情報を引き出すためには、河床堆積物からの ^{10}Be 流入量を抑えておく必要がある。そこで、藤沢ほか (2017) は、琵琶湖に流入する 8 河川の河床堆積物 (粒径 $<180\ \mu\text{m}$) の ^{10}Be 濃度を測定したところ、河川ごとに異なる値 ($1.9\text{--}17.1 \times 10^7\ \text{atoms/g}$) を示し、湖底堆積物の ^{10}Be ($\sim 20 \times 10^7\ \text{atoms/g}$) に大きな影響を与え得ることが明らかになった。また、細粒の粒子を多く含む堆積物で ^{10}Be 濃度が高いという粒径依存性も明らかになった。これらの結果は、河川から湖への ^{10}Be の輸送を考える際、河床堆積物の粒径組成を考慮する必要があることを示している。そこで本研究では、琵琶湖の北部と南部に流入する主要な河川である安曇川と野洲川 (図 1) を対象とし、それらの上流から下流で採取した河床堆積物を用いて、meteoric ^{10}Be 濃度の粒径依存性を、化学成分ごと、河川ごとに詳細に明らかにすることを目的とした。

2. 試料・実験方法

琵琶湖に流入する安曇川、野洲川の上流域、中流域、下流域 (図 1 の安曇川の 1、2、3 及び野洲川の 1、2、3、4 の地点) から河床堆積物を採取し、それぞれ、 $180\text{--}150\ \mu\text{m}$ 、 $150\text{--}125\ \mu\text{m}$ 、 $125\text{--}63\ \mu\text{m}$ 、 $63\text{--}32\ \mu\text{m}$ 、 $<32\ \mu\text{m}$ の 5 分画にふるい分けた。さらに、野洲川の地点 4 の試料以外は、各粒径分画に対し、Wittmann et al. (2012) に従って 1M MgCl_2 、 0.5M HCl 、そして $1\text{M NH}_2\text{OH-HCl}$ の順で化学リーチングを行い、堆積物に吸着している交換性成分 (Ex)、アモルファスな酸化物成分 (Am-Ox)、結晶性酸化物成分 (X-Ox) を抽出した。各化学成分の ^{10}Be 濃度測定は日本原子力研究開発機構東濃地科学センターならびに東京大学ダンドム加速器研究施設 MALT の 5MV タンデム加速器質量分析計により行った。

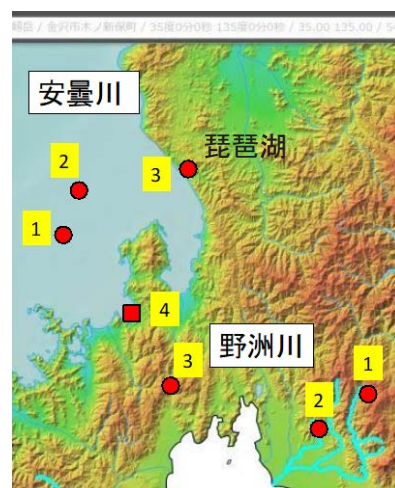


図 1 河床堆積物試料の採取地点

3. 結果・考察

図 2 に、安曇川、野洲川河床堆積物の粒径・化学分画別の ^{10}Be 測定結果を示す。安曇川、野洲川いずれも、Am-Ox 成分と X-Ox 成分の ^{10}Be 濃度が Ex 成分に比べて非常に高く (10–100 倍)、Am-Ox 成分と X-Ox 成分はほぼ同じ ^{10}Be 濃度を示した。野洲川の地点 3 の堆積物の吸着成分 (Am-Ox + X-Ox) の ^{10}Be 濃度と、地点 4 の堆積物のバルク (非リーチング) の ^{10}Be 濃度を比べると、前者は後者の 93–95% であった。これらのことから、大部分の ^{10}Be は堆積物の吸着成分に存在しており、アモルファスな酸化物、結晶性酸化物いずれの吸着相にも同程度に ^{10}Be が吸着することがわかる。

さらに、いずれの化学成分においても、最も細粒な分画 ($<32\ \mu\text{m}$) で最も ^{10}Be 濃度が高く、粒径が大きくなるにつれて、 ^{10}Be 濃度が低くなり、最も粗粒な分画 ($180\text{--}150\ \mu\text{m}$) で最も ^{10}Be

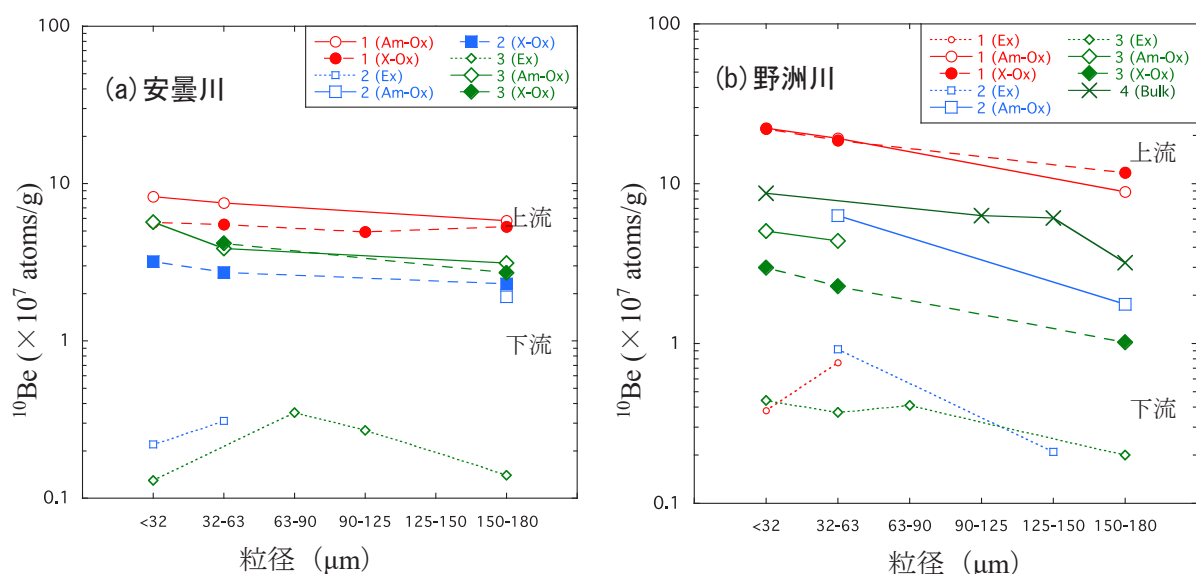


図2 河床堆積物 ((a) 安曇川、(b) 野洲川) の粒径・化学分画別の ^{10}Be 濃度
安曇川 1-3、野洲川 1-4 は、図1に示す地点で採取された河床堆積物。

濃度が低くなった。この結果は、Wittmann et al. (2012) によるアマゾン川河床堆積物から得られた結果と同じであった。このことから、堆積物中の ^{10}Be は粒子表面に吸着する形で存在し、細粒の粒子を多く含む堆積物は、粗粒の粒子を多く含む堆積物より、単位質量当たりの表面積が大きく、吸着する ^{10}Be 量が大きくなることがあらためて確認された。

同じ粒径分画・化学成分の ^{10}Be 濃度を比較すると、安曇川、野洲川いずれも、上流で堆積物の ^{10}Be 濃度が最も高く、下流に行くにつれて、 ^{10}Be 濃度が低くなる傾向が見られた。この理由として、安曇川、野洲川上流の採取地点はいずれも山間部であり、河川周辺の土壌に吸着した ^{10}Be の流入量が多かったのに対し、下流では周辺土壌からの流入が少ないうえに、堆積物から河川水に ^{10}Be が溶脱する量が増えたためと考えられる。野洲川上流の堆積物の ^{10}Be 濃度が顕著に高かったのは、周辺の地形が急で、川幅も狭く、流れが急であったためと考えられる。

河川水の pH を測定したところ、安曇川は 7.9–8.0、野洲川は 7.2–7.4 と、安曇川の方がよりアルカリ性であった。また、河川水中に溶存している ^{10}Be は野洲川が $1.4 \times 10^3 \text{ atoms/g}$ と、安曇川の $0.4 \times 10^3 \text{ atoms/g}$ に比べて 3 倍ほど高かった。水溶液中の Be は、pH によって異なる溶存態になることが報告されており (図 3)、7.9–8.0 ではほぼ $\text{Be}(\text{OH})_2$ として、7.2–7.4 ではわずかに $\text{Be}(\text{OH})^+$ イオンとして存在する可能性がある。したがって、河川水の pH が低い野洲川では、安曇川に比べ、堆積物から河川水へ ^{10}Be が溶脱する効果が大きく、下流においては、野洲川の堆積物が安曇川の堆積物と同程度の ^{10}Be 濃度まで下がったと考えられる。野洲川堆積物のほうが、安曇川堆積物よりも ^{10}Be 濃度の粒径依存性が大きい

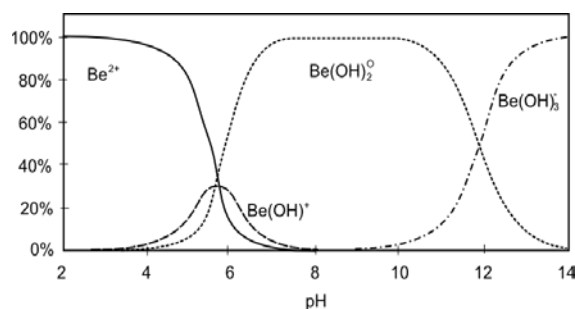


図3 水溶液中の Be 化学種の pH 依存性
(Brown et al., 1992 より引用)

のも、この河川水のわずかの pH の違いに起因していると考えられる。今後、堆積物の meteoric ^{10}Be の挙動を明らかにするためには、堆積物と水の間の ^{10}Be の吸着・溶脱機構のより詳細な解明が必要である。

4. まとめ

琵琶湖の北部と南部に流入する主要な河川である安曇川と野洲川を対象とし、上流から下流にかけて河床堆積物を用いて、meteoric ^{10}Be 濃度の粒径依存性を、化学成分ごと、河川ごとに調べた。その結果、河床堆積物の ^{10}B の大部分は堆積物表面の吸着成分 (Am-Ox, X-Ox) に存在していること、細粒の堆積物は単位質量当たりの表面積が大きいこと、 ^{10}Be が多く吸着していること、河川による ^{10}Be の違いは河川水の pH など河川環境に影響されること、を明らかにした。以上のことから、堆積物の河川から湖への ^{10}Be の輸送プロセスを理解するためには粒子に吸着した ^{10}Be と河川水に溶存した ^{10}Be の両方を考える必要がある。

謝辞

日本原子力研究開発機構東濃地科学センターならびに東京大学ダネム加速器研究施設 MALT のスタッフの皆さまには、 ^{10}Be 試料のターゲットプレス及び測定において大変お世話になりました。名古屋大学宇宙地球環境研究所の北川浩之教授には、研究を進めるにあたって、多くの助言をいただきました。ここに記して感謝を申し上げます。

引用文献

- Brown, E.T., Edmond, J.M., Raisbeck, G.M., Bourles, D., Yiou, F., Measure, C.I., 1992, Beryllium isotope geochemistry in tropical river basins. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 56, 1606-1624.
- 藤沢純平・南 雅代・國分(齋藤)陽子, 2017, 琵琶湖に流入する河川の河床堆積物の meteoric- ^{10}Be , 第18回 AMS シンポジウム報告集, 141-145.
- 土屋理恵, 2004, 過去 43 万年間の ^{10}Be 変動 —琵琶湖堆積物からの解読—, 名古屋大学環境学研究科地球環境科学専攻修士論文.
- Willenbring, J.K., von Blanckenburg, F., 2010, Meteoric cosmogenic Beryllium-10 adsorbed to river sediment and soil: Applications for Earth-surface dynamics., *Earth-Science Reviews*, 98, 105-122.
- Wittmann, H., von Blanckenburg, F., Bouchez, J., Dannhaus, N., Naumann, R., Christl, M., Gaillardet, J., 2012, The dependence of meteoric ^{10}Be concentrations on particle size in Amazon River bed sediment and the extraction of reactive $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ ratios, *Chemical Geology*, 318-319, 126-138.

3.4 つくば市における福島第一原子力発電所事故前後の ^{36}Cl 降下フラックス変動 Temporal variation of ^{36}Cl flux in Tsukuba city before and after the FDNPP accident

落合悠太^{1*}・笹公和¹・戸崎裕貴²・高橋努¹・松村万寿美¹・本多真紀¹・細谷青児¹
高野健太¹・太田祐貴¹・末木啓介¹

Yuta Ochiai^{1*}, Kimikazu Sasa¹, Yuki Tosaki², Tsutomu Takahashi¹, Masumi Matsumura¹,
Maki Honda¹, Seiji Hosoya¹, Kenta Takano¹, Yuki Ota¹, Keisuke Sueki¹

¹筑波大学 AMS グループ (AMS Group, University of Tsukuba)

²産業技術総合研究所 (Geological Survey of Japan, AIST)

*Correspondence to: Yuta Ochiai; E-mail: s1410860@u.tsukuba.ac.jp

Abstract

A large amount of radionuclides including ^{131}I and ^{137}Cs were released to the environment by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident following the Great East Japan Earthquake occurred at March 11, 2011. A certain amount of ^{36}Cl was also expected to be produced in the FDNPP. ^{36}Cl ($^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$) in monthly rainwater samples collected from January 2010 to December 2012 were measured with accelerator mass spectrometry (AMS) at the University of Tsukuba. The deposition fluxes and monthly fallouts of ^{36}Cl were calculated from $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ in rainwater samples. A deposition flux in Tsukuba was $(5.2 \pm 0.1) \times 10^2 \text{ atoms m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ in March 2011. This value was 17 times higher than an average in March from 2005 to 2009 $(30 \pm 19 \text{ atoms m}^{-2} \text{ s}^{-1})$. Variation of the ^{36}Cl monthly fallouts after the FDNPP accident strongly correlated with monthly fallouts of ^{90}Sr , ^{129}I , and ^{137}Cs which were measured at Meteorological Research Institute in Tsukuba city. The total amounts of ^{36}Cl released from the FDNPP accident is estimated to be 0.12 GBq by the $^{36}\text{Cl}/^{129}\text{I}$ ratio in March 2011.

Keywords: ^{36}Cl ; FDNPP accident; rainwater; accelerator mass spectrometry

1. はじめに

2011 年 3 月 11 日に東日本大震災が発生し、福島第一原子力発電所 (FDNPP) は甚大な被害を受けた。その際、 ^{131}I や ^{134}Cs などの大量の放射性核種が放出されたことが明らかになっている[1]。 ^{36}Cl もまた冷却水中の ^{35}Cl と核燃料由来の中性子との核反応 $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$ で生成され、放出されたと考えられている。しかし、 ^{36}Cl は半減期 (30.1 万年) の長さから放射線計数法による測定が困難であることや、冷却水中の塩素の定量が難しいことから輸送や沈着に関する研究はこれまでに数件のみである (例えば[2])。筑波大学 AMS グループでは 2004 年 4 月より降水中の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ を測定し、 ^{36}Cl の降下フラックス ($\text{atoms m}^{-2} \text{ s}^{-1}$) および月間降下量 ($\text{atoms m}^{-2} \text{ month}^{-1}$) を求めている[3]。本研究では、つくば市における FDNPP 事故前後の ^{36}Cl 降下フラックス変動から、FDNPP 事故により放出された ^{36}Cl の沈着量を求めた。また、FDNPP 事故により放出された他の核種 (^{90}Sr 、 ^{129}I 、 ^{137}Cs) の月間降下量と比較し、FDNPP 事故による ^{36}Cl の放出量を推定した。

2. 測定と結果

2.1 測定方法

筑波大学 AMS グループでは 2004 年 4 月より筑波大学構内 (北緯 36 度 6 分、東経 140 度 6 分) に降水サンプラーを設置し、一か月ごとに降水を採取している。そのうち 2010 年 1 月から 2012 年 12 月の降水試料を分析した。はじめにイオンクロマトグラフィーで各試料の Cl^-

濃度を測定した。結果をもとに試料から Cl が 1 mg 含まれる量のみを取り分けた (360~3200 mL)。取り分けた試料中の Cl を陰イオン交換樹脂に吸着させ、3 M HNO₃ で溶離した。そして、0.3 M AgNO₃ を加えて AgCl の沈殿を生成させた。沈殿に対して、硫黄除去操作や超純水とエタノールによる洗浄をおこない、AMS 用の試料とした。AMS は筑波大学 AMS システム[4]でおこなった。測定条件は Table.1 に示した通りである。標準試料には西泉博士 (カリフォルニア大学バークレー校) によって作製された 3 種類 ($^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = 1.000 \times 10^{-11}$ 、 1.600×10^{-12} 、 5.000×10^{-13}) を用いた[5]。測定で得られた $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ から ^{36}Cl 降下フラックス ($\text{atoms m}^{-2} \text{s}^{-1}$) および月間降下量 ($\text{atoms m}^{-2} \text{month}^{-1}$) を以下の式に従って求めた。

$$\text{Flux or Monthly fallout} = \frac{(^{36}\text{Cl}/\text{Cl}) \times C \times N_A \times V}{S \times D \times A}$$

C は降水中の Cl 濃度 (mol L^{-1}) であり、 N_A はアボガドロ定数、 V は降水サンプラーで採取した全水量 (L) である。また、 S は降水サンプラーの採水可能面積 (0.035 m^2)、 D は採水日数、 A は規格化定数 (降下フラックスでは 86400、月間降下量では 1) を示す。

2.2 測定結果

2010 年 1 月から 2012 年 12 月のつくば市における ^{36}Cl 降下フラックスを Fig.1 に示した。網掛け部分は 2004 年 4 月から 2009 年 12 月までの ^{36}Cl 降下フラックス[3]を月ごとに平均し、その誤差範囲を示した。なお、降水量不足や測定の不具合により 2010 年 1、2、8 月、2011 年 1 月、2012 年 1、6、8、10、11 月のデータを取得できなかった。

2011 年 3 月の ^{36}Cl 降下フラックスは $(5.2 \pm 0.1) \times 10^2 \text{ atoms m}^{-2} \text{s}^{-1}$ であった。これは 2005 年から 2009 年 3 月の平均値 $30 \pm 19 \text{ atoms m}^{-2} \text{s}^{-1}$ と比較して約 17 倍の増加にあたり、つくば市での ^{36}Cl 月間降下量が $(1.3 \pm 0.1) \times 10^9 \text{ atoms m}^{-2} \text{month}^{-1}$ まで増加したことを示す。2004 年から 2009 年の

間にこのような増加はみられず、FDNPP 事故に由来したものと強く示唆された。2011 年 10 月は $(5.6 \pm 0.1) \times 10^2 \text{ atoms m}^{-2} \text{s}^{-1}$ であり 2011 年 3 月と同程度の増加が確認された。しかし、2011 年 10 月に FDNPP から大量の放射性核種が放出されたという報告はない。本研究では原因を特定できなかったため今後の課題とする。なお、2011 年 3 月と 10 月を除けば ^{36}Cl 降下

Table.1 筑波大学 AMS システムの測定条件

加速電圧	6.0 MV
検出イオン	$^{36}\text{Cl}^{8+}$
イオンエネルギー	56.0 MeV
トランスミッション	7~8 %
精度 ($^{36}\text{Cl}/\text{Cl} \sim 10^{-12}$)	2%
バックグラウンド	$< 3 \times 10^{-15}$ ($^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$)
測定時間	300 秒 × 8 回

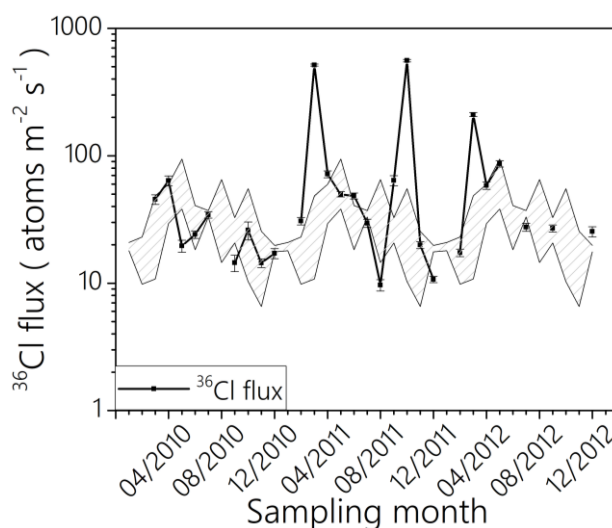


Fig.1 つくば市における ^{36}Cl 降下フラックス変動 (2010 年 1 月 – 2012 年 12 月)

フラックスはおおむね平均値程度の値であった。FDNPP 事故がつくば市の ^{36}Cl 降下フラックスへ与えた影響は直ちに収束したものと考えられる。

3. 考察

3.1 FDNPP 事故により放出された他の核種との比較

つくば市において月間降下量が観測された FDNPP 事故による放出核種のうち、降水中の分析結果から求められた ^{129}I 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs と比較した。 ^{129}I は、 ^{36}Cl を分析した同じ降水の一部を分取して測定された結果である[6]。また、 ^{90}Sr と ^{137}Cs はつくば市の気象庁気象研究所（北緯 36 度 1 分、東経 140 度 1 分）において測定された結果である[7]。本研究で用いた降水サンプラーによる月間降水量と気象研究所に隣接する気象庁高層気象台内のアメダスから発表された月間降水量が一致（決定係数 $R^2 = 0.94$ ）したため、比較に問題はないと判断した。 ^{36}Cl と ^{129}I 月間降下量の比較を Fig.2 に、 ^{36}Cl と ^{90}Sr および ^{137}Cs 月間降下量との比較を Fig.3 に示した。2011 年 4 月から 8 月における ^{36}Cl と 3 核種の月間降下量の相関は、 ^{129}I 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の順に相関係数 $r = 0.7, 0.7, 0.8$ であった。 ^{36}Cl はいずれの核種とも強く相関することから ^{90}Sr や ^{129}I 、 ^{137}Cs と環境中での振る舞いが似ていることが示唆された。

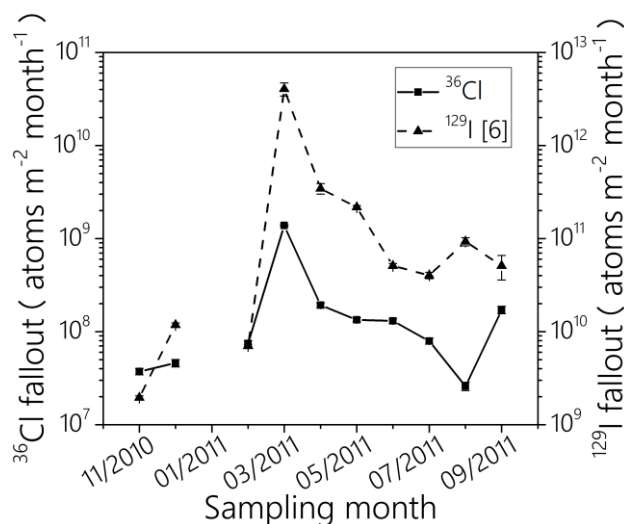


Fig.2 ^{36}Cl と ^{129}I の月間降下量比較
(2010 年 11 月 – 2011 年 9 月)

3.2 FDNPP 事故による ^{36}Cl 放出量の推定

Fig.2 より 2011 年 3 月において ^{36}Cl と ^{129}I の月間降下量の比は $^{129}\text{I} / ^{36}\text{Cl} \sim 3.1 \times 10^3$ であった。ここで、 ^{129}I の FDNPP 事故による放出量は 8.1 GBq と推定されている[8]。同じハロゲン元素である ^{36}Cl と ^{129}I が FDNPP から同様に放出されて、輸送、沈着したと仮定すれば、月間降下量の比と半減期より ^{36}Cl の FDNPP 事故による放出量が 0.14 GBq と推定された。結果の妥当性を確認するために以下の検討をおこなった。Fig.3 より 2011 年 3 月における ^{36}Cl と ^{137}Cs の月間降下量の比は $^{137}\text{Cs} / ^{36}\text{Cl} \sim 2.4 \times 10^4$ であった。よって、月間降下量の比と本研究による ^{36}Cl 推定放出量を用いれば FDNPP 事故による ^{137}Cs 放出量が 33 PBq と推定される。ここで ^{137}Cs 放出量は

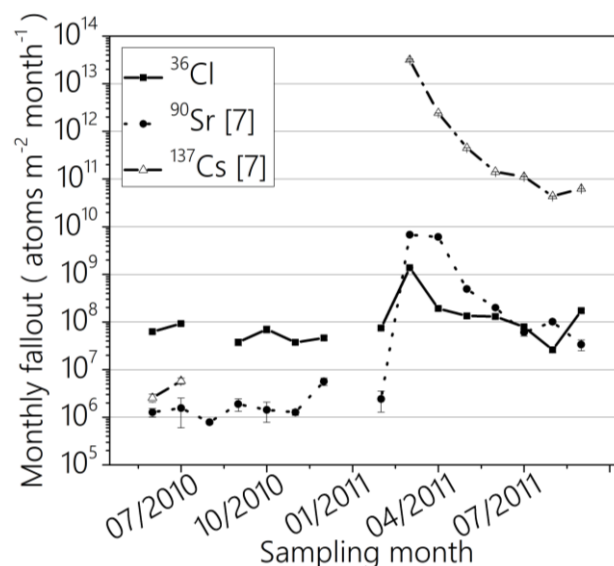


Fig.3 ^{36}Cl と ^{90}Sr および ^{137}Cs 月間降下量比較
(2010 年 11 月 – 2011 年 9 月)

複数の先行研究において 9 – 36 PBq [9] – [11]とされており、本研究による結果と矛盾しない。続いて ^{90}Sr について検討した。 ^{90}Sr の月間降下量は 2011 年 3 月と 4 月で同程度であった。よって ^{36}Cl と ^{90}Sr それぞれについて 3 月と 4 月の月間降下量の和をとり、比を計算した。結果は $^{90}\text{Sr}/^{36}\text{Cl} \sim 9.3$ となり、 ^{137}Cs と同様に計算すると FDNPP 事故による ^{90}Sr 放出量が 13 TBq と推定された。先行研究によれば ^{90}Sr 推定放出量は $2.7 - 80 \text{ TBq}$ [12], [13] とされており、本研究の値と矛盾しない。以上より、 ^{36}Cl 推定放出量 0.14 GBq には一定の妥当性があると判断した。

Table.2 FDNPP による推定放出量

核種	半減期 (年)	推定放出量 (Bq)
^{36}Cl	3.01×10^5	1.4×10^8 (本研究)
^{90}Sr	28.79	13×10^{12} (本研究)
		$2.7 - 3.6 \times 10^{12}$ [12]
		80×10^{12} [13]
^{129}I	1.57×10^7	8.1×10^9 [8]
^{137}Cs	30.07	33×10^{15} (本研究)
		8.9×10^{15} [9]
		15×10^{15} [10]
		36×10^{15} [11]

4. まとめ

本研究では 2010 年 1 月から 2012 年 12 月の降水中 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ を測定し、 ^{36}Cl 降下フラックスおよび月間降下量を求めた。2011 年 3 月は $(5.2 \pm 0.1) \times 10^2 \text{ atoms m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ となり、2005 年から 2009 年の 3 月の平均値と比較して約 17 倍の増加が確認された。続いて、つくば市で観測された FDNPP 事故による放出核種 ^{90}Sr 、 ^{129}I 、 ^{137}Cs と比較した。事故後半年間の月間降下量変動は 3 核種ともに ^{36}Cl と強く相関することから、環境中での振る舞いが似ていることが示唆された。また、2011 年 3 月における ^{36}Cl と ^{129}I の月間降下量の比較および ^{129}I の推定放出量から、 ^{36}Cl の FDNPP 事故による放出量を 0.14 GBq と推定した。この結果から $^{90}\text{Sr}/^{36}\text{Cl}$ や $^{137}\text{Cs}/^{36}\text{Cl}$ から ^{90}Sr や ^{137}Cs の FDNPP 事故による放出量を推定しても先行研究と矛盾しないことより、一定の妥当性があると判断した。

謝辞

降水採取について安部聡美氏に協力をいただきました。また、 ^{36}Cl 測定では筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門の皆様にお世話になりました。心より感謝申し上げます。

参考文献

- [1] N. Kinoshita *et al.*, PNAS. 108 (2011) 19526-19529.
- [2] Y. Miyake *et al.*, Nucl Instrum Meth B. 361 (2015) 627-631.
- [3] Y. Tosaki *et al.*, J Environ Radioactiv. 106 (2012) 73-80.
- [4] K. Sasa *et al.*, Nucl Instrum Meth B. 361 (2015) 124-128.
- [5] P. Sharma *et al.*, Nucl Instrum Meth B. 52 (1990) 410-415.
- [6] M. Matsumura *et al.*, Geochem J. 52 (2018).
- [7] Y. Igarashi *et al.*, Prog Earth Planet Sci. 2 (2015) 1-19.
- [8] X. Hou *et al.*, Environ Sci Technol. 41 (2007) 5993-5999.
- [9] H. Terada *et al.*, J Environ Radioactiv. 112 (2012) 141-154.
- [10] G. Katata *et al.*, Atoms Chem Phys. 15 (2015) 1029-1070.
- [11] A. Stohl *et al.*, Atoms Chem Phys. 12 (2012) 2313-2343.
- [12] K. Hirose *et al.*, Int J Earth Environ Sci. 2 (2017) 134.
- [13] R. Periañez *et al.*, Environ Sci Technol. 47 (2013) 12305-12313.

3.5 福島原発周辺土壌中の ^{36}Cl の深度・蓄積量分布

Depth profile and inventory of ^{36}Cl in soil near the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant

太田祐貴^{1*}・末木啓介¹・笹公和¹・高橋努¹・松中哲也²・松村万寿美¹・戸崎裕貴³・本多真紀¹
 ・細谷青児¹・高野健太¹・落合悠太¹・佐藤志彦⁴・吉川英樹⁴・中間茂雄⁴・箕輪はるか⁵
 OTA, Y.^{1*}, SUEKI, K.¹, SASA, K.¹, TAKAHASHI, T.¹, MATSUNAKA, T.², MATSUMURA, M.¹,
 TOSAKI, Y.³, HONDA, M.¹, HOSOYA, S.¹, TAKANO, K.¹, OCHIALI, Y.¹, SATOU, Y.⁴,
 YOSHIKAWA, H.⁴, NAKAMA, S.⁴, MINOWA, H.⁵

¹ 筑波大学 (University of Tsukuba)

² 金沢大学 (Kanazawa University)

³ 産業技術総合研究所 (National Institute of Advanced Industrial Science and Technology)

⁴ 日本原子力研究開発機構 (Japan Atomic Energy Agency)

⁵ 東京慈恵会医科大学 (The Jikei University School of Medicine)

*Correspondence to: OTA, Y.; E-mail: yuki-ota@ied.tsukuba.ac.jp

Abstract

A large amount of radionuclides was released into the environment by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident. The emission of ^{36}Cl that had its origin in coolant was suspected, whereas ^{36}Cl from the FDNPP was reported in only one paper. Therefore, we conducted additional measurements of ^{36}Cl in the surface soil to a depth of 5 cm at 31 locations (distance from the FDNPP: 1.3 - 30.0 km, date: from June, 2013 to November, 2016) and soil core (distance from the FDNPP: 23.6 km, date: June, 2013 and September, 2017). The $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ ratios of surface soil varied from 0.01 to 1.00 ($\times 10^{-11}$) and high $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ ratios were observed in the northwest region of the FDNPP. In $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ depth profile, high ratios ($^{36}\text{Cl}/\text{Cl} \approx 10^{-12}$ - 10^{-11}) were measured and ^{36}Cl provided from the FDNPP accident has already moved to the depth direction of more than 5 cm at 2013.

Keywords: FDNPP accident; ^{36}Cl ; Inorganic chlorine (Cl_{inorg}); Depth profile

1. はじめに

塩素の放射性同位体である ^{36}Cl (半減期: 30.1 万年) は、大気中における Ar と宇宙線の反応により環境へ常に供給されている。一方、過去には 1952 年から 1958 年の太平洋における核実験により人為的に供給された。これにより、2008 年 5 月から 2009 年 3 月に福島第一原子力発電所(以下 FDNPP)周辺地域で採取された土壌表層において $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ で $0.09 - 4.10 \times 10^{-13}$ という値が確認された[1]。一方、2011 年 3 月に発生した FDNPP 事故にて、事故当時の冷却水で生成したと予想される ^{36}Cl により FDNPP 周辺地域の土壌の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ が $0.11 - 2.63 \times 10^{-11}$ まです上昇したことが Miyake *et al.* (2015)により報告された[2]。しかし、環境試料中の ^{36}Cl の分析

は AMS を要することから、FDNPP 事故後に土壌中の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ を測定した更なる研究はない。結果として、 ^{36}Cl の沈着量は不明である。そこで本研究では、筑波大学 AMS 装置[3]を用いて FDNPP 周辺の 31 地点で採取された表層 5 cm の土壌の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ を求めた。更に、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 深度分布の 2 年分の経時変化を得ることで、土壌中における ^{36}Cl の移動について検討した。

2. 実験

5 cm 表層土壌は 2013 年 6 月から 2016 年 11 月にかけて福島県浪江町・双葉町・大熊町の 31 地点(FDNPP からの距離: 1.3 - 30.0 km)で採取した。30 cm 土壌コアサンプル(直径 5 cm)は 2013 年 6 月と 2017 年 9 月に浪江町の FDNPP から 23.6 km の地点で採取し、1 cm から 3 cm に切り分けた。これら土壌を乾燥後、2 mm ふるいにかけてから粉碎した。この土壌に対して、土壌重量の 3 倍の 0.01 M HNO_3 を加えて 3 時間の超音波による抽出を 5 回行い、無機塩素(Cl_{inorg} : 塩化物イオン)を抽出した。抽出液に TOX 用活性炭 1 g を加えて 3 時間以上の振とうを行ってから、0.2 μm フィルターでろ過して活性炭を除いた。抽出液の一部をイオンクロマトグラフィーにより分析し、その後塩化ナトリウム(Thermo Fisher Scientific 社, $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = 1.31 \times 10^{-14}$)を超純水に溶解して調整した担体を添加した。30%過酸化水素、3 M NH_3 水の順に添加して、有機物・金属不純物の除去を行い、10 mL 以下まで加熱濃縮した。これに対し AMS で妨害となる ^{36}S の除去のため、 BaSO_4 を BaCO_3 との共沈により除去する BaCO_3 法を行った[4]。最後に AgCl を得て AMS により $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ を求めた。標準試料にはアメリカ国立標準技術研究所(NIST)の標準試料を希釈したものを用いた[5]。これとイオンクロマトグラフィーで求めた安定 Cl 濃度より ^{36}Cl 濃度を求めた。

3. 結果と考察

3.1 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 空間分布

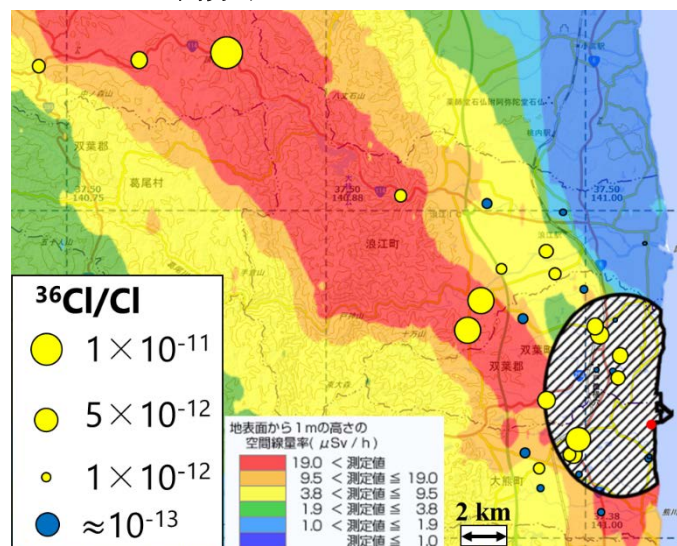


図 1 FDNPP 周辺の 31 地点における表層土壌の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ (マップ: 2011 年 4 月 29 日第 1 回航空機モニタリング実施結果[6])

FDNPP 周辺地域で採取した 5 cm 表層土壌の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ を図 1 に示す。得られた $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は $0.01 - 1.00 \times 10^{-11}$ となった。事故前の FDNPP 周辺地域における $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は $0.09 - 4.10 \times 10^{-13}$ である[1]から、Miyake *et al.*(2015)[2]により示された結果と同様に本研究でも高い $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ が得られた。また、高い $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ は主に FDNPP 北西方向に分布する一方、FDNPP 南方向では低い $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ となった。このことから、 ^{36}Cl は FDNPP 北西方向において、核分裂生成物である ^{137}Cs と放出時期や沈着までの挙動に関して類似性があることが予想される。

FDNPP 事故により放出された ^{36}Cl は事故当時の冷却水に起源を持つと考えられる。今後更なるデータを供することで、土壌中の ^{36}Cl と ^{137}Cs や ^{129}I などの核分裂生成物との比較により、汚染時期や汚染源となった原子炉の情報を得られる可能性がある。しかしながら、土壌中において Cl_{inorg} は速い速度で移動することが一般的に知られている。加えて、低い $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の塩素が湿性沈着及び乾性沈着により常時土壌に供給されている[7]。これにより、FDNPP 事故からの時間の経過とともに、5 cm 表層土壌では FDNPP 事故由来 ^{36}Cl の分析が困難となることが考えられる。この傾向は本研究結果においても見られる。図 2 において、FDNPP から 0 - 5 km 地点において事故直後である 2011 年 4 月には $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} \approx 10^{-12} - 10^{-11}$ であるが、2013 年 6 月以降は $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} \approx 10^{-13} - 10^{-12}$ と値の減少が見られる。そこで、 $^{36}\text{Cl}_{\text{inorg}}$ の移動の検討を行うために $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 深度分布の測定を行った。

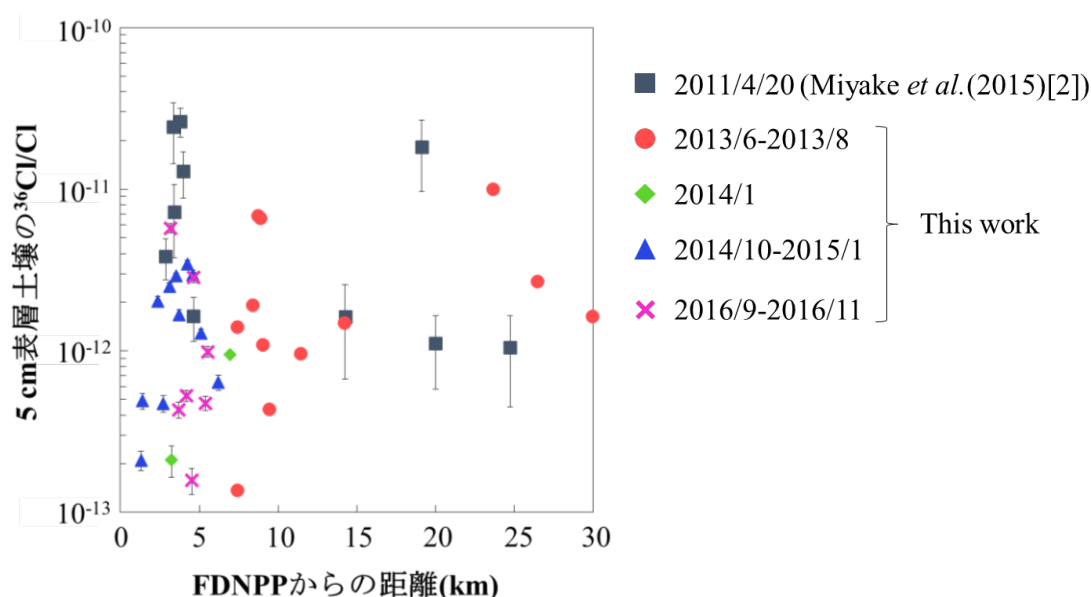


図 2 FDNPP 周辺地域における表層土壌 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の FDNPP からの距離に対する分布

3.2 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 深度分布

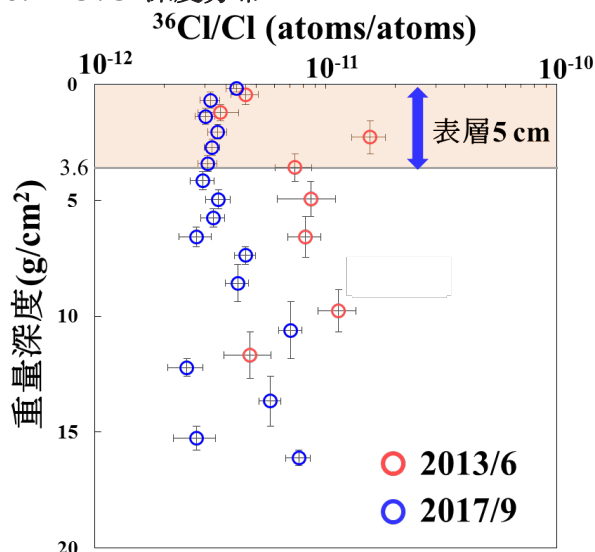


図 3 福島県浪江町の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 深度分布

福島県浪江町の地点(FDNPP からの距離: 23.6 km)における 2013 年 6 月と 2017 年 9 月の $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 深度分布を図 3 に示す。2013 年時点ですでに土壌深部まで $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} \approx 10^{-12} - 10^{-11}$ という高い値を持つことから、FDNPP 事故由来 $^{36}\text{Cl}_{\text{inorg}}$ の土壌深部への移動は事故後 2 年以内で顕著であることが分かった。2013 年から 2017 年にかけてのさらなる深部への移動に関して、今回得られた深度までの蓄積量(Bq/m^2)を算出すると、2013 年は $5.65 \text{ mBq}/\text{m}^2$ であるのに対して 2017 年は $3.46 \text{ mBq}/\text{m}^2$ であり、事故後 2 年から 6 年の間で 61%まで減少した。このことは $^{36}\text{Cl}_{\text{inorg}}$ のさ

らなる移動の可能性を示唆しており、5 cm 表層土壌を用いた FDNPP 事故による ^{36}Cl 沈着量の推定には ^{36}Cl の深部への移動による減少を考慮する必要がある。しかし、図 4 を見ると $^{36}\text{Cl}_{\text{inorg}}$ 濃度の深度分布は単純な指数関数型ではなく、移動速度の推定は慎重に行う必要がある。例えば、過去の研究において、 $^{36}\text{Cl}_{\text{inorg}}$ は土壌中における水の移動のトレーサーとして利用されている[8]。このことから、 $^{36}\text{Cl}_{\text{inorg}}$ の移動に関するモデルには、降雨や蒸発、植物による吸収などによる水の動きを取り入れる必要があると考えられる。

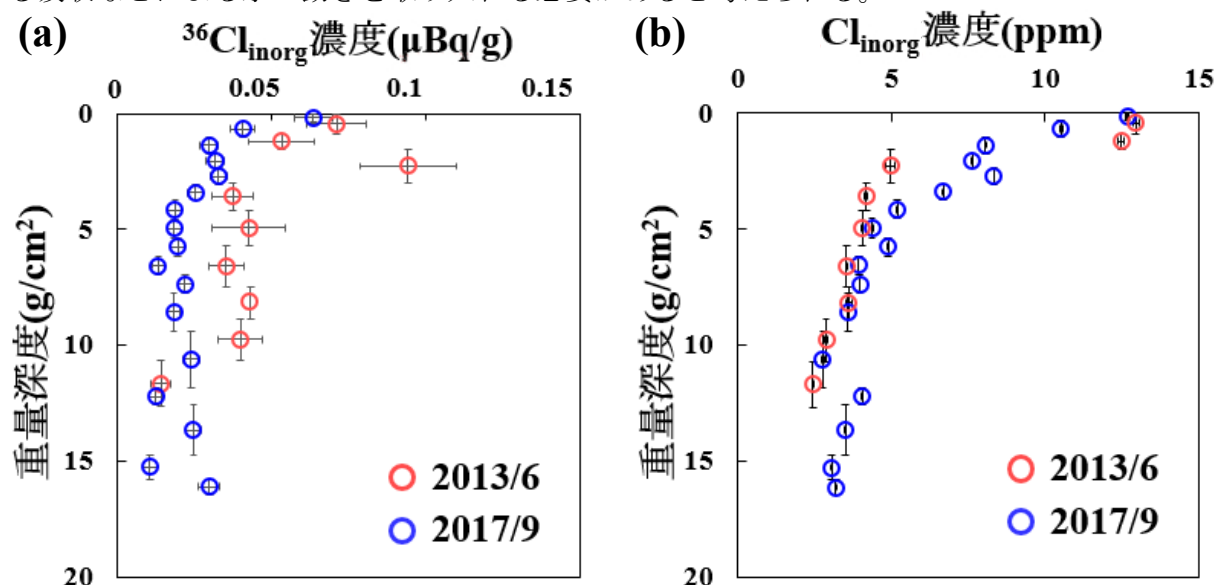


図 4 福島県浪江町の(a) $^{36}\text{Cl}_{\text{inorg}}$ 深度分布, (b) 安定 Cl_{inorg} 深度分布

4. まとめ

FDNPP 事故由来 ^{36}Cl に関して、FDNPP 周辺で採取した 5 cm 表層土壌および 30 cm 土壌コアサンプルを用いて AMS による $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の測定を行った。その結果、事故前と比較して FDNPP 北西方向において $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の上昇が明らかとなった。また $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 深度分布より、2013 年時点ですでに土壌深部まで $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} \approx 10^{-12} - 10^{-11}$ という高い値をとることが分かった。 $^{36}\text{Cl}_{\text{inorg}}$ の移動は水の移動に伴うことが考えられ、2013 年から 2017 年にかけてもさらなる深部への移動が示唆される。今後は水の動きを考慮した $^{36}\text{Cl}_{\text{inorg}}$ 移動モデルの検討を行うことにより、今回測定した 31 地点における FDNPP 事故による ^{36}Cl 沈着量の推定を行うことを目指す。

参考文献

- [1] 天野, 筑波大学大学院数理物質科学研究科修士論文, (2011)
- [2] Miyake *et al.*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **361**, 627-631 (2015)
- [3] Sasa *et al.*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **361**, 124-128 (2015)
- [4] 玉理, 筑波大学大学院数理物質科学研究科修士論文, (2009)
- [5] Sharma *et al.*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **52**, 410-415 (1990)
- [6] 経済産業省, <<http://ramap.jmc.or.jp/map/>>, 2018/2/26 アクセス
- [7] Bastviken *et al.*, *SKB TR-13-26*, (2013)
- [8] Cook *et al.*, *Water Resources Research*, **30**, 1709-1719 (1994)

3.6 西部北太平洋における福島第一原子力発電所事故によって放出された ^{129}I の沈み込み Penetration of ^{129}I released from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident in the western North Pacific Ocean

鈴木崇史^{1*}・乙坂重嘉¹・桑原 潤²・川村英之¹・小林卓也¹
T. Suzuki^{1*}, S. Otsuka¹, J. Kuwabara², H. Kawamura¹, T. Kobayashi¹

¹日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究センター 環境動態研究グループ
(Research Group for Environmental Science, Nuclear Science and Engineering Center,
Japan Atomic Energy Agency)

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
(AMS Management Section, Aomori Research & Development Center,
Japan Atomic Energy Agency)

*Correspondence to: T. Suzuki; E-mail: suzuki.takashi58@jaea.go.jp

要旨

2011 年 3 月に発生した福島第一原子力発電所(1F)事故により、放射性物質が西部北太平洋に放出された。西部北太平洋における 1F 事故起因の放射性物質の動態解明は、水産業等への影響を考慮するうえで重要な問題である。そこで本研究では、親潮、混合及び黒潮海域における ^{129}I の鉛直分布を明らかにし、鉛直方向への放射性物質の移行について考察を行った。親潮、混合及び黒潮海域において、1F 事故起因の ^{129}I はそれぞれ水深 0—100 m, 0—150 m, 及び 370—470 m まで沈み込んでいた。黒潮海域以外では 1F 事故起因の ^{129}I は表層混合層内に存在しており、黒潮海域では表層混合層以深の水深 370—470 m で ^{129}I 極大層が確認された。 ^{129}I 極大層の形成は別の海域の表層海水中に存在していた ^{129}I が速い下降流によって、等密度面に沿って水深 370—470 m に運ばれたためだと考えられる。

Keywords: ヨウ素 129; 福島第一原子力発電所事故; 西部北太平洋; 黒潮続流の蛇行

1.はじめに

2011 年 3 月に発生した福島第一原子力発電所(1F)事故により、放射性物質が西部北太平洋に放出された^{1,2}。西部北太平洋における 1F 事故起因の放射性物質の動態解明は、水産業等への影響を考慮するうえで重要な問題である。これまで、西部北太平洋における 1F 事故起因の放射性核種の分布について現場観測や数値計算を用いた結果が多数報告されているが³⁻⁶、多くの研究は表層に着目しており、放射性核種の海洋内部への輸送過程に

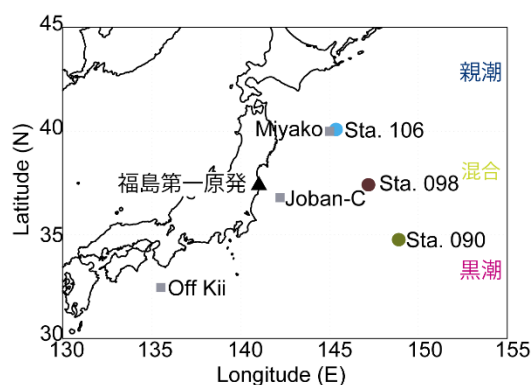


図 1 海水試料採取地点。●は本研究、■は事故前の ^{129}I 鉛直分布が報告された調査地点

について議論した研究は数例しかない⁷⁻⁹。そこで本研究では、西部北太平洋における¹²⁹Iの鉛直分布を明らかにすることにより、鉛直方向への放射性物質の移行について考察を行った。

2.実験

海水試料は、海洋研究開発機構の「みらい」によるMR-11-08次航海にて、図1に示すSta.106 (位置: 40.08°N, 145.37°E, 採取日: 2012年2月4日)、Sta.098 (位置: 37.42°N, 147.19°E, 採取日: 2012年2月3日)、及びSta.090 (位置: 34.77°N, 148.90°E, 採取日: 2012年1月30日)にて表層から水深1,000mまでの13~15層を採取した。海水試料はヨウ素担体を2mg添加後、クロロホルムによる溶媒抽出によりヨウ素を抽出した。抽出されたヨウ素は硝酸銀によりヨウ化銀として回収し、ヨウ化銀中の¹²⁹I/¹²⁷Iを日本原子力研究開発機構青森研究開発センターの加速器質量分析装置で測定した。

3.結果

Sta. 106, 098 及び 090 における¹²⁹I及び密度の鉛直分布を図2に示す。Sta. 106 及び 098 では、¹²⁹I濃度は表層から水深100 m 及び 150 m までそれぞれ 2×10^{10} atoms/m³ 及び 2.5×10^{10} atoms/m³ の一定値を示し、それ以深は水深とともに減少した。Sta.090 における¹²⁹I濃度は、表層から水深300mまで約 1.2×10^{10} atoms/m³ の一定値を示し、そこから470 mにかけて約 1.8×10^{10} atoms/m³ (¹²⁹I極大層) まで増加したのち、それ以深では水深とともに減少した。

表面海水中の塩分及び水温の結果から Sta. 106, 098 及び 090 はそれぞれ親潮、混合及び黒潮海域に相当すると考えられるため、事故以前に親潮、混合及び黒潮海域で

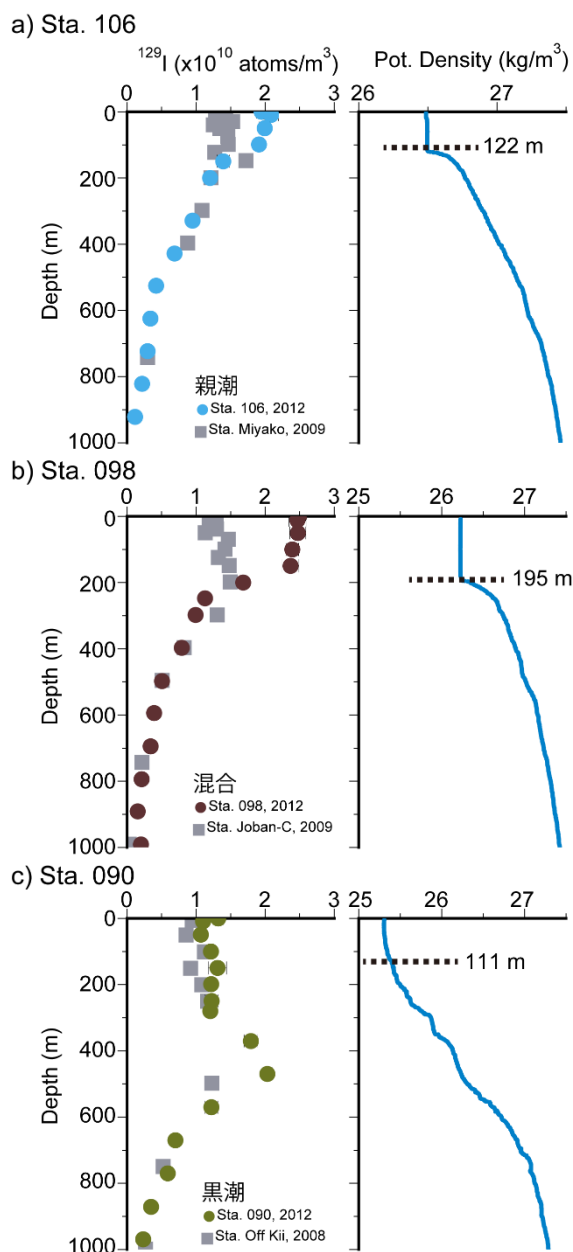


図2 a)Sta. 106、b)Sta. 098 及び c)Sta. 090 における¹²⁹I(左)及び密度(右)の鉛直分布。●は本研究で、■は事故前に得られたデータである。

観測された Miyako, Joban-C 及び Off-Kii の ^{129}I 鉛直分布¹⁰を合わせて図 2 に示す。事故前後で ^{129}I 鉛直分布を比較すると、 ^{129}I 濃度は Sta. 106, 098 及び 090 でそれぞれ 0–100 m, 0–150 m, 及び 370–470 m で濃度上昇が確認された。密度の鉛直分布の結果から、表層混合層(表面海水の密度との差が $0.05\sigma_\theta$ 未満)は Sta. 106, 098 及び 090 でそれぞれ 122 m, 195 m 及び 111 m まで存在している事が確認された。したがって、 ^{129}I 濃度上昇は Sta.106 及び 098 では表層混合層内で、Sta. 090 では表層混合層以深で観測された。

4.考察

^{129}I 極大層の形成機構

1) モード水の形成による輸送

表層混合層より深い海水中で事故由来の放射性セシウムが観測された結果は数報報告されており、それらは亜熱帯モード水及び中央モード水の形成によって輸送されたと考えられている^{8,9}。そこで ^{129}I 極大層とモード水の海洋学的特徴を表 1 にまとめた。 ^{129}I 極大層における海洋学的特徴はモード水のそれと完全に一致しない。したがって、 ^{129}I 極大層の形成はこれらのモード水とは異なる特徴を持つ海水の流入によるものと考えられる。

表 1 ^{129}I 極大層とモード水の海洋学的特徴

	^{129}I 極大層	モード水	
		亜熱帯	中央
水温 (°C)	6.8 – 11.40	16.5	9 – 12
塩分 (PSU)	33.78 – 34.13	34.85	34.1 – 34.4
密度 (kg/m^3)	26.06 – 26.51	25.2	26.2

2) 下降流による輸送

図 3 に Sta. 090 における、ポテンシャル水温、塩分及び溶存酸素の鉛直分布の結果を示す。この結果から水深 370–550 m に、低温、低塩分かつ高溶存酸素という特徴を有している海水が存在している事がわかった。そこで日本周辺の水温、塩分及び流速を含む北西太平洋海洋長期再解析データセット(FORAWNP30)¹¹を利用し、 ^{129}I 極大層を形成した海水の輸送機構の解明を行った。図 4 に Sta. 090 を観測した日における水平及び鉛直方向の流速を示した。Sta. 090 は黒潮続流が蛇行している流軸上に存在していた事が確認されたので、図 4 に示した黒線における深さ方向の密度断面図を図 5 に示す。水深 370–550m ($26.0 < \sigma_\theta < 26.5$)の海水は Sta. 090 から流軸に沿って約 200 km 手前で表層に露出していた。溶存酸素は表面海水からのみ供給されるため、 $26.0 < \sigma_\theta < 26.5$ の海水は表層で酸素を取り込んだ海水が、等密度面にそって輸送されたと考えられる。しかし $\sigma_\theta < 26.0$ (370 m 以浅)の海水の溶存酸素は $26.0 < \sigma_\theta$

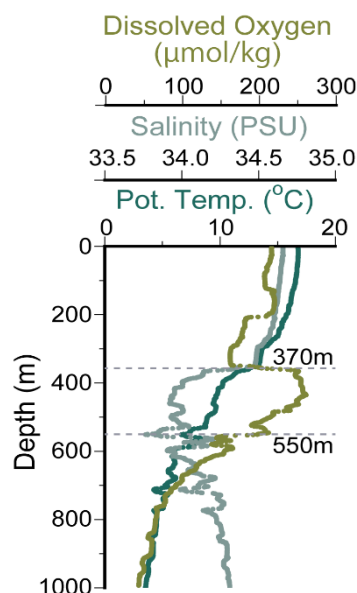


図 3 Sta.090 におけるポテンシャル水温、塩分、溶存酸素の鉛直分布

< 26.5 (370–550 m) の海水より低かった。そこで、FORA-WNP30 により Sta. 090 周辺の流速について解析を行った。2012 年 1 月 25 日～30 日の間の水深 a)100 m、b)200 m、c)300 m 及び d)400m における平均流速を図 6 に示す。図 6 に示した黒線の西端 ($26.0 < \sigma_\theta < 26.5$ が表面に露出する海域) に強い下降流が存在していた。この下降流は $(4-8) \times 10^{-4} \text{ m/s}$ で、370–470 m の水深までは数日で到達する事ができる速さである。すなわち $26.0 < \sigma_\theta < 26.5$ (370–550 m) の海水は表層海水が速い下降流によって輸送されたと考えられる。以上の考察から、 ^{129}I 極大層は、別の海域の表層海水の中に存在していた ^{129}I が速い下降流によって等密度面に沿って水深 370–470 m に運ばれ形成されたと結論付けられた。

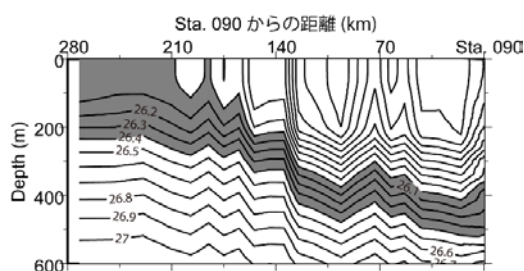


図 5 黒潮続流の流軸に沿った密度の断面図。密度が ^{129}I 極大層と同じ海水を灰色で示す。

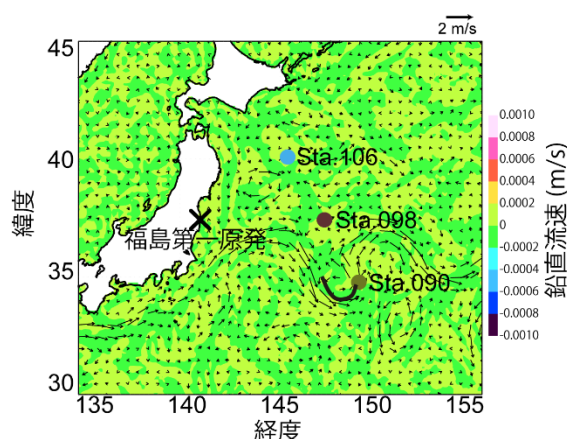


図 4 Sta.090 観測時(2012 年 1 月 30 日)における流速。矢印は水平方向、色は鉛直方向の流速を示す。

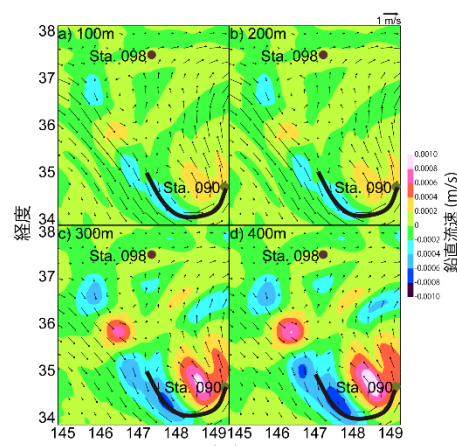


図 6 2012 年 1 月 25 日～30 日の間の水深 a)100 m、b)200 m、c)300 m 及び d)400m における平均流速。矢印は水平方向、色は鉛直方向の流速を示す。

参考文献

- 1 Chino, M. *et al. J. Nucl. Sci. Technol.* **48**, 1129-1134 (2011).
- 2 Buesseler, K. *et al. Environ. Sci. Technol.* **45**, 9931-9935 (2011).
- 3 Buesseler, K. *et al. Annu. Rev. Mar. Sci.* **9**, 173-203 (2017).
- 4 Kawamura, H. *et al. J. Nucl. Sci. Technol.* **48**, 1349-1356 (2011).
- 5 Kobayashi, T. *et al. J. Nucl. Sci. Technol.* **52**, 769-772, (2015).
- 6 Tsumune, D. *et al. J. Environ. Radioact.* **111**, 100-108 (2012).
- 7 Aoyama, M. *et al. J. Oceanogr.* **72**, 53-65 (2016).
- 8 Kaeriyama, H. *et al. Sci. Rep.* **6**, 22010 (2016).
- 9 Kumamoto, Y. *et al. Sci. Rep.* **4**, 4276 (2014).
- 10 Suzuki, T., *et al. Biogeosciences* **10**, 3839-3847 (2013).
- 11 Usui, N. *et al. J. Oceanogr.* **73**, 205-233, (2017).

3.7 北極海における海水中 ^{129}I 濃度の経年変化

Temporal variation of ^{129}I concentration in seawater of the Arctic Ocean

永井尚生 ^{1*}・山形武靖 ¹・長谷川憲 ²・工藤 輝 ²・熊本雄一郎 ³・西野茂人 ³・松崎浩之 ⁴
H. Nagai ^{1*}, T. Yamagata ¹, A. Hasegawa ², A. Kudo ², Y. Kumamoto ³, S. Nishino ³, H. Matsuzaki ⁴

¹日大文理 (College of Humanities and Sciences, Nihon University)

²日大院総合基 (Graduate School of Integrated Basic Sciences, Nihon University)

³JAMSTEC (Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology)

⁴東大博物館 (The University Museum, the University of Tokyo)

*Correspondence to: H. Nagai; E-mail: hnagai@chs.nihon-u.ac.jp

^{129}I concentrations were measured in surface waters and for three depth profiles in the Chukchi Borderland (74.5°N 162.0°W) and the southern Canada Basin (72.5°N 155.4°W) during the R/V Mirai cruises in 2013, 2014 and 2015. The ^{129}I concentrations in the surface waters of the North Pacific Ocean and the Bering and Chukchi seas in 2013, 2014 and 2015 were 1.44 ± 0.28 , 1.35 ± 0.19 and $1.18 \pm 0.17 \times 10^7$ atoms L^{-1} , respectively. The depth profiles of ^{129}I were almost identical in 2013 to 2015. ^{129}I concentrations were $10\text{--}20 \times 10^7$ atoms L^{-1} in the surface layer, less than 10×10^7 atoms L^{-1} (i.e., the minimum value) around 100–150 m, and $65\text{--}120 \times 10^7$ atoms L^{-1} below 300 m (below 200 m in 2015). Although the peak ^{129}I concentrations exhibited slightly fluctuating values of $90\text{--}120 \times 10^7$ atoms L^{-1} , the average ^{129}I concentrations at water depths in ranging from 300 to 800 m were an almost constant ($83\text{--}86 \times 10^7$ atoms L^{-1}) from 2013 to 2015. Both the low ^{129}I concentration level relative to other areas of the Arctic Ocean and the constant ^{129}I concentrations over time may correspond to the ages of low discharge rate, until the mid-1990s, from the nuclear fuel-reprocessing facilities at Sellafield (U.K.) and La Hague (France) to the Atlantic Ocean.

Keywords: ^{129}I ; seawater; Arctic Ocean

1. はじめに

現在の環境中に存在する ^{129}I の大部分は人為起源のものであり、さらにその大部分は Sellafield (U.K.) と La Hague (France) の 2 箇所の核燃料再処理工場から放出されたものである。 ^{129}I の一部 (1%前後) は大気中に放出されているが、残りは全て海洋へ放出されている。Sellafield からはアイリッシュ海へ、La Hague からはイギリス海峡へ、放出され北海を経てノルウェー海へ輸送され、フラム海峡またはバレンツ海、カラ海を通り北極海へ輸送される。北極海においては、ユーラシア海盆を循環し、一部は更にマカロフ海盆、カナダ海盆を循環し、最終的にはフラム海峡を通り大西洋へ戻る (図 1 (a))。放出源付近の海域の表層の ^{129}I 濃度は $10^{11}\text{--}10^{12}$ atoms L^{-1} [1] であり北部北太平洋表層の ^{129}I 濃度 $1\text{--}2 \times 10^7$ atoms L^{-1} [2-4] の 10000 倍以上に達する。このため ^{129}I は北極海において海水のトレーサーとして用いられ、放出源から最も遠いカナダ海盆においても、 ^{129}I 濃度

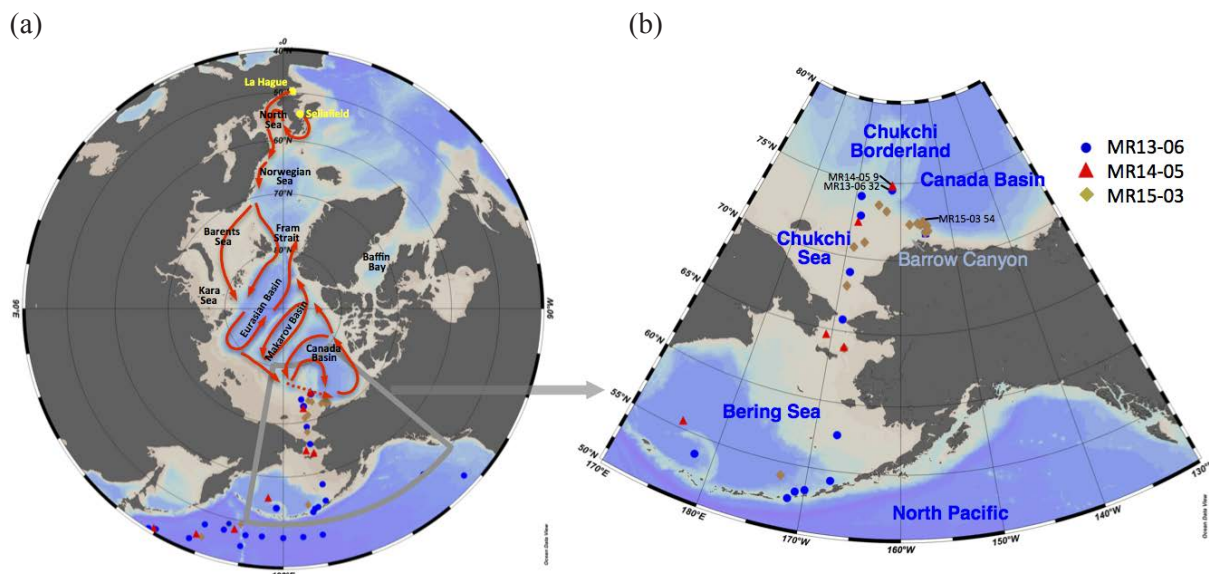


図1 (a) 大西洋-北極海における ^{129}I (大西洋水) の輸送経路
(b) MR13-06、MR14-05、MR15-03 における採水点

の増加が観察されている[5]。本研究では、JAMSTEC みらい MR13-06 (2013)、MR14-05 (2014)、MR15-03 (2015) 航海において、CTD-CMS を用いて採取した水深 800m までの海水中の ^{129}I 濃度測定を行い、北極海 (Chukchi Borderland 及び southern Canada Basin, 以下この海域を「カナダ海盆南部」と表記) における経年変化を観察した。

2. 試料と方法

試料は JAMSTEC みらい航海 MR13-06 (2013.9-10)、MR14-05 (2014.9-10)、MR15-03 (2015.9-10) において、北部北太平洋-カナダ海盆南部において船底からポンプを用いて採取した表面水及びカナダ海盆南部の測点 (MR13-06_32 [74.54°N, 161.97°W]、MR14-05_9 [74.75°N, 161.99°W]、MR15-03_54 [72.48°N, 155.40°W]) において CTD-CMS により採取した 0-800m の海水 0.2L を用いた (図 1 (b))。陸上の実験室に持ち帰った海水試料をろ過 (0.45 μm メンブランフィルター) し、ヨウ素担体 (1mg I) を加えた後、溶媒抽出法によりヨウ素の精製・回収を行い、東京大学ダンドム加速器研究施設 MALT において ^{129}I -AMS を行った[3,6]。

3. 表層の ^{129}I 濃度分布

北太平洋 (北部 47°N 付近 KH-12-4[3])、ベーリング海、チュクチ海、カナダ海盆南部 (2012-2015 年) における表層の ^{129}I 濃度分布を図 2 に示す。北部北太平洋、ベーリング海、チュクチ海の (2013-2015 年における) 表層水中平均 ^{129}I 濃度はそれぞれ $1.44, 1.17, 1.47 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ であり、ベーリング海、特にアラスカ沿岸はやや低濃度であるが、海域間で表層海水の ^{129}I 濃度に有意の差は認められず、これまで北

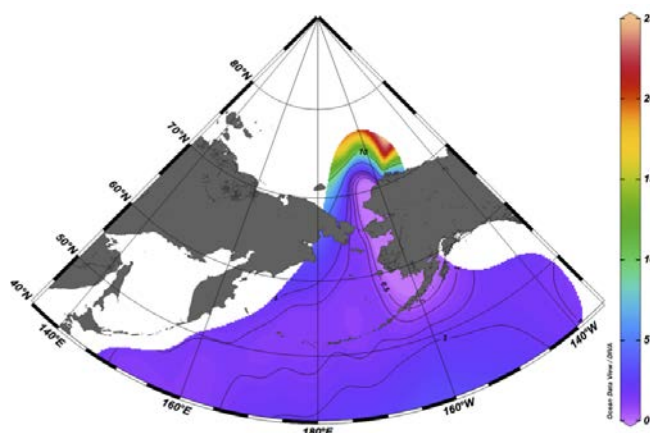


図2 北部北太平洋-ベーリング海-チュクチ海-カナダ海盆南部における表層の ^{129}I 濃度分布

太平洋で報告されている値 $1.5\text{--}1.8 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ [2-4] と同レベルであった。また、この海域における年毎の (MR13-06, MR14-05, MR15-03 の) 平均 ^{129}I 濃度はそれぞれ $1.44, 1.35, 1.18 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ であり、これらの海域では 2013-2015 の間に ^{129}I 濃度は変動していなかった。

チュクチ海の水深 60m を越えたカナダ海盆南部との境界においては、 ^{129}I 濃度は $3.4\text{--}5.4 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ と高くなり、海盆 (カナダ海盆南部) では更に高濃度となり、北太平洋の約 10 倍 ($10\text{--}25$) $\times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ まで上昇する。この高い ^{129}I 濃度は大西洋水 (Atlantic Water [AW]) から生成した海氷 (結氷時に包有したブラインに高濃度 ^{129}I が含まれている [7]) の融解に由来すると考えられるが、チュクチ海には影響が及んでいない。これは、ベーリング海峡における海水の輸送の収支から説明される。ベーリング海峡においては、ベーリング海 (北太平洋) からチュクチ海への海水輸送が卓越し、輸送量は平均 0.8 Sv ($10^6 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$) [8] であり、輸送される海水は ^{129}I 濃度が低い太平洋水 (Pacific Water [PW]) であるため、チュクチ海はほぼ太平洋水で満たされていることを示している。

4. カナダ海盆南部における鉛直分布 ^{129}I 濃度の鉛直分布

カナダ海盆南部における ^{129}I 濃度・塩分・ポテンシャル水温の鉛直分布を図 5 に示す。カナダ海盆南部において、海水は 0-25m に海氷の融解により低塩分 ($S=25\text{--}30$) の表層 (混合層)、100m 付近にはチュクチ海から流入した太平洋水 ($S \sim 32.5$)、300m 以深には大西洋水 ($S \sim 34.8$)、その間の 2 つの塩分躍層という鉛直層構造を示す [9]。MR13-06_32、MR14-05_9、MR15-03_54 の 0-800m における塩分・ポテンシャル水温の鉛直分布 (図 3) は相互に類似し、この構造に対応している。また、それぞれの海水の起源毎に ^{129}I 濃度は異なり、表層 0-25m は高濃度の大西洋水由来の海氷の融解の寄与 [7] によりやや高く $10\text{--}20 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ 、水深 100-150m 付近では太平洋水 ($\sim 1.5 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$) の寄与により極小値 $< 10 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ 、300-800m では大西洋水の存在により高濃度 $65\text{--}120 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ 、を示し海水の鉛直層構造に対応した ^{129}I 濃度の鉛直層構造が観測された (図 3)。

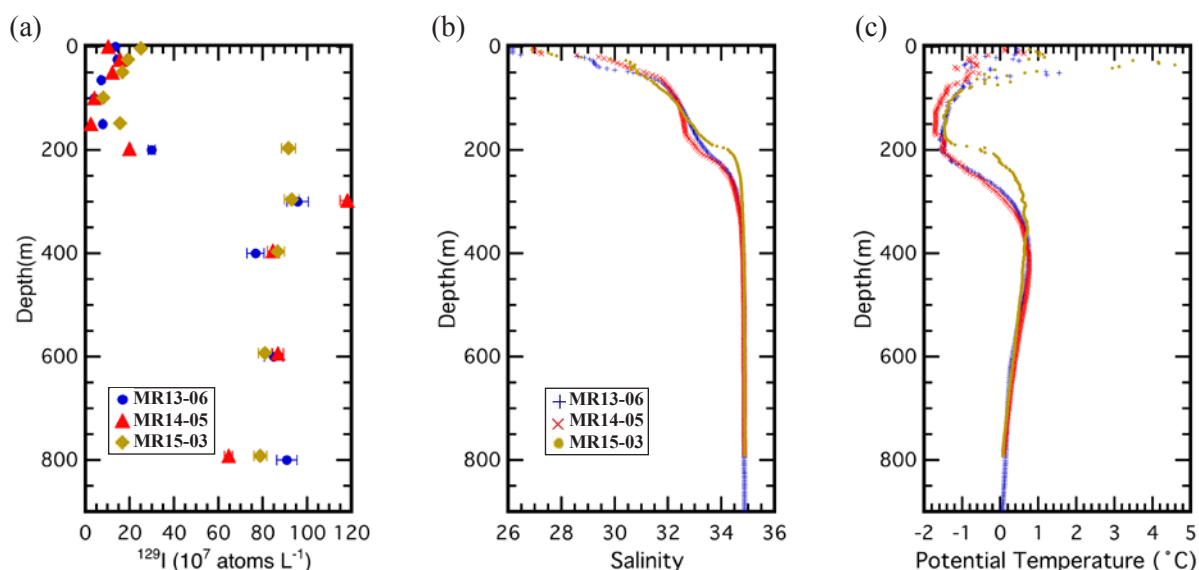
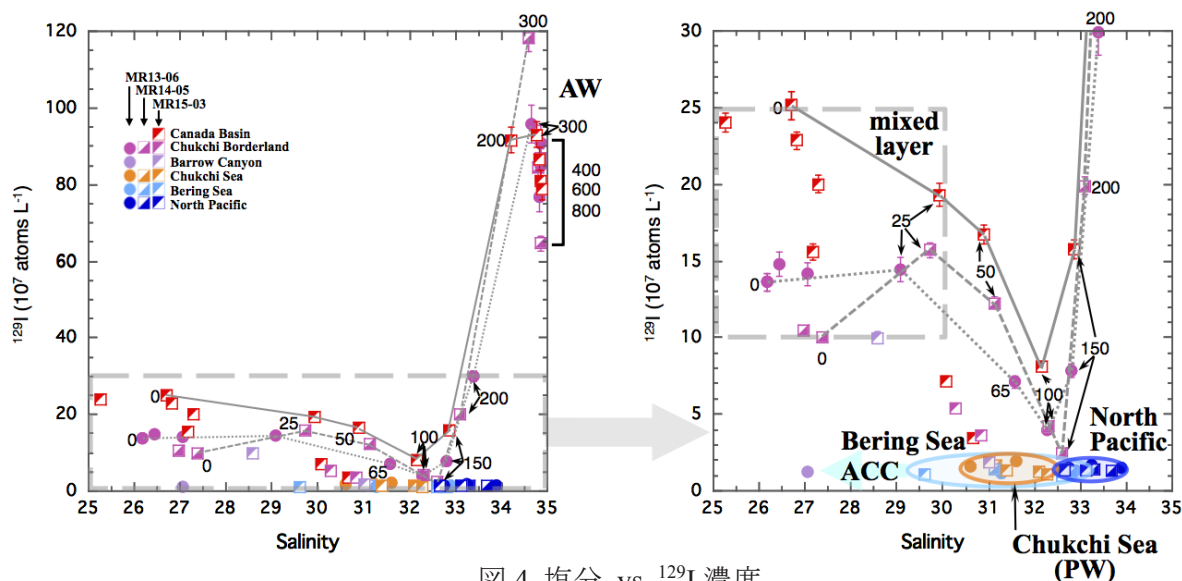


図 3 カナダ海盆南部における海水の鉛直分布 (a) ^{129}I 濃度、(b) 塩分、(c) ポテンシャル水温

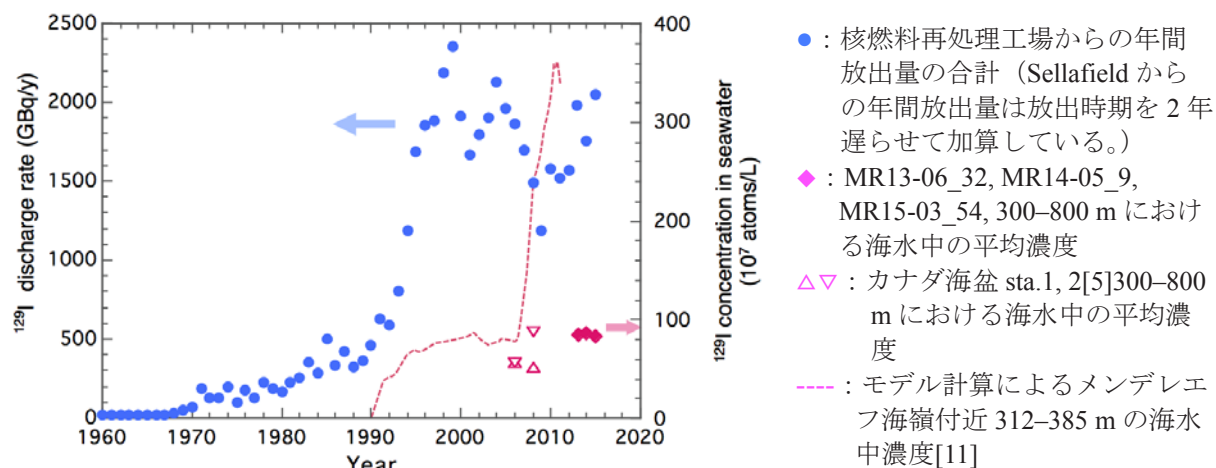
図4 塩分 vs. ^{129}I 濃度

これらの鉛直分布と表層（KH-12-4 はベーリング海のみ）について、塩分と ^{129}I 濃度の関係を図4に示す。大西洋水 400-800m は塩分一定 ($S=34.81\text{--}34.87$) 高濃度 ($^{129}\text{I}=65\text{--}90 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$) の狭い範囲に分布しており、下部の塩分躍層は 300 (200) m の大西洋水 ($S \sim 34.6$, $^{129}\text{I} = 90\text{--}120 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$) とチュクチ海海水 ($S=31\text{--}32$ 太平洋水、 $^{129}\text{I} \sim 1.5 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$) との混合線上に、上部の塩分躍層および表層の一部はチュクチ海海水と海水の融解水 ($S=25\text{--}30$, $^{129}\text{I} = 10\text{--}25 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$) との混合線上に、それぞれプロットされる。

一方、北太平洋、ベーリング海、チュクチ海は、低 ^{129}I 濃度 ($1.5 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$) で海域ごとに異なる塩分範囲に分布している。ベーリング海、チュクチ海、バロー峡谷 (Barrow Canyon) は北太平洋と比べ塩分が低下 ($S=27\text{--}31$) しているが、 ^{129}I 濃度が増加していないため、 ^{129}I 濃度の低い淡水の付加により塩分が減少したアラスカ沿岸流 (Alaskan Coastal Current [ACC]) の影響と考えられる[10]。

5. 経年変化

再処理工場からの ^{129}I 放出量は 1990 年代 (1993-1996 年頃) に急増しているが、ユーラシア海盆において 2007 年には、表層及び深度 300m の ^{129}I 濃度がそれぞれ $600, 200 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ と ^{129}I 放出量の急増に対応し、2006 年以前の約 3 倍に上昇した値が観測されている[5]。これに対しカナダ海盆南部においては、表層 300m までは大太平洋水の影響のためこのような ^{129}I 濃度の上昇は起こらないと思われるが、300m 以深では、濃度の急上昇が観察される可能性は存在する。2013-2015 年カナダ海盆南部で観察された 300-800 m の平均 ^{129}I 濃度は 85、86、 $83 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ と一定であり、さらに 2006 年、2008 年のカナダ海盆 (sta.1 [72.6°N 143.8°W], sta.2 [77.5°N 151°W 付近]) の 300-800 m の平均 ^{129}I 濃度、 $50\text{--}90 \times 10^7 \text{ atoms L}^{-1}$ [5] とほぼ同じレベルであった。図5に再処理工場からの ^{129}I 放出量の経年変化とカナダ海盆 300-800 m の平均 ^{129}I 濃度、メンデレーフ海嶺 (Mendeleev Ridge) 付近 312-385 m についてのモデル計算による ^{129}I 濃度の推定[11]を示す。現在のカナダ海盆 300m 以深の ^{129}I 濃度は北極海の他の海域より低く、再処理工場からの放出量が減少していないため、 ^{129}I 濃度はまだ上昇する余地がありそうである。濃度上昇の時期については、単純な移流モデルによれば北海からカナダ

図5 ^{129}I の経年変化

海盆のタイムラグは 18–21 年と見積もられている[5]。我々のカナダ海盆南部のデータは 20–22 年のタイムラグなのでこの見積とほぼ同程度であり、 ^{129}I 濃度が北極海の他の海域より低いことを考え合わせると、カナダ海盆南部においてこれから ^{129}I 濃度の増加が起こる可能性が高いと思われる。

6. おわりに

カナダ海盆における表層・中層の海水循環が最近大きく変動していると考えられている[11]。従って大西洋水循環の最奥部であるカナダ海盆南部において、再処理工場からの ^{129}I 流出量の経年変化に直線的に応答した海水中 ^{129}I 濃度の変化が観測されると断定はできないが、暫くは観測を継続させる必要があると思われる。

[参考文献]

- [1] P. He, A. Aldahan, G. Possnert, X.L. Hou, Nucl. Instr. Meth. B 294 (2013) 537.
- [2] P.P. Povinec, M. Aoyama, D. Biddulph, R. Breier, K. Buesseler, C.C. Chang, R. Golser, X.L. Hou, M. Jěskovský, A.J.T. Jull, J. Kaizer, M. Nakano, H. Nies, L. Palcsu, L. Papp, M.K. Pham, P. Steier, and L.Y. Zhang, Cesium, Biogeosciences 10 (2013) 5481.
- [3] H. Nagai, A. Hasegawa, T. Yamagata, Y. Kumamoto, S. Nishino, H. Matsuzaki, Nucl. Instr. Meth. B361 (2015) 680.
- [4] T. Suzuki, S. Otsuka, J. Kuwabara, H. Kawamura, T. Kobayashi, Biogeosciences 10 (2013) 3839.
- [5] J.N. Smith, F.A. McLaughlin, W.M. Smethie Jr, S.B. Moran, K. Lepore, J. Geophys. Res. 116 (2011) C04024.
- [6] H. Matsuzaki, Y. Muramatsu, K. Kato, M. Yasumoto, C. Nakano, Nucl. Instr. Meth. B 259 (2007) 721.
- [7] A. Aldahan, V. Alifimov, G. Possnert, Appl. Geochem. 22 (2007) 606.
- [8] R.A. Woodgate, K. Aagaard, T.J. Weingartner, Geophys. Res. Lett. 33 (2006) L15609.
- [9] B. Rudels, E. P. Jones, U. Schauer, P. Eriksson, Polar Res. 23 (2004) 181.
- [10] R.A. Woodgate, K. Aagaard, Geophys. Res. Lett. 32 (2005) L02602.
- [11] M. Karcher, J.N. Smith, F. Kauker, R. Gerdes, W.M. Smethie Jr., J. Geophys. Res. 117 (2012) C08007.

3.8 白頭山 10 世紀噴火の確定年代からみた十和田カルデラ 10 世紀噴火年代の再検討 Reconsideration of the age of the Towada caldera 10th century eruption based on the fixed age of the Baitoushan 10th century eruption

箱崎真隆^{1*}Masataka HAKOZAKI^{1*}¹国立歴史民俗博物館(National Museum of Japanese History)

*Correspondence to: Hakozaki, M; E-mail: hakozaki@rekihaku.ac.jp

要約

十和田カルデラの 10 世紀噴火は、古文書の間接的な降灰記録と、ラハールに埋没した建築物・家具構造材の年輪年代から「西暦 915 年」に発生したと推定されている。この噴火を起源とする To-a テフラは、東北地方の考古学・地質学研究における重要な鍵層とみなされている。また、中国と北朝鮮の国境に位置する白頭山の 10 世紀噴火を起源とする B-Tm テフラの年代推定にも利用され、東北地方北部の湖底堆積物の年縞分析から、白頭山 10 世紀噴火の年代は西暦 937～938 年または西暦 929 年と推定されている。近年、西暦 775 年の年輪 ¹⁴C 濃度急増イベント(通称:AD775 ¹⁴C spike または Miyake Event)を年代基準とする新年代法「¹⁴C spike-matching」により、白頭山 10 世紀噴火の年代は「西暦 946 年」に確定した。また、新年代法「酸素同位体比年輪年代法」によっても、この年代は再現された。この年代は年縞分析に基づく年代と矛盾した。しかし、仮に年縞分析に誤りがない場合、To-a の年代推定に誤りがある可能性が生じる。十和田カルデラ 10 世紀噴火の降灰を示唆するという古文書の記述はあくまで間接記録であり、ラハールに埋没する構造材の年輪年代も、人為伐採のタイミングを示唆するに留まることから、噴火年代の確証はまだ得られていないとみなすことができる。十和田カルデラ 10 世紀噴火の年代を確定させるためには、ラハールに埋没する樹皮付自然埋没木を複数得て、¹⁴C spike-matching または酸素同位体比年輪年代法により、多くの樹木が同時に枯死した年代を正確に求め、それを根拠とする必要がある。

Keywords: 十和田カルデラ; To-a テフラ; 白頭山; B-Tm テフラ; AD775 ¹⁴C spike

1. 十和田カルデラ 10 世紀噴火に関する先行研究

十和田カルデラにおいて 10 世紀前半に発生した噴火は、過去 2000 年間で日本最大規模の噴火と推定されている。その発生年は、「扶桑略記」に残る降灰の記述と、火山活動で発生したラハールに埋没した建築物・家具の構成材の年輪年代から「西暦 915 年」と求められている(奈良国立文化財研究所(1990)、早川・小山(1998)、赤石ほか(2000)、町田・新井(2003)、大河内(2008))。この噴火によって噴出した火山灰は十和田 a (To-a) テフラと認識され、東北日本の考古学・地質学において重要な鍵層として認識されている(小野ほか(2012)、(2017)、北東北古代集落研究会(2014)など)。

To-a テフラは、その上位に堆積する白頭山 10 世紀噴火起源の白頭山-苦小牧(B-Tm)テフラの年代決定にも応用されてきた。福澤ほか(1998)は To-a テフラと B-Tm テフラに狭在す

る年縞の数を青森県小川原湖の湖底堆積物から計数し、B-Tm の年代を西暦 937～938 年と求めた。また、上手ほか(2010)は、同様の分析を秋田県男鹿半島二ノ目潟・三ノ目潟の堆積物で実施し、B-Tm の年代を西暦 929 年と求めた。

2. B-Tm の確定年代

近年、Oppenheimer et al.(2017)は白頭山北西麓の埋没木に ^{14}C spike-matching (西暦 775 年の年輪炭素 14 濃度急増(Miyake et al. (2012))を鍵層とする炭素 14 年輪年代法)を適用し、白頭山 10 世紀噴火の年代を「西暦 946 年」と求めた。Hakozaki et al. (2018)は同様の分析を白頭山北東麓の埋没木で実施し、樹皮直下年輪の年代が「西暦 946 年」であることを確認した。

また、木村ほか(2017)は、Hakozaki et al. (2018)と同一試料に対して酸素同位体比年輪年代法(中塚 2015 など)を適用し、年代既知の北日本版酸素同位体比標準年輪曲線(箱崎ほか 2017)とのクロスデーティングによって、同試料に欠損年輪・偽年輪等が無く、樹皮直下年輪の年代が「西暦 946 年」であることを確認した。

これらの複数の独立した分析により、白頭山 10 世紀噴火(B-Tm)の年代は「西暦 946 年」に確定した。したがって、福澤ほか(1998)と上手ほか(2010)が年縞分析から求めた B-Tm の年代は誤りであったことも確定した。

3. To-a の推定年代に対する疑義

しかしながら、福澤ほか(1998)と上手ほか(2010)による年縞分析に誤りが無い場合は、To-a テフラの年代が「西暦 915 年」ではなく、B-Tm の確定年代から遡って「西暦 923～924 年」または「西暦 932 年」である可能性が生じる。

十和田カルデラ 10 世紀噴火の年代根拠の一つ「扶桑略記」は、京都延暦寺の僧侶の記録とされ、延喜 15 年(西暦 915 年)の記録には、下記の記述がある(早川・小山(1998))。

七月五日 甲子卯時 日 无暉其貌似月時人奇之

(8 月 18 日 朝日に輝きがなくまるで月のようだったので人々は不思議に思った)

十三日 出羽国言上雨灰高二寸諸郷農桑枯損之由

(8 月 26 日 灰が二寸積もり桑の葉が各地で枯れたと出羽国から報告があった)

これら記述は、近畿地方における多量の大气エアロゾルの流入と、東北地方における多量の火山灰の降灰を示唆しており、大噴火であった十和田カルデラの噴火と結びつけることに、一定の説得力を持つ。しかし、現地記録ではなく、あくまで間接的な記録であり、別の火山噴火の記録である可能性も排除できない。

もう一つの年代根拠である「ラハールに埋もれた建築物構造材の年輪年代」も、決定的な年代情報とは言い難い。秋田県北秋田市胡桃館遺跡では、建築物・家具構造材の最も外側の年輪年代が西暦 900～902 年と求められている(奈良国立文化財研究所(1990)、大河内(2008))。しかし、これらの構造材は心材型または辺材型と分類されており、伐採年を示す「樹皮」または「樹皮直下の年輪」があるとはみなされていない。

さらに、見逃すことのできない重要なポイントは、これらの構造材が年輪数 200 年前後の高齢木から加工されたものであるという点である。通常、樹木は成長するに従って年輪幅が狭く

なり、辺材部には数十層の年輪を含むことが多い(図 1)。仮に、噴火が起きたとされる 915 年に、これらの構造材の原木が伐採され、加工されたとしても、最外年輪が西暦 902 年である心材型の木材には、取り去られた辺材部(＋心材の一部)に 13 層しか年輪がなかったことになる。あり得ないことではないが、事実であればかなり稀なケースである。

また、そもそも構造材であるため、樹皮または樹皮直下年輪が残存したとしても、その年代は人為的に伐採された年を示すだけで、ラハール発生年そのものではなく、その下限(少なくともその年までラハールが発生しなかったこと)を示すに留まる。

このように十和田カルデラ 10 世紀噴火の年代根拠とされてきた文書記録と年輪年代は、どちらも有力な情報であるものの、確たる証拠とは言えないものである。これらの年代情報は互いに矛盾しないため、多くの出版物において蓋然性の高い年代情報として扱われてきた。その結果、「To-a=915 年」という認識が今日では広く定着している。

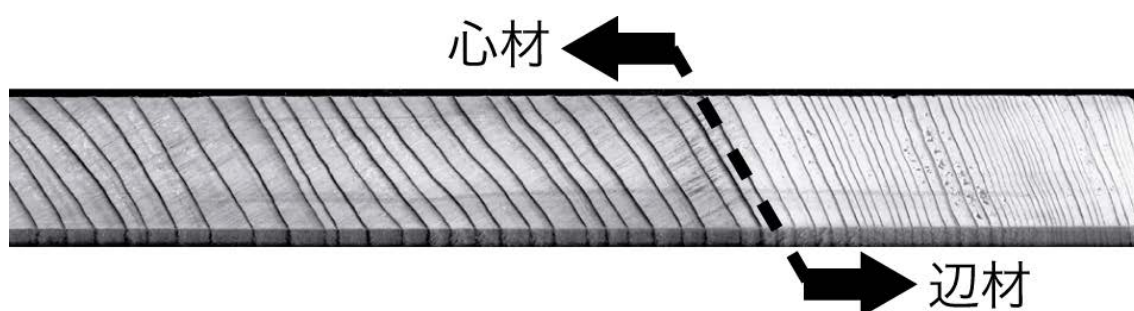


図1 樹齢200年級の秋田杉現生木の心材と辺材

4. 十和田カルデラ 10 世紀噴火の年代確定に向けて

現時点では、十和田カルデラ 10 世紀噴火が西暦 915 年に発生したことを否定する材料は見つかっていない。しかし、仮に 915 年ではないという証拠が見つかった場合、「扶桑略記」の 915 年の記述は、東北地方における別の大きな火山噴火を示唆することになる。自然災害(特に直接記録のない災害)の発生年代や被害規模を正確にとらえることは、自然災害への防災・減災計画を講じる上で極めて有益な情報となる。このことは、東日本大震災など、甚大な犠牲が生じた数々の災害を経験した我々にとって、論を待たない事実である。そのためにも、十和田カルデラ 10 世紀噴火の年代について、確証をもって議論していく必要がある。

十和田カルデラ 10 世紀噴火の年代を確定させるためには、白頭山 10 世紀噴火の年代確定に倣うのが、最も効率的かつ確実であると考え。すなわち、ラハールに埋没する樹皮付自然埋没木を可能な限り多く集めて、それらに ^{14}C spike-matching または酸素同位体比年輪年代法(できればどちらも)を適用し、その結果を元に、多くの個体が同時に死んだ年代を求め、それをラハールが発生した年代とみなすのである。どちらの手法も、従来の年輪年代法においてネックとなっていた「樹種」に縛られることなく、あらゆる木材に適用できるので(中塚(2015)、箱崎(2018))、広葉樹材も積極的に採集し、分析に用いるべきである。

ただし、ラハールから得た木材には、ラハール発生年以外の年代を示す木材が含まれることにも注意が必要である。ラハール発生以前に自然に枯死した個体や、人為的に伐採された個体も含まれる可能性がある。これらを見極めるには、木材の保存状態や倒れている方位など、その産状をよく観察し、得られた年代測定結果との十分な照らし合わせが必要である。そ

の他にも、ラハールに埋没する構造材は、大館市と北秋田市の米代川流域から見つかったが、その下流側に位置する二ツ井町(現・能代市)からは、埋没理由が不明で、最外年輪が西暦 958 年を示す、樹齢 750 年超のスギ埋没木が見つかった(奈良国立文化財研究所 1990)。この埋没木の発見地点は、胡桃館遺跡が発掘された鷹巣中学校から約 6 km しか離れていない。このように、近接する地域でも、ラハールの被害を受けず、生き延びた樹木の埋没木が得られることがあるため、試料採取にあたっては、堆積物との慎重な対比が求められる。

引用文献

- 赤石和幸・光谷拓実・板橋範芳. 2000. 十和田火山最新噴火に伴う泥流災害-埋没家屋の発見とその樹木年輪年代-. 地球惑星科学関連学会合同大会予稿集, CD-ROM, Qa-POO9.
- 福澤仁之・塚本すみ子・塚本 斉・池田まゆみ・岡村 真・松岡裕美. 1998. 年縞堆積物を用いた白頭山-苦小牧火山灰(B-Tm)の降灰年代の推定. 汽水域研究(Laguna), 5, 55-62.
- 箱崎真隆. 2018. 新年代法「酸素同位体比年輪年代法」. 考古学ジャーナル, 709, 13-17.
- Hakozaki et al. 2018. Verification of the annual dating of the 10th century Baitoushan Volcano eruption based on an AD 774–775 carbon-14 spike. Radiocarbon, 60, 261-268.
- 箱崎真隆ほか. 2017. 東北日本における酸素同位体比年輪年代法の現状と展望. 日本第四紀学会講演要旨集, 47, 91.
- 早川由紀夫・小山真人. 1998. 日本海をはさんで 10 世紀に相次いで起こった二つの大噴火の年月日-十和田湖と白頭山-. 火山, 43, 403-407.
- 上手真基・山田和芳・齋藤めぐみ・奥野充・安田喜憲. 2010. 男鹿半島, 二ノ目潟・三ノ目潟湖底堆積物の年縞構造と白頭山-苦小牧火山灰(B-Tm)の降灰年代. 地質学雑誌, 116, 349-359.
- 木村勝彦ほか. 2017. 酸素同位体比年輪年代法による白頭山 10 世紀噴火の年代測定. 日本第四紀学会講演要旨集, 47, 30.
- 北東北古代集落研究会. 2014. 9~11 世紀の土器編年構築と集落遺跡の特質からみた、北東北世界の実態的研究. 2011 年度~2013 年度明治大学大久保忠和考古学振興基金奨励研究研究成果報告書, 326p.
- 町田洋・新井房夫. 2003. 新編火山灰アトラス. 東京大学出版会, 336 p.
- Miyake et al. 2012. A signature of cosmic-ray increase in AD 774–775 from tree rings in Japan. Nature, 486, 240-2.
- 中塚武. 2015. 酸素同位体比年輪年代法がもたらす新しい考古学研究の可能性. 考古学研究, 62(2), 17-30.
- 奈良国立文化財研究所. 1990. 年輪に歴史を読む-日本における古年輪学の成立-. 奈良国立文化財研究所学報, 48, 195p.
- 大河内隆之. 2008. 年輪年代調査. 胡桃館遺跡埋没建物部材調査報告書, 北秋田市埋蔵文化財調査報告書第 10 集, 66-70.
- 小野映介・片岡香子・海津正倫・里口保文. 2012. 十和田火山 AD915 噴火後のラハールが及ぼした津軽平野中部の堆積環境への影響. 第四紀研究, 51, 317-330.
- 小野映介・小岩直人・高橋未央・藤根久. 2017. 米代川流域で発見された十和田火山 AD915 噴火後のラハール堆積物と埋没建物. 第四紀研究, 56, 169-173.
- Oppenheimer et al. 2017. Multi-proxy dating the ‘Millennium Eruption’ of Changbaishan to late 946 CE. Quaternary Science Reviews, 158, 164-171.

3.9 JAEA-AMS-TONO における自動グラファイト調製装置 AGE3 の現状

The present status of the AGE3 automated graphitization equipment for radiocarbon dating at the JAEA-AMS-TONO

渡邊隆広^{1*}・國分(齋藤)陽子¹・藤田奈津子¹・石坂千佳²・西尾智博^{1,2}・松原章浩²・

三宅正恭^{1,2}・加藤元久²・磯崎信宏²・虎沢 均²・西澤章光²・石丸恒存¹

Takahiro Watanabe^{1*}, Yoko Saito-Kokubu¹, Natsuko Fujita¹, Chika Ishizaka², Tomohiro Nishio^{1,2},
Akihiro Matsubara², Masayasu Miyake^{1,2}, Motohisa Kato², Nobuhiro Isozaki², Hitoshi Torazawa²,
Akimitsu Nishizawa², Tsuneari Ishimaru¹

¹国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター
(Tono Geoscience Center, Japan Atomic Energy Agency)

²株式会社ペスコ (Pesco co.ltd.)

**Correspondence to: Takahiro Watanabe; E-mail: watanabe.takahiro46@jaea.go.jp*

AMS is widely used for radiocarbon dating of geological samples. However, improvement in efficiency of sample preparation are needed for high-time resolution data. In 2016, an automated graphitization equipment 3 (AGE3, IonPlus AG) was installed in the JAEA-AMS-TONO, Tono Geoscience Center, JAEA. Background values and carbon recovery rates during the preparation process of the AGE3 should be estimated before application in radiocarbon dating. In this study, the AGE3 was evaluated using the international standard materials (IAEA-C1, C4, C5, C6, C7, C9 and NIST-SRM4990C) at the JAEA-AMS-TONO. Graphite samples were prepared by the AGE3 and radiocarbon concentration of these standards was measured by AMS. The results were agreement with the consensus values (within $\pm 2\sigma$ error). Background values were 0.15 ± 0.01 pMC (IAEA-C1). Therefore, we concluded that the AGE3 can be applied for radiocarbon dating of geological samples.

Keywords: ^{14}C ; AGE3; Graphitization; Elemental Analyzer; Preparation system;

1. はじめに

放射性廃棄物の地層処分の評価においては、過去の地質や地形の変化を捉え、将来の地質環境を予測することが重要となる。その調査方法のひとつとして、加速器質量分析法(AMS)を用いた地質試料の放射性炭素年代測定が幅広く応用展開されている(Iwatsuki et al., 2002)。しかし、多量のデータが必要となるケースもあり、試料を効率良く処理する手法が求められている。特に、様々な特徴を示す地質試料の前処理過程は複雑であり熟練した技術が必要となっている。これまでに元素分析計を利用して、前処理の一部である試料の燃焼やガス分離作業を簡略化する手法について報告されている(Yoneda et al., 2004)。日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター 土岐地球年代学研究所では放射性炭素年代測定の前処理の効率化を進めるため、自動グラファイト調製装置(IonPlus 社製 AGE3: Automated Graphitization Equipment 3)を 2016 年度に導入した。本装置は 2010 年以降、第一世代(AGE1)をベースに Wacker et al. (2010; 2013)、Nemec et al. (2010)や Solis

et al. (2015)により改良や性能評価が進められ、現在は第3世代の AGE3 が開発されている。AGE3 は元素分析計と接続し、試料の燃焼から二酸化炭素ガスの分離、グラファイト調製までを完全自動で行うことが可能である。しかし、得られる年代値を適切に評価するためには、試料調製時における、炭素汚染、炭素回収率、メモリー効果の影響について経時的な変動を把握することが重要となる。本稿では、土岐地球年代学研究所に設置された AGE3 を用いて得られた国際標準物質の測定結果を報告する。

2. 試料と分析方法

本研究では、標準物質である IAEA-C1、C4、C5、C6、C7、C9 及び NIST-SRM-4990C (NISToxII) を用いて、AGE3 の適用性を評価した。IAEA-C1 は大理石 (炭酸塩) 試料、IAEA-C4、C5、C9 は埋没した天然の樹木試料、IAEA-C6 はスクロース、IAEA-C7 と NIST-SRM-4990C はシュウ酸である。IAEA-C4 及び IAEA-C9 は放射性炭素濃度が低いことから (合意値; consensus values、それぞれ 0.22-0.44 pMC、0.12-0.21 pMC、95%信頼区間、Rozanski、et al., 1992)、AGE3 のバックグラウンド評価に使用した。元素分析計 (EA) は Elementar 社製の Vario MICRO cube を用い、キャリアガスは高純度ヘリウム (99.9999%、流量約 200 mL/min) を使用した (図 1)。標準試料を錫箔 (4×4×12 mm、Elemental micro analysis 社製) に包み、オートサンプラーにより EA 内部の石英製燃焼管 (920℃) に導入した。EA で使用する試薬類については IonPlus AG の推奨する条件に従った。燃焼管内の酸化剤として酸化銅 (元素分析用、Elementar 社製) を使用した。還元剤として還元銅を使用した (元素分析用、Elementar 社製、還元炉温度 550℃)。また、硫黄やハロゲン除去のため、シルバーウールを使用した。

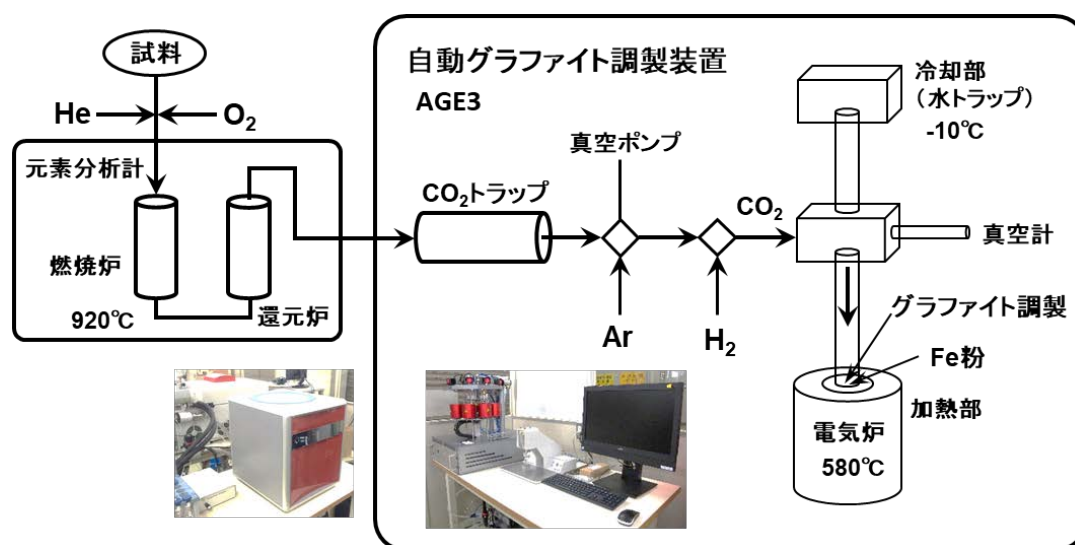


図1 東濃地科学センター土岐地球年代学研究所に設置した AGE3 の概要

東濃地科学センターに設置した AGE3 の概要を図 1 に示す。EA 内で試料燃焼と CO₂精製後、CO₂ガスを AGE3 内のゼオライト製 CO₂トラップに導入した。温度上昇 (最大 420℃) により CO₂ガスをトラップから分離し、水素添加後、Fe 粉を触媒とし 580℃で 2 時間加熱することによりグラファイトを調製した。ペルチェ素子による冷却部の温度は約 -10℃である。グラファイト調製は IonPlus 社の推奨条件に従い炭素量約 1 mg に対して鉄粉 5 mg の条件で実施した。メモリー効果等による汚染の影響を防ぐため、1 試料処理後に EA で毎回 3 個のブランク試料の燃焼を実施した。得られたグラファイト

を回収しアルミニウム製カソードに充填した。放射性炭素濃度測定には東濃地科学センター土岐地球年代学研究所設置の JAEA-AMS-TONO (15SDH-2 ペレトロン加速器、National Electron Corp. 製) を使用した。

3. 結果と考察

JAEA-AMS-TONO で得られた実測値と報告されている合意値とを比較し、AGE3 の有効性を評価した (図 2)。測定結果は IAEA-C5 で 23.38 ± 0.13 pMC ($n=6$)、IAEA-C6 で 152.4 ± 1.5 pMC ($n=6$)、IAEA-C7 で 49.35 ± 0.22 pMC ($n=3$)、NIST-SRM-4990C で 132.65 ± 0.74 pMC ($n=6$) であり、各標準試料の放射性炭素濃度の合意値 (Stuiver, 1983; Rozanski et al., 1992) と $\pm 2\sigma$ 程度の範囲で一致した。従来法であるガラス製真空ラインを使用した手法による ^{14}C 測定の不確かさを考慮すると、 $\pm 1\sigma$ 程度で一致することが理想的ではあるが、今回報告した結果について測定数は 3 回または 6 回と未だ少なく、今後継続して測定しさらに評価を進める必要がある。研究の目的にもよるが、 $\pm 2\sigma$ の不確かさを許容できるのであれば、現状においても東濃地科学センター設置の AGE3 は地質試料等の年代測定に適用可能であると考えられる。また、バックグラウンド評価として実施した IAEA-C4 (木片) の測定結果は 0.19 ± 0.04 pMC ($n=3$)、IAEA-C9 (木片) は 0.33 ± 0.02 pMC ($n=3$) であり、地質試料の年代測定において十分に適用可能であると考えられる。従来法でバックグラウンド評価に使用されている IAEA-C1 (炭酸塩) の測定結果は 0.15 ± 0.01 pMC であり、IAEA-C4 及び C9 の結果と比較し同程度であった。しかし、実際の炭酸塩試料へ AGE3 を適応させるためには、元素分析計による炭酸塩試料の燃焼効率や混在する有機物の影響について検討が必要である (Wacker et al., 2013)。

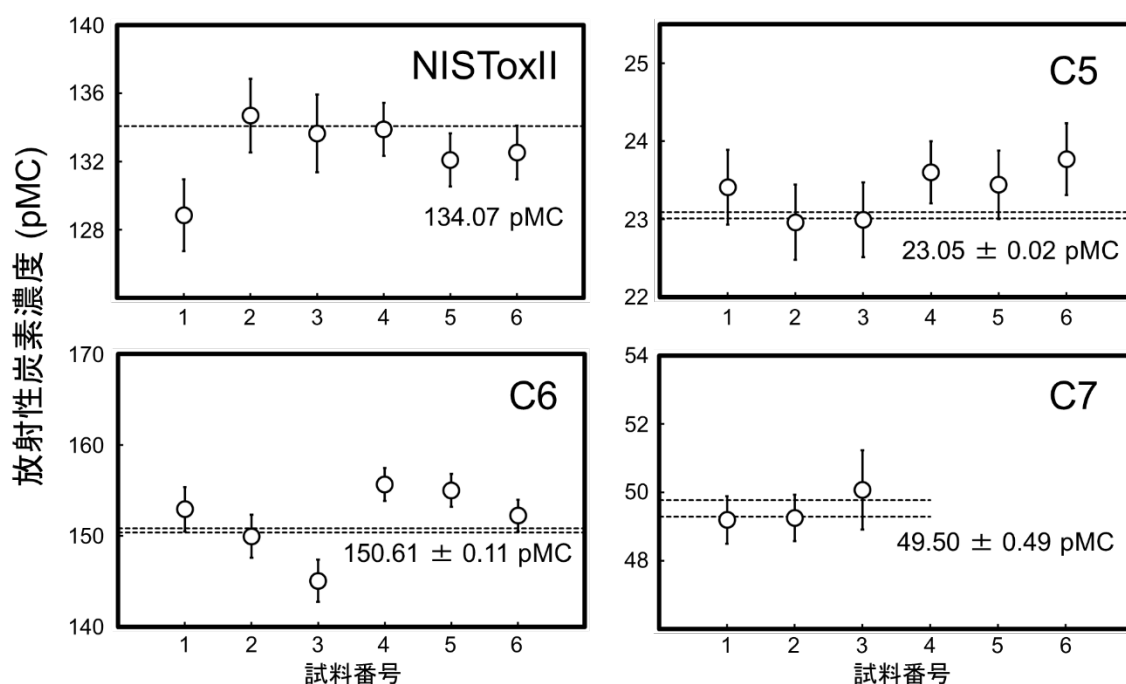


図 2 AGE3 で調整したグラファイトを用いた放射性炭素濃度測定結果
同一グラファイトの繰り返し測定ではなく、AGE3 により 3 個または 6 個の試料について、それぞれグラファイト調製を実施した。エラーバーは $\pm 1\sigma$ の範囲を示す。図中の点線および数値は合意値を示す (Stuiver, 1983; Rozanski et al., 1992)。

EA 及び AGE3 使用時のメモリー効果については、試料測定間に十分なブランク測定(錫箔のみ燃焼を 3 回程度)を実施していることもあり、現状では明瞭に認められなかった。しかし、同一の燃焼管で多試料のグラファイト調製を継続して行う際には、メモリー効果や燃焼用試薬の劣化状況に十分に注意する必要がある(丸岡, 2008)。完全自動化の装置ではあるが、バックグラウンドの評価や測定精度の向上・維持のためには、データの継時変化等を正確に把握できる環境を整備することが重要と考えられる。また、燃焼効率の問題もあるが渡邊他(2016)で示したように錫箔ではなく加熱処理した銀箔の使用も有効であると期待される。少量試料への適用も検討されており(Solis et al., 2015)、当センターにおいても AGE3 を用いて炭素量 0.1 mg 程度での年代測定を進めていく予定である。少量試料の場合、水素との混合比や鉄触媒の影響についても評価が必要である(Nemec et al., 2010)。従って、今後は鉄粉の量および品質についても検討を進めていくことが重要である。

4. まとめ

JAEA-AMS-TONO に自動グラファイト調製装置 AGE3 を導入した。AGE3 により調製したグラファイト試料を用いて放射性炭素測定の適用性を評価した。本研究では、下記の結果が得られた。

- 1) IAEA-C5、C6、C7、NIST-SRM4990C の測定結果は各標準試料の放射性炭素濃度の合意値(Rozanski et al., 1992)とおおよそ $\pm 2\sigma$ の範囲で一致した。
- 2) IAEA-C1 の測定結果は 0.15 ± 0.01 pMC、C4 は 0.19 ± 0.04 pMC ($n=3$)、C9 は 0.33 ± 0.02 pMC ($n=3$)であり、地質試料の年代測定において十分に適用可能であると考えられる。

参考文献

- Iwatsuki, T., Satake, H., Metcalfe, R., Yoshida, H. and Hama, K., Isotopic and morphological features of fracture calcite from granitic rocks of the Tono area, Japan: a promising palaeohydrogeological tool. *Appl. Geochem.* 17, 1241-1257, 2002.
- 丸岡照幸, 地球化学 42, 201-216, 2008.
- Nemec, M., Wacker, L., Gaggeler, H., Optimization of the graphitization process at AGE-1. *Radiocarbon* 52, 1380-1393, 2010.
- Rozanski, K., Stichler, W., Gonfiantini, R., Scott, E.M., Beukens, R.P., Kromer, B. and van der Plicht, J., The IAEA ^{14}C intercomparison exercise 1990. *Radiocarbon* 34, 506-519, 1992.
- Solis, C., Chavez, E., Ortiz, M.E., Andrade, E., Ortiz, E., Szidat, S., Wacker, L., AMS-C14 analysis of graphite obtained with an Automated Graphitization Equipment (AGE III) from aerosol collected on quartz filters. *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 361, 419-422, 2015.
- Stuiver, M., International agreements and the use of the new oxalic acid standard. *Radiocarbon* 25, 793-795, 1983.
- Wacker, L., Nemec, M., Bourquin, J., A revolutionary graphitisation system: Fully automated, compact and simple. *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 268, 931-934, 2010.
- Wacker, L., Fulop, R.-H., Hajdas, I., Molnar, M., Rethemeyer, J., A novel approach to process carbonate samples for radiocarbon measurements with helium carrier gas. *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 294, 214-217, 2013.
- 渡邊隆広他, 第 18 回 AMS シンポジウム報告集, 114-117, 2016.
- Yoneda, M., Shibata, Y., Tanaka, A., Uehiro, T., Morita, M., Uchida, M., Kobayashi, T., Kobayashi, C., Suzuki, R., Miyamoto, K., Hancock, B., Dibden, C. and Edmonds, J.S., AMS ^{14}C measurement and preparative techniques at NIES-TERRA. *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 223-224, 116-123, 2004.

3.10 南極海オーストラリア/アフリカー南極海盆における放射性炭素とフロンガスの過去約 20 年間の変化

Temporal change in radiocarbon and chlorofluorocarbons in the Australian/African-Antarctic Basins in the Southern Ocean during the past two decades

熊本雄一郎^{1*}・佐々木建一¹・村田昌彦¹
Yuichiro Kumamoto^{1*}, Ken'ichi Sasaki¹, Akihiko Murata¹

¹海洋研究開発機構 (Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology)

*Correspondence to: Y. Kumamoto; E-mail: kumamoto@jamstec.go.jp

We measured concentrations of radiocarbon (^{14}C) and chlorofluorocarbons in seawater collected from surface to near bottom layers at stations in the Australian/African-Antarctic Basins in the Southern Ocean between December 2012 and February 2013. Bomb-produced ^{14}C was derived from the nuclear weapons testing mainly in the 1950s and 1960s and transferred into the ocean surface. Similarly, chlorofluorocarbons have been released into the atmosphere since the 1960s and dissolved into the ocean surface. During the last two decades, chlorofluorocarbons increased in the Antarctic Bottom Water (AABW), which suggests that formation and subduction of AABW conveyed them to the bottom layer. On the other hand, there was no significant increase in radiocarbon in AABW, which suggests (1) the bomb-produced ^{14}C has not been accumulated into AABW despite the formation of AABW and (2) transfer of the bomb-produced ^{14}C from surface mixed layer to subsurface layer has been restricted during the last two decades.

Keywords: radiocarbon; chlorofluorocarbons; the Antarctic Ocean

1. はじめに

南極大陸に隣接する南極海表層で形成される低温・高密度の海水（南極底層水、Antarctic Bottom Water: AABW）は、南極大陸斜面に沿って沈み込み海洋底に到達する。その南極底層水は海底地形に沿って三大洋を北上し、全球規模の海洋大循環の一部となる。その海洋大循環は過去の気候変動に大きな影響を与えてきたと考えられており、AABW 形成量の定量化は気候変動に関する研究分野において最も重要な課題の一つとなっている（Orsi et al., 2002）。AABW の沈み込みに伴って海洋表面水中の溶存物質は海洋底深層に輸送される。したがって、人為的に大気に放出された後大気・海洋間気体交換によって海洋表面水に移行したフロンガスは、その形成量を推定するための最も有力な化学トレーサである。一方、1960 年代を中心に大気圏で実施された核実験によって放出された放射性炭素（炭素 14）も、フロンガスと同じく気体交換によって海洋に蓄積されつつあるため、AABW 形成を追跡するための有用な化学トレーサとなる。我々は、2012 年 12 月から 2013 年 2 月に南極海インド洋セクションのオーストラリアー南極海盆およびアフリカー南極海盆において、フロンガス及び炭素 14 の海洋表面から海底直上までの鉛直分布を観測し、それらを 1995 年及び 1996 年に同海域で観測された結果と比較することで、過去約 20 年間のそれらの変動を明らかにした。

2. 方法

海水試料は、2012 年 12 月から 2013 年 2 月に実施された「みらい」MR12-05 航海において採取された。同航海では、南極海インド洋セクションの南緯 63～65 度に沿って東経 170 度から 65 度までの範囲で海洋観測を実施した。なお、南極海インド洋セクションは、東経 70～80 度のケルゲレン海台及びガウスベルグ海嶺によって、東側のオーストラリアー南極海盆と西側のアフリカー南極海盆に 2 分される（図 1）。各観測点では、水温と塩分の鉛直分布を連続的に観測することに合わせて、海面から海底付近までの最大 36 層で海水試料を採取した。フロンガス（CFC-11、CFC-12、CFC-113）濃度は船上において、海水約 500ml から抽出後 ECD 付ガスクロマトグラフィーで測定された（Sasaki et al., 2015）。炭素 14 は、海水試料約 250ml を陸上ラボに持ち帰り、海水試料中の二酸化炭素の抽出・精製とグラファイト化を行い、日本原子力研究開発機構のタンデトロン加速器質量分析計を用いて測定された（Kumamoto et al., 2013）。炭素 14 の測定結果は、試料と標準物質の $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比の千分率、すなわち $\Delta^{14}\text{C}$ で表される。 $\Delta^{14}\text{C}$ の算出に必要とされる炭素安定同位体比 $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比は、安定同位体質量分析計 Finnigan MAT-253 を用いて測定された。フロンガス濃度と $\Delta^{14}\text{C}$ の誤差は、それぞれ約 0.01 pmol/kg と 6 ‰であった。

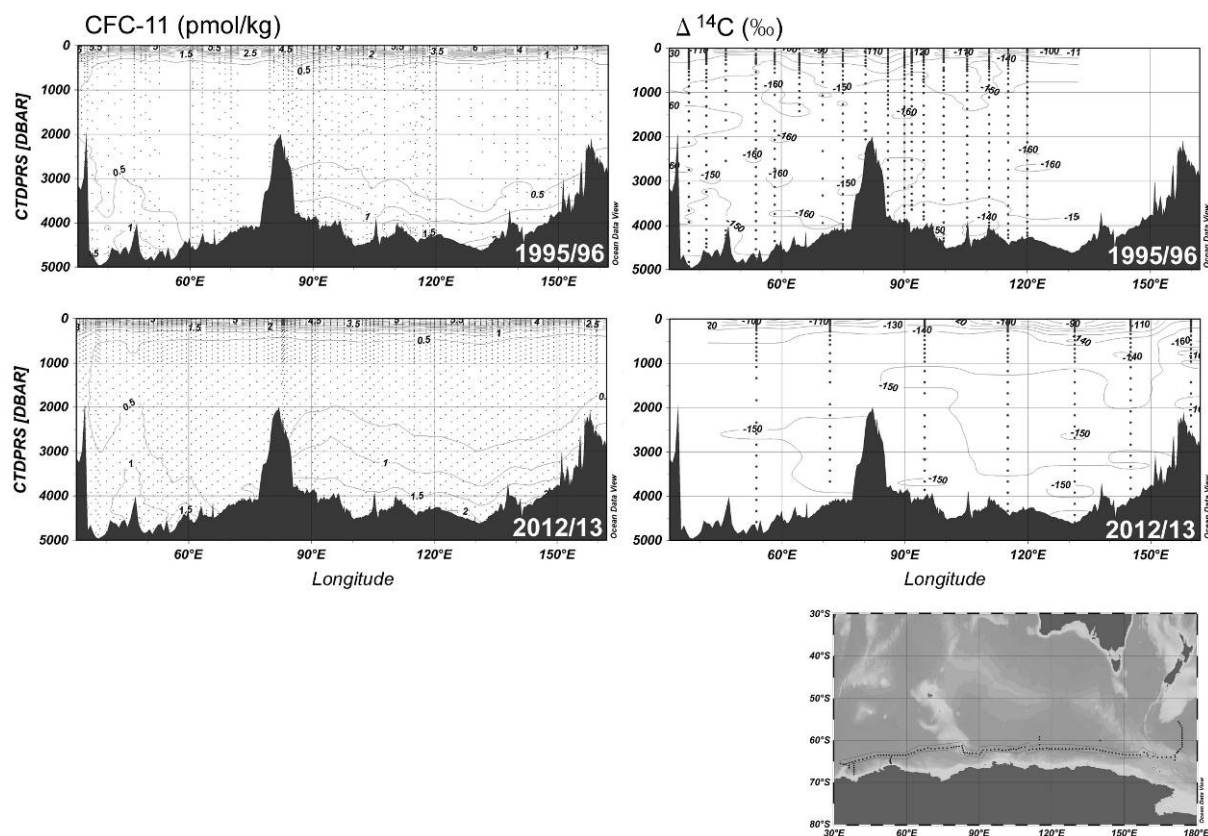


図 1 2012 年 12 月から 2013 年 2 月に観測された、南極海インド洋セクション南緯 63～65 度に沿った観測線上（下段）における CFC-11 (pmol/kg) 及び $\Delta^{14}\text{C}$ (‰) の鉛直断面分布図（中段）。比較のために、1995 年及び 1996 年にほぼ同じ海域で観測された CFC-11 及び $\Delta^{14}\text{C}$ の鉛直断面分布図（上段）も示した。

3. 結果と考察

図 1 に観測線上における CFC-11 (pmol/kg) 及び $\Delta^{14}\text{C}$ (‰) の鉛直断面分布図を示す。炭素 14 ($\Delta^{14}\text{C}$) は、表面混合層で高く (−140〜−80 ‰)、それ以深では 3000m より深い底層水でやや高く (−150〜−140 ‰) なる傾向が見られたが、おおむね鉛直的にほぼ均一な分布 (−160〜−140 ‰) となっていた。一方、フロンガスの 1 種である CFC-11 は、表面混合層 (〜6 pmol/kg) だけでなく、深度 3000m 以深の底層水でも有意に高い濃度 (〜3 pmol/kg) が観測された。2012/2013 年に得られたこれらの鉛直分布を、1995/1996 年にほぼ同じ海域で観測された結果 (Key et al., 2015; Olsen et al., 2016) と比較した。その結果、CFC-11 は表面混合層では濃度が減少し (〜数 pmol/kg)、特に東側のオーストラリアー南極海盆において 3000m 以深の底層水中濃度が増加 (〜1 pmol/kg) したことが分かった。これらの時間変化は、過去約 20 年間に新たな南極底層水が形成されたことによって、表面水中 CFC-11 が底層水に運ばれたことを示唆している。一方、過去約 20 年の間に $\Delta^{14}\text{C}$ の鉛直分布には大きな変化が見られなかった。このことは、(1) 新たな底層水形成によって核実験起源炭素 14 が南大洋底層に蓄積されていないこと、(2) 表面混合層からその下層の亜表層への核実験起源炭素 14 の輸送も限定的であったことを示唆している。

謝辞

「みらい」MR12-05 航海において、海水試料の採取にご協力いただいた方々にお礼申し上げます。本研究成果の一部は、日本原子力研究開発機構の施設供用制度によって得られたものである (課題番号 2015A-F04、2016A-F02)。

引用文献

Key, R.M., A. Olsen, S. van Heuven, S. K. Lauvset, A. Velo, X. Lin, C. Schirnick, A. Kozyr, T. Tanhua, M. Hoppema, S. Jutterström, R. Steinfeldt, E. Jeansson, M. Ishi, F. F. Perez, T. Suzuki, Global Ocean Data Analysis Project, Version 2 (GLODAPv2), ORNL/CDIAC-162, ND-P093, Carbon Dioxide Information Analysis Center, Oak Ridge National Laboratory, US Department of Energy, Oak Ridge, Tennessee,(2015).

Kumamoto, Y., A. Murata, T. Kawano, S. Watanabe, M. Fukasawa, Decadal changes in bomb-produced radiocarbon in the Pacific Ocean from the 1990s to 2000s, Radiocarbon, 55, 1641-1650 (2013).

Olsen, A., R. M. Key, S. van Heuven, S. K. Lauvset, A. Velo, X. Lin, C. Schirnick, A. Kozyr, T. Tanhua, M. Hoppema, S. Jutterström, R. Steinfeldt, E. Jeansson, M. Ishii, F. F. Pérez, T. Suzuki. The Global Ocean Data Analysis Project version 2 (GLODAPv2) – an internally consistent data product for the world ocean, Earth Syst. Sci. Data, 8, 297-323,(2016).

Orsi, A. H., W. M. Smethie Jr, J. L. Bullister, On the total input of Antarctic waters to the deep ocean: A preliminary estimate from chlorofluorocarbon measurements, Journal of Geophysical Research, 107, 3122, (2002).

Sasaki, K., H. Sato, H. Yamamoto, K. Sagishima, S. Tatamisashi, M. Ohroi, 3.6 Chlorofluorocarbons and Sulfur Hexafluoride, In WHP P14S, S04I Revisit in 2012 Data Book, 187pp, JAMSTEC (2015), http://www.jamstec.go.jp/iorgc/ocorp/data/s04irev_2012/book/index.html (参照: 2015 年 4 月 21 日).

3.11 チベット高原・プマユムツォ湖周辺岩石の ^{10}Be 測定結果 Preliminary results of ^{10}Be of the rock samples from the lake terrace of the Lake Pumayum Co in Tibetan Plateau

奈良郁子^{1*}・渡邊隆広²・國分(齋藤)陽子²・堀内一穂³

Fumiko Watanabe Nara^{1*}, Takahiro Watanabe², Yoko Saito-Kokubu², Kazuho Horiuchi³

¹名古屋大学宇宙地球環境研究所 (ISEE, Nagoya University)

²日本原子力研究開発機構東濃地科学センター (Tono Geoscience center, JAEA)

³弘前大学理工学部 (Graduate School of Science and Technology, Hirosaki University)

*Correspondence to: Fumiko Watanabe Nara; E-mail: narafumi@isee.nagoya-u.ac.jp

Abstract

Here we report the preliminary results of ^{10}Be values from the Tibetan Plateau (TP) which were measured using Accelerator Mass Spectrometry (AMS). TP is the highest plateau in the world, with an average altitude of about 4500 m. Such high altitude plateau would enhance the moisture circulation on the earth, such as the monsoon activities, and may provide the significant precipitation to South and East Asia. Lake Pumayum Co is located in the south TP and has the lake terraces on the eastern lake shore. These geomorphological features show that the dynamic hydrological changes have happened at this region. In this study, we measured the in-situ cosmogenic radionuclide (in-situ CNR) to estimate the earth surface processes, such as the erosion rate and exposure age dating of rocks. The ^{10}Be concentrations ranged from $3.78\text{--}10.8 \times 10^6$ (atoms/g), but the ^{10}Be values showed the decreasing trend following to the distance from the lake shore. This result indicates that ^{10}Be values of the rocks at the shore of the Lake Pumayum Co could be influenced from the erosion rate rather than the exposure date.

1.はじめに

チベット高原は、世界最大の面積(約 $2,500,000 \text{ km}^2$)かつ世界で最も高地(平均標高約 $4,500 \text{ m}$)に位置する台地である(Fig. 1)。チベット高原はその広大な面積から、世界の高度 $4,000 \text{ m}$ 以上の地域の 82% を占め、地形学的な特徴から、地球規模の気候変動及び物質循環に対して重要な役割を果たしている。例えば、ヒマラヤ-チベット高原の段階的な隆起が、アジアモンスーンの発達に強い影響を与えたと報告されている(Zhisheng et al., 2001)。また、チベット高原には、アジアにおける主要河川(黄河、インダス川、長江など)の源流河川が存在していることから、この地域における岩石の浸食作用の変化が地球規模の物質循環変動を引き起こす可能性が考えられる。特にチベット地域におけるケイ酸塩の風化作用は、大気二酸化炭素の循環に影響を与えることが予測されている(Lal et al., 2004)。

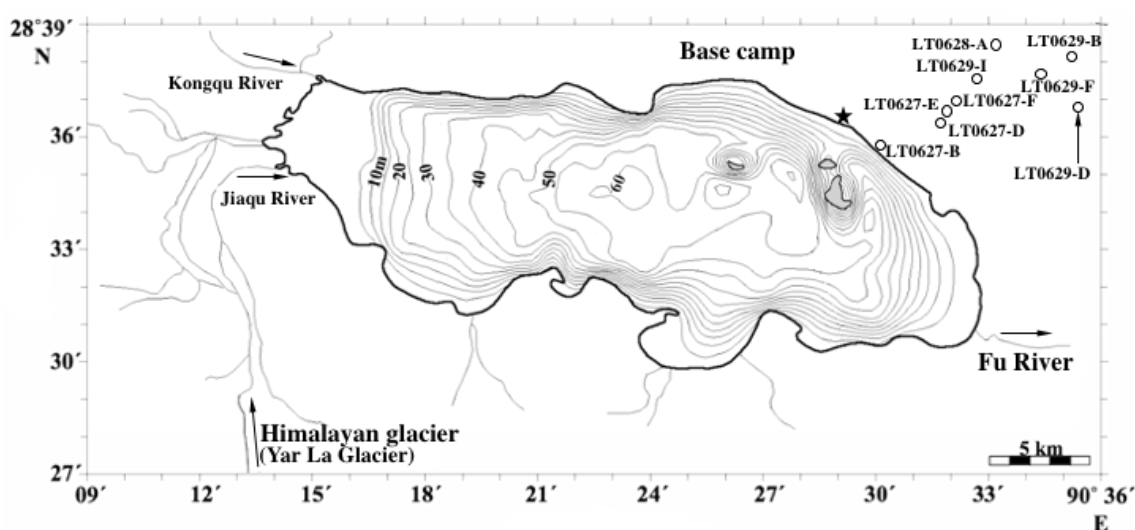


Fig. 1. Map showing the Lake PumayumuCo and the sampling sites

チベット南東部(28°34'N, 90°23'E)に位置するプマユムツォ湖(表面積 281 km²、最大水深約 65 m)は、海拔高度 5,030 m に位置し、世界で最も高所に存在する湖の一つである。現在チベット高原南東部はモンスーン活動の影響下にあり、この地域における降水量変動は特にインドモンスーン活動からの強い影響を受ける。よって、この地域の過去の降水量変動を復元することは、過去のインドモンスーン活動の消長を復元することに繋がる。インド及び東アジア夏季モンスーンの活動は、日本及び東南アジア地域に降水として大量の水を運搬するため、モンスーン活動の理解は、豪雨や洪水といった自然災害を考える上でも非常に重要である。プマユムツォ湖の東側に湖岸段丘が二段形成されており、過去にダイナミックな湖水深変動が起きていたと考えられている(Fig. 2, 高田及び朱, 2003)。

地震、あるいは海水面変動などのイベントによって表面に露出された断層崖や岩石を試料とし、岩石試料中に直接“その場”(in situ)で生成する宇宙線生成核種 (cosmogenic radionuclides, in-situ CRNs) である ¹⁰Be や ²⁶Al の測定から、岩石の露出年代や浸食速度を特定する研究が進められている (Putnam et al., 2013; Ritz et al., 1995; Yamane et al., 2015)。これらの in-situ CRNs は、造岩鉱物の結晶格子中に蓄積し、その結晶構造が風化等の作用によって破壊されない限り、岩石内部に保持され続ける。岩石に含まれる石英(SiO₂)に含まれる酸素とケイ素をターゲットとし、¹⁰Be や ²⁶Al が生成する。石英は化学組成及び結晶構造が単純、かつターゲット元素を多く含む為、岩石中での ¹⁰Be 及び ²⁶Al の生成が効率よく進む。そのため、in-situ CRNs を用いた地球科学の研究分野でよく用いられている。本研究では、チベット高原南東部に位置するプマユムツォ湖 (Fig. 1) の湖岸周辺で採取した岩石試料中の in-situ CRN(¹⁰Be)を、加速器質量分析計を用いて測定し、それらの結果から、湖水面の変動及び当該地域における浸食速度の見積もりを試みた。



Fig. 2. Lake terrace at the shore of Lake PumayumuCo.

2. 試料と方法

2009 年 8 月に、プマユマツォ湖東側の湖岸段丘上面から、採取された岩石試料を ^{10}B 分析に供与した (Fig. 1)。岩石試料からの Be の単離、精製は、松四 (2017) に従った。本研究では、日本原子力研究機構東濃地科学センターが所有するペレトロン年代測定装置を用いて、 ^{10}Be 測定を行った。加速器測定は 1 試料に対し 4~9 回の測定を行った。標準試料には Nishiizumi et al. (2007) に従い、 $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ の値が $2.709 \pm 0.030 \times 10^{-12}$ である ICN 01-5-1 を使用した。採取地点の標高による生成率の変化を補正するため、 ^{10}Be 測定結果より CRONUS-Earth on line calculators (Balco et al., 2008) を用いて、 ^{10}Be の露出年代値及び浸食速度の計算を行った。

3. 結果と考察

チベット・プマユマツォ湖湖岸岩石中の ^{10}Be 濃度は、 $3.78\text{--}10.8 \times 10^6$ (atoms/g) の範囲を示した。本研究から得られた ^{10}Be 濃度の結果は、湖から離れるに従って減少する傾向を示した。岩石中の ^{10}Be 濃度が、段丘を形成したとされる湖水面低下に影響されているならば、 ^{10}Be 濃度は湖にはなれるに従い増加するはずである。よってこの結果は、プマユマツォ湖湖岸段丘にて採取された岩石中の ^{10}Be 濃度は、岩石の露出年代よりも浸食速度に影響されている可能性が高いことを示している。Balco et al. (2008) より算出した浸食速度は $5.2\text{--}7.6$ mm/kyr を示し、既報のチベット南部地域における浸食速度 (13.4 mm/ka, Lal et al., 2003) よりもさらに、非常に遅い浸食速度を示し、チベット南部地域における浸食作用が非常に小さいことが考えられる。

謝辞

本研究を進めるにあたって、日本原子力研究開発機構東濃地科学センターにおける ^{10}Be 測定に関して、センター職員である石坂千佳氏をはじめセンタースタッフにご協力を賜った。本研究では 2009 年にチベット・プマユマツォ湖日中共同学術研究の一環として行われた。チベットにおける試料採取では、中国科学アカデミーの Junbo Wang 博士、Liping Zhu 博士に多大なご協力をいただいた。ここに記して深く感謝いたします。本研究の一部は、公益財団法人日本生命財団 (研究代表者: 奈良郁子、助成番号: 19) の支援により行われた。

References

- Balco, G., Stone, J.O., Lifton, N.A., Dunai, T.J., 2008. A complete and easily accessible means of calculating surface exposure ages or erosion rates from Be-10 and Al-26 measurements. *Quat. Geochronol.* 3, 174-195.
- Lal, D., Harris, N.B.W., Sharma, K.K., Gu, Z., Ding, L., Liu, T., Dong, W., Caffee, M.W., Jull, A.J.T., 2004. Erosion history of the Tibetan Plateau since the last interglacial: constraints from the first studies of cosmogenic ^{10}Be from Tibetan bedrock. *Earth Planet. Sc. Lett.* 217, 33-42.
- Putnam, A.E., Schaefer, J.M., Denton, G.H., Barrell, D.J.A., Birkel, S.D., Andersen, B.G., Kaplan, M.R., Finkel, R.C., Schwartz, R., Doughty, A.M., 2013. The Last Glacial Maximum at 44°S documented by a

- ^{10}Be moraine chronology at Lake Ohau, Southern Alps of New Zealand. *Quaternary Sci. Rev.* 62, 114-141.
- Ritz, J.F., Brown, E.T., Bourles, D.L., Philip, H., Schlupp, A., Raisbeck, G.M., Yiou, F., Enkhtuvshin, B., 1995. Slip Rates Along Active Faults Estimated with Cosmic-Ray-Exposure Dates - Application to the Bogd Fault, Gobi-Altai, Mongolia. *Geology* 23, 1019-1022.
- Yamane, M., Yokoyama, Y., Abe-Ouchi, A., Obrochta, S., Saito, F., Moriwaki, K., Matsuzaki, H., 2015. Exposure age and ice-sheet model constraints on Pliocene East Antarctic ice sheet dynamics. *Nat Commun* 6, 7016.
- Zhisheng, A., Kutzbach, J.E., Prell, W.L., Porter, S.C., 2001. Evolution of Asian monsoons and phased uplift of the Himalaya-Tibetan plateau since Late Miocene times. *Nature* 411, 62-66.
- 高田将志, 朱立平, 2003. チベット高原プマユムツォ湖周辺における地形と第四紀後期の環境変化. 科学研究費補助金研究成果報告書.
- 松四雄騎, 2017. 宇宙線生成核種を用いた岩盤の風化と土層の生成に関する速度論—手法の原理, 適用法, 研究の現状と課題—. *地学雑誌* 126, 487-511.

第20回 AMS シンポジウム

日時： 2017年12月14日（木）～12月15日（金）

場所： セラトピア土岐（岐阜県土岐市土岐津町高山4）

＊特別講演 4件 [大会議室]

＊一般講演 19件 [大会議室]

＊ポスター発表 9件 [第1、2会議室 12月14日（木）13：00～14：00]

プログラム

第1日目： 12月14日（木）（9：45開場）

9：45～ 受付

10：20～10：30 主催者 開会挨拶
杉原 弘造
（日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター 所長）

セッション1－AMS 施設報告・技術開発1

（講演12分・質疑応答3分） 座長：南 雅代（名古屋大学）

- 10：30～10：45 1-1 東大 MALT-AMS の現状 2017
○松崎浩之¹、徳山裕憲¹、土屋陽子¹、楠野葉瑠香¹、
山道美和子¹、吉田邦夫¹
1 東京大学 MALT
- 10：45～11：00 1-2 名古屋大学タンデントロン AMS システムの現状（2017年度）
○中村俊夫¹、南 雅代¹、増田公明¹、小田寛貴¹、池田晃子¹、
栗田直幸¹、窪田 薫¹、西田真砂美¹、椋本ひかり²、藤沢純平²、
方 雨婷²、徳丸 誠²、酢屋徳啓³、北川浩之¹
1 名古屋大学 宇宙地球環境研究所、
2 名古屋大学大学院 環境学研究科、3 放射線医学総合研究所
- 11：00～11：15 1-3 筑波大学 6MV タンデム加速器質量分析装置による多核種 AMS
と応用研究の現状
○笹 公和¹、高橋 努¹、松中哲也^{1,2}、細谷青児¹、太田祐貴¹、
高野健太¹、落合悠太¹、本多真紀¹、末木啓介¹
1 筑波大学 AMS グループ、2 金沢大学 LLRL
- 11：15～11：30 1-4 パレオ・ラボ Compact-AMS の現状(2017)
○佐藤正教¹、伊藤 茂¹、廣田正史¹、山形秀樹²、Z.Lomtatishze²、
小林紘一¹、中村賢太郎²
1 (株)パレオ・ラボ AMS 年代測定施設、
2 (株)パレオ・ラボ 東海支店

11 : 30～13 : 00 昼食（運営委員会）

13 : 00～14 : 00 ポスターセッション・コアタイム（第1、2会議室）

セッション2—AMS 施設報告・技術開発2

（講演 12 分・質疑応答 3 分）

座長：鈴木 崇史（日本原子力研究開発機構）

14 : 00～14 : 15 2-1 6MV タンデム加速器による ^{90}Sr -AMS

○細谷青児¹、笹 公和¹、高橋 努¹、本多真紀¹、佐藤志彦²、
高野健太¹、落合悠太¹、末木啓介¹

1 筑波大学 AMS グループ、2 日本原子力研究開発機構

14 : 15～14 : 30 2-2 JAEA-AMS-TONO における $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比測定 of 整備

○岡部宣章¹、藤田奈津子¹、松原章浩²、三宅正恭¹、
西尾智博²、西澤章光²、磯崎信宏²、渡邊隆広¹、
國分(齋藤)陽子¹

1 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター、
2 株式会社 ペスコ

14 : 30～14 : 45 2-3 微量試料の高精度放射性炭素年代測定

○大森貴之¹、山崎孔平¹、梶澤貴行¹、板橋 悠²、尾寄大真¹、
米田 穰¹

1 東京大学 総合研究博物館、2 東京大学新領域創成科学研究科

14 : 45～15 : 00 2-4 海水中の溶存有機態放射性炭素分析システムの改良

全 現徳^{1,3}、○乙坂重嘉¹、渡邊隆広²、阿瀬貴博³、宮入陽介³、
横山祐典³、小川浩史³

1 日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究センター、
2 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター、
3 東京大学 大気海洋研究所

15 : 00～15 : 15 休憩

セッション3—AMS 応用研究1

（講演 12 分・質疑応答 3 分）

座長：大森 貴之（東京大学）

15 : 15～15 : 30 3-1 過去 3000 年間の宇宙線強度年変動

○三宅美沙¹、増田公明¹、中村俊夫¹、箱崎真隆²、木村勝彦³、
門叶冬樹⁴、森谷 透⁴、武山美麗⁴、A.J.T Jull⁵、I.P Panyushkina⁶

1 名古屋大学 宇宙地球環境研究所、2 国立歴史民俗博物館、
3 福島大学 共生システム理工学類、
4 山形大学 高感度加速器質量分析センター、
5 アリゾナ大学 AMS 研究所、6 アリゾナ大学 年輪研究所

- 15 : 30～15 : 45 3-2 **1999-2014 年の大気中 ^{10}Be , ^7Be 濃度と $^{10}\text{Be}/^7\text{Be}$ の変動**
 ○山形武靖¹、永井尚生¹、松崎浩之²
 1 日本大学 文理学部、2 東京大学 総合研究博物館
- 15 : 45～16 : 00 3-3 **河川堆積物 ^{10}Be 濃度と粒径の関係**
 ○藤沢純平¹、南 雅代²、國分(齋藤)陽子³
 1 名古屋大学大学院 環境学研究科、2 名古屋大学 宇宙地球環境研究所、3 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター
- 16 : 00～16 : 15 3-4 **つくば市における福島第一原子力発電所事故前後の ^{36}Cl 降下フラックス変動**
 ○落合悠太¹、笹 公和¹、戸崎裕貴²、高橋 努¹、松村万寿美¹、本多真紀¹、細谷青児¹、高野健太¹、太田祐貴¹、末木啓介¹
 1 筑波大学 AMS グループ、2 産業技術総合研究所
- 16 : 15～16 : 30 **休憩**
- 座長：山形 武靖（日本大学）
- 16 : 30～16 : 45 3-5 **福島原発周辺土壌中の ^{36}Cl の深度・蓄積量分布**
 ○太田祐貴¹、末木啓介¹、笹 公和¹、高橋 努¹、松中哲也²、松村万寿美¹、戸崎裕貴³、本多真紀¹、細谷青児¹、高野健太¹、落合悠太¹、佐藤志彦⁴、吉川英樹⁴、中間茂雄⁴、箕輪はるか⁵
 1 筑波大学、2 金沢大学、3 産業技術総合研究所、4 日本原子力研究開発機構、5 東京慈恵会医科大学
- 16 : 45～17 : 00 3-6 **西部北太平洋における福島第一原子力発電所事故によって放出された ^{129}I の沈み込み**
 ○鈴木崇史¹、乙坂重嘉¹、桑原 潤²、川村英之¹、小林卓也¹
 1 日本原子力研究開発機構 環境動態研究グループ、2 日本原子力研究開発機構 AMS 管理課
- 17 : 00～17 : 15 3-7 **北極海における海水中 ^{129}I 濃度の経年変化**
 ○永井尚生¹、山形武靖¹、工藤 輝²、熊本雄一郎³、西野茂人³、松崎浩之⁴
 1 日本大学 文理学部、2 日本大学大学院 総合基礎科学研究科、3 JAMSTEC、4 東京大学 総合研究博物館
- 17 : 15～17 : 30 **集合写真撮影（大会議室）**
- 17 : 30～17 : 45 **休憩**
- 17 : 45～18 : 45 **日本 AMS 研究協会総会（大会議室）**
- 18 : 45～20 : 45 **懇親会（2 階 小ホール）**

第2日目： 12月15日（金）

（9：30 開場）

特別講演－AMS シンポジウム 20 周年記念講演

（講演 15 分・質疑応答 5 分もしくは講演 20 分・質疑応答 10 分）

座長：石丸 恒存（日本原子力研究開発機構）

- 9：50～10：10 S-1 **JAEA-AMS-TONO の 20 年のあゆみ**
 ○國分(齋藤)陽子¹、藤田奈津子¹、松原章浩²、西澤章光²、
 西尾智博¹、三宅正恭¹、石丸恒存¹、渡邊隆広¹、尾方伸久¹、
 島田顕臣¹、石坂千佳²、岡部宣章¹、加藤元久²、磯崎信宏²、
 虎沢 均²
 1 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター、
 2 株式会社 ペスコ
- 10：10～10：40 S-2 **AMS 放射性炭素年代測定による活断層の活動イベント認定の
試み**
 ○安江健一¹
 1 愛知工業大学 地域防災研究センター
- 10：40～10：50 休憩
- 10：50～11：20 S-3 **AMS 研究の発展と日本 AMS 研究協会のあゆみ**
 ○中村俊夫¹
 1 名古屋大学 宇宙地球環境研究所
- 11：20～11：50 S-4 **AMS 研究のこれから**
 ○松崎浩之¹
 1 東京大学 MALT
- 11：50～13：20 昼食

セッション 4－AMS 施設報告・技術開発 3

（講演 12 分・質疑応答 3 分）

座長：佐藤 志彦（日本原子力研究開発機構）

- 13：20～13：35 4-1 **東京大学大気海洋研究所シングルステージ AMS の導入後の 5 年間**
 ○宮入陽介¹、阿瀬貴博¹、平林頌子^{1,3}、佐藤菜央美^{1,3}、
 安藤有加¹、横山祐典^{1,2,3}
 1 東京大学 大気海洋研究所 高解像度環境解析研究センター、
 2 国立研究開発法人 海洋開発研究機構、
 3 東京大学 理学系研究科
- 13：35～13：50 4-2 **東京大学総合研究博物館 Compact-AMS の現状（2017 年）**
 ○尾寄大真¹、大森貴之¹、板橋 悠¹、山崎孔平¹、金澤礼雄¹、
 上原加津維¹、山口絢子¹、内田啓子¹、吉田邦夫¹、米田 穰¹
 1 東京大学 総合研究博物館

セッション5-AMS 応用研究2

(講演 12 分・質疑応答 3 分)

座長：佐藤 志彦（日本原子力研究開発機構）

- 13 : 50～14 : 05 5-1 **白頭山 10 世紀噴火の確定年代からみた十和田カルデラ 10 世紀噴火年代の再検討**
○箱崎真隆¹
1 国立歴史民俗博物館
- 14 : 05～14 : 20 5-2 **JAEA-AMS-TONO における自動グラファイト調製装置 AGE3 の現状**
○渡邊隆広¹、國分(齋藤)陽子¹、藤田奈津子¹、石坂千佳²、
西尾智博^{1,2}、松原章浩²、三宅正恭^{1,2}、加藤元久²、磯崎信宏²、
虎沢 均²、西澤章光²、石丸恒存¹
1 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター、
2 株式会社 ペスコ
- 14 : 20～14 : 30 **優秀発表賞受賞式**
- 14 : 30～14 : 35 **閉会挨拶**
- 14 : 45～ **施設見学会**

ポスター発表

日時： 12月14日（木）13:00～14:00

場所： セラトピア土岐（第1、2会議室）

- P-1 山形大学高感度加速器質量分析センターの現状 2016-2017**
 ○門叶冬樹¹、森谷 透¹、木村弘志¹、設楽理恵¹、佐藤里美¹、
 武山美麗¹、櫻井敬久¹、豊口禎子²
 1 山形大学 高感度加速器質量分析センター、2 山形大学 医学部附属病院
- P-2 JAEA-AMS-TONO の現状（平成 29 年度）**
 ○藤田奈津子¹、三宅正恭¹、渡邊隆広¹、國分(齋藤)陽子¹、
 松原章浩²、磯崎信宏²、西尾智博²、加藤元久²、虎沢均²、西澤章光²、
 島田顕臣¹、尾方伸久¹
 1 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター、2 株式会社 ペスコ
- P-3 イオンチャネリングを利用した同重体分別の開発**
 ○松原章浩¹、藤田奈津子²、三宅正恭²、磯崎信宏¹
 1 株式会社 ペスコ、2 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター
- P-4 リアクションセル ICP-MS、ICP-MS/MS のための ¹²⁹I 標準溶液の作製**
 ○本多真紀¹、高久雄一²、鹿籠康行³、中野かずみ³、松崎浩之⁴、笹 公和¹、
 高橋 努¹、細谷青児¹、末木啓介¹
 1 筑波大学 AMS グループ、2 環境科学技術研究所、3 アジレント・テクノロジー、
 4 東京大学 総合研究博物館
- P-5 簡易型自動グラフアイト処理装置の開発**
 ○大森貴之¹、山崎孔平¹、板橋 悠¹、尾寄大真¹、米田 穰¹
 1 東京大学 総合研究博物館
- P-6 南極海オーストラリア/アフリカ南極海盆における放射性炭素とフロンガスの
過去約 20 年間の変化**
 ○熊本雄一郎¹、佐々木建一¹、村田昌彦¹
 1 海洋研究開発機構
- P-7 南極ドームふじアイスコア中の 5480 BC イベント周辺における宇宙線生成核種 ³⁶Cl
フラックス**
 ○高野健太¹、笹 公和¹、高橋努¹、細谷青児¹、落合悠太¹、戸崎裕貴²、
 堀内一穂³、末木啓介¹
 1 筑波大学、2 産業技術総合研究所、3 弘前大学
- P-8 チベット高原・プマユムツォ湖周辺岩石の ¹⁰Be 測定結果**
 ○奈良郁子¹、渡邊隆広²、國分(齋藤)陽子²、堀内一穂³
 1 名古屋大学 宇宙地球環境研究所、
 2 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター、3 弘前大学 理工学部
- P-9 湖沼堆積物および津波堆積物の放射性炭素年代測定**
 ○渡邊隆広¹、奈良郁子²
 1 日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター、2 名古屋大学 宇宙地球環境研究所

第 20 回 AMS シンポジウム実施委員会

〒509-5102 岐阜県土岐市泉町定林寺 959 番地の 31
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 東濃地科学センター
E-mail: JAEA-AMS-TONO@jaca.go.jp
TEL: 0572-53-0211 (代表)
FAX: 0572-55-0180

実施委員長
石丸恒存

実施委員
島田顕臣
國分(齋藤)陽子
藤田奈津子
渡邊隆広

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량	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 組立単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
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	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方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
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の) 1	1
比透磁率 ^(b)	(数字の) 1	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。

(b) これらは無次元量あるいは次元 1 をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の 1 は通常は表記しない。

表 3. 固有の名称と記号で表される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 ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(c)	1 ^(b)	m ² /m ²
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m ² kg s ⁻²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² kg 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 kg s ⁻³ A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ⁴ A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m ² kg s ⁻² A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg s ⁻² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光束度	ルーメン	lm	cd sr ^(c)	cd
照射度	ルクス	lx	lm/m ²	m ⁻² cd
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m ² 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	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg	m ² s ⁻²
酸素活性化	カタール	kat		s ⁻¹ mol

(a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。

(b)ラジアンとステラジアンは数字の 1 に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。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である数字の 1 は明示されない。

(c)測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。

(d)ヘルツは周期現象についてののみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてののみ使用される。

(e)セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。

(f)放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。

(g)単位シーベルト (PV,2002,70,205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表 4. 単位の中に固有の名称と記号を含む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
粘着力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
角速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ 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 s ⁻³
熱容量, エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ 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 kg s ⁻²
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
電表面電荷	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	m ³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ²
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² 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 kg s ⁻² K ⁻¹ 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 s A
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ =m ² kg 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 sr)	m ² m ⁻² kg s ⁻³ =kg s ⁻³
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ⁻³ s ⁻¹ mol

表 5. SI 接頭語

乗数	名称	記号	乗数	名称	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 6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60 s
時	h	1 h =60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π /180) rad
分	′	1′=(1/60)°=(π /10 800) rad
秒	″	1″=(1/60)′=(π /648 000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ kg

表 7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、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 単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表 8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg≈133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852m
バイン	b	1 b=100fm ² =(10 ¹² cm) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	B	
デシベール	dB	

表 9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エル	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フオトル	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(a)	Oe	1 Oe≡ (10 ³ /4 π) A m ⁻¹

(a) 3 元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ≡ 」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R = 2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1 メートル系カラット=0.2 g = 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	cal	1 cal=4.1858 J (「15℃」カロリー), 4.1868J (「IT」カロリー), 4.184J (「熱化学」カロリー)
マイクロン	μ	1 μ =1μm=10 ⁻⁶ m

