

# Annual Report of NIES-TERRA

Vol. 1, 1998

国立環境研究所

タンデム加速器分析施設完成記念シンポジウム

『加速器質量分析法の展望』

講演集

1996年9月9日

国立環境研究所タンデム加速器分析施設レポート

NIES-TERRA

National Institute for Environmental Studies

Tandem accelerator for Environmental Research and Radiocarbon Analysis

国立環境研究所タンデム加速器分析施設は、平成5年度の補正予算でその設置が認められ、平成7年8月の研究本館Ⅲの建物完成をうけて設置工事が開始された。その後現在までに至る2年余りの間、据え付け、試験運転、問題点の洗い出し、調整作業、ソフトの改良等を繰り返しながら定常的な運用に向けての準備が進められており、特に炭素14については国内最高の0.5%レベルの繰り返し精度での測定をほぼ1年間にわたって維持できるところまでできている。本資料集は、この国立環境研究所タンデム加速器分析施設(NIES-TERRA:Tandem accelerator for Environmental Research and Radiocarbon Analysis)の完成を記念して、1996年9月9日に大山記念ホールで開催されたシンポジウム『加速器質量分析法の展望』における各先生方の講演、並びに鈴木所長(当時)の開会の挨拶をまとめたものである。

加速器質量分析法(AMS)は、環境中のごく微量の長寿命放射性核種をきわめて高い感度で測定できる、高度な分析手法である。環境中に存在する自然起源の放射性核種は、環境変化の時間軸を与える因子として、或いは又、環境中の物質の起源や動態を探るための指標として、重要な役割を担っている。従来、放射性核種は、その放射能を手がかりとして分析を行うのが常であった。しかしながら、寿命の長い核種ほど単位時間当たり、単位重量(原子数)当たりの崩壊数が少ないため、放射能測定で正確な濃度を知るためにはより多量の試料と長い測定時間が必要になる。これに対し、質量分析の原理を基本として、負イオン生成の選択性と加速器による分子(多原子)イオンの破壊及び高エネルギー粒子の弁別計測技術とを組み合わせ、これらの核種を直接イオンとして1つ1つ区別しながら計測することで、はるかに高感度な分析が可能になることが約20年前に示され、以来、この新しい分析法であるAMSの研究開発が世界各地で熱心に進められてきた。

環境中に存在する様々な放射性核種の中には、宇宙線によって絶えず地球上で生成される一群の核種がある。これらの核種としては、後の講演で示されているようにいくつかの代表例が知られているが、その生成のメカニズムについては、

- 1)大気の上層で空気中成分原子と宇宙線との衝突((n,p)反応又はSpallation)で作られ、環境中を循環するもの
- 2)地表で、鉱物中、生物中の成分原子と宇宙線(主に二次的な中性子並びにミューオン)との相互作用で生成したもの

の2つに大別できる。1)の例としては、窒素( $^{14}\text{N}$ )の(n,p)反応で生じた $^{14}\text{C}$ が最も良く知られており、考古遺物・地質試料等の年代測定、或いは環境中の炭素循環の解明などに関する研究が活発に進められている。最初の講演では、10数年に渡ってAMSによる $^{14}\text{C}$ 研究を推進されてきた名古屋大学年代測定資料研究センターの中村俊夫助教授に、AMSの原理や研究の現状、将来展望を、ご自身の研究の一端を交えて紹介していただいた。一方、2)については、特に地表における様々な環境変化(氷河、侵食、堆積など)の解明の観点から注目され、最近急速に研究が進展しつつある。2番目の講演では、地表で生成される2)のメカニズムに焦点を当て、名古屋大学と共に日本のAMS研究をリードしてきた東京大学のグループで主に $^{10}\text{B}$ e研究を進められてきた東京大学原子核研究所今村峯雄助教授に、広範なレビューとご自身の研究の紹介をしてい

ただいた。3番目の講演は、AMS研究の中心地の一つであるヨーロッパで活発に研究を進めておられるドイツErlangen大学のW. Kretschmer教授に、ご自身の研究を中心としていくつかのトピックスをご紹介いただいた。Erlangen大学では、1988年以来、既存の加速器を改造してAMS研究が進められている。比較的后発ながら優れた研究成果をあげられ、名古屋大学の中村先生が共同研究を行われた場所でもある。今回、幸いにも在日中の所をお招きすることができ、ヨーロッパの最先端のAMS研究の雰囲気を伺うことができた。最後に、AMSの当研究所への導入にあたって中心的な役割を果たした国立環境研究所地域環境研究グループの森田昌敏統括研究官より、国立環境研究所に設置されたタンデム加速器分析施設の設置の経緯と概要、並びに今後の研究の展開について紹介があった。

本講演集のとりまとめにあたっては、各講演のビデオ録画をもとに加速器分析施設の立ち上げ作業に携わってきた所内研究者が分担して文章を作成し、各講演者が使われた図の全部或いは一部を拝借してそのコピーをあわせて掲載した。編者らの責任で一部文章の手直しを行った部分もあるが、基本的には各講演の雰囲気をなるべく損なわないよう手直しは最小限にとどめている。また、講演者の意向を尊重して、本文では参照されながら対応する図表が掲載されていない部分もあることをお断りしておく。なお、内容については正確を期すべく努力したが、刊行までに時間があいてしまい、講演者の方々に十分な確認作業をしていただくことが難しくなってしまった。そのために不正確な部分が残ったとすればひとえに編者の怠慢によるものであり、刊行が遅れたこととあわせてお詫び申し上げます。

最後に、貴重な講演を快くお引き受けいただいた講演者の諸先生に深く感謝するとともに、式典に参加された方々、本研究施設の設置にあたっていろいろな形でご努力・ご助言等いただいた所内外の方々に厚く御礼申し上げます。

国立環境研究所化学環境部 動態化学研究室  
柴田康行

#### <分担一覧>

- |                               |           |
|-------------------------------|-----------|
| 1)開会の挨拶(鈴木所長)                 | 熊本雄一郎     |
| 2)講演1(名大中村助教授)                | 熊本雄一郎     |
| 3)講演2(東大今村助教授)                | 田中 敦      |
| 4)講演3(Erlangen大学Kretschmer教授) | 米田 穰、柴田康行 |
| 5)講演4(国環研森田統括研究官)             | 柴田康行      |

## 目次

# 国立環境研究所タンDEM加速器分析施設完成記念シンポジウム 『加速器質量分析法の展望』

平成8年9月9日(月)

国立環境研究所 大山記念ホール

### 開会の辞

鈴木 継美 国立環境研究所 所長 ----- 1

### 講演1：名古屋大学タンDEM加速器質量分析計による放射性炭素の測定とその応用

中村 俊夫 名古屋大学年代測定資料研究センター --- 3

### 講演2：地球表層における宇宙線生成同位体とその応用

今村 峯雄 東京大学原子核研究所 ----- 15

### 講演3：The Erlangen AMS Facility and its Applications in Interdisciplinary Research

Wolfgang Kretschmer Univ. Erlangen ----- 27

### 講演4：炭素循環解明に向けての加速器質量分析法の応用

森田 昌敏 国立環境研究所地域環境研究グループ -- 33

## 開会の辞

国立環境研究所所長

鈴木継美

所長をしております鈴木でございます。皆様ようこそお越し下さいました。私共の研究所でかねがね建設し、そして動かすのに努力をしておりました加速器MSがようやく、なんとなく動き始めるというところまでまいりましたので、それを記念する形でシンポジウムを開かせていただくことになりました。幸いにエルランゲン大学のクレッチマー教授が今日本に滞在していらっしゃいまして、このシンポジウムに参加していただくことになりました。Thank you Professor Kretschmer for coming here. 今日にはもうすでにご経験のある名古屋大学の中村先生、東京大学の今村先生にさらにお加わり頂いてお話しいただくわけであります。

恐らくお集まりの皆様方には、この手の装置が何ををはかるものでどんな意味を持っているものかについて私が申し上げることは何にも無いだろうと思います。私自身は若い頃東京工大にありましたヴァンデグラーフ装置を動かして東京工大の物理学者といっしょに、私自身はバックグラウンドは医学なのですが、血液の中の微量元素をPIXEで測ろうなんていうことをたくらんで随分早い頃にやった覚えがございます。あまりうまくいきませんで、まともな研究もたくさんできなかったわけであります。そのころスウェーデンのヨハンソンさんがみえたりして、この領域の大型の加速器を動かすことの難しさ、加速器を安定にもって行ってそこからそれぞれの領域の仕事にむすびつけていくことの難しさを少しは味わった覚えがあります。今は私共の技術もそういう意味ではまだ産みの苦しみを味わっている段階だろうと思いますが、今日のシンポジウムを機会に我々のところの装置がフルに稼働するように希望して開会の挨拶とさせていただきます。

# 名古屋大学タンデトロロン加速器質量分析計による放射性炭素の測定とその応用

名古屋大学年代測定資料研究センター助教授  
中村俊夫

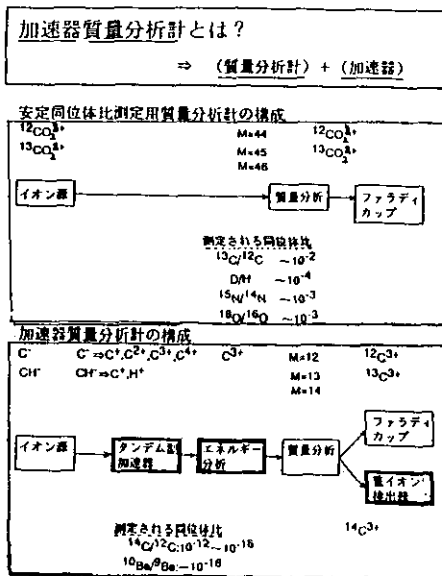
ただいまご紹介にあずかりました中村でございます。このたびは、立派な加速器質量分析施設が完成し、おめでとうございます。私も、15年ばかり加速器質量分析計に取り組んできました。その間日本では東京大学とうちだけということで、いままで、ある意味で独走態勢といえますか、のんびりしていたのでありますが、これからはこのような立派な施設ができるので、われわれとしてものんびりしてられないという、競争の時代にはいつてきたという認識をもっております。また、新たに私どももがんばっていきたいと思っています。

1996年9月9日、MST Symo.

## 名古屋大学タンデトロロン加速器質量分析計による放射性炭素の測定とその応用

名古屋大学 年代測定資料研究センター 中村 俊夫

1. 加速器質量分析(AMS)とは
2. 名古屋大学タンデトロロン加速器質量分析計による放射性炭素濃度 ( $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ 比)の測定と測定誤差
3.  $^{14}\text{C}$ 測定の実用例
4. AMSの現状と将来



OHP-1

OHP-2

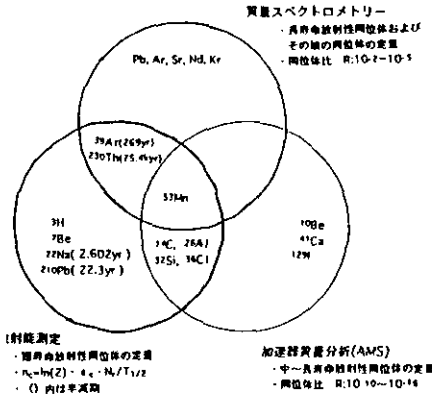
【OHP-1】さて、今日はトップバッターで加速器分析計(AMS)のことも話せということですので、加速器質量分析計とは何かということをも簡単にしゃべったあと、15年間、名古屋大学でやってきましたことを、これは放射性炭素濃度の測定とそれを使った年代測定ですが、それについて応用例を2, 3紹介して、将来の展望についても述べさせていただきます。

まず加速器質量分析計についてです【OHP-2】。通常の質量分析計と比べてどう違うかということですが、加速器が新たに付いている点が大きな違いです。通常の例えば二酸化炭素の安定同位体を測るものと、 $\text{CO}_2$ のプラスイオンをつくって、 $M/Z=44, 45, 46$ を質量分析して、ファラデーカップで受けて、それから比を出します。同じように同位体を測るわけですが、だいたい10のマイナス3, 4乗程度の比を測ります。それに比べて、加速器質量分析計の場合は、加速器とエネルギー分析、それから重イオン検出器があります。負のイオンを発生させて、できる分子イオンを加速器でばらばらにしてやる、そして原子のイオンを最終的に重イオン検出器で検出します。非常に微量のもの、10のマイナス12から16乗レベルのものを精度よく測ろうというのがこの機械です。

この放射性同位体測定法には、だいたい3つの方法があると思います。それをここにまとめてみました【OHP-3】。質量スペクトロメトリーと加速器質量分析、これらは今比較したものです。そのほかに、放射能測定というものがあります。それぞれでどういう測定核種があるかをここに示したわけですが、半減期が短いものは放射能測定で測定します。中位のものには加速器質量分析計を使います。それから非常に長い寿命をもつもの、ウランとか鉛に関連するものは質量スペク

トロメトリーを使います。その中間状態としていくつかあるわけですが、たとえばベリリウムは、ここにいらっしゃる今村先生などは昔放射能測定で苦労してやっておられたのですが、もうらち

放射性同位体測定法とその特徴



Comparison of Efficiency between Beta-ray counting and <sup>14</sup>C Atom Counting with AMS

(1) Error of <sup>14</sup>C age is normally given by statistical error  
 $\Delta T \propto 1/\sqrt{N_{14}}$

(2) Beta-ray counting  
 count rate:  $n_c = \epsilon_c \cdot N_r / \tau$

$\epsilon_c$  = counting efficiency  
 $N_r$  = number of <sup>14</sup>C atoms  
 $\tau$  = mean life of <sup>14</sup>C (8267 years)

(3) Direct <sup>14</sup>C atom counting  
 count rate:  $n_{AMS} = \epsilon_{AMS} \cdot I \cdot N_r / N_s$

$\epsilon_{AMS}$  = ion transport efficiency  
 $I$  = negative ion current at ion source  
 $N_r$  = number of <sup>14</sup>C  
 $N_s$  = number of <sup>12</sup>C or <sup>13</sup>C

(4) Comparison of count rates

Counting Time	Sample Amount	$n_c$ ( <sup>14</sup> C)	$n_{AMS}$ ( <sup>14</sup> C)
1 hour	1 mg	0.83	26600
1 hour	1000 mg	830	26600
10 hours	1000 mg	8300	266000

$\epsilon_c = 1.0$   
 $\tau = 8267 \text{ yr}$   
 $\epsilon_{AMS} = 0.1$   
 $I = 10 \mu\text{A} (6.2 \times 10^{11} \text{ ions/s})$   
 $N_r/N_s = \text{<sup>14</sup>C/<sup>12</sup>C} = 1.2 \times 10^{-11}$   
 (Modern Carbon)

OHP-3

OHP-4

があかないということで、今ではほとんど加速器質量分析で測定しておられます。ただ、わたしどもがやっている炭素14については、両方法が測定に用いられています。

この炭素14について、その特質、放射能測定と加速器質量分析の特質をここにまとめてみました【OHP-4】。一番上にあるのは炭素14年代を測定するときの誤差の要因ですが、(1)は統計的な誤差です。これは炭素14をどのくらいたくさん検出するかで決まります。ルートNトータル分の1で誤差が出てきますから、誤差を減らすためにはできるだけ炭素14をカウントする必要があります。(2)のベータ線のカウントレート、放射線カウンターのカウントレート  $n_c$  は、これは半減期  $\tau$  に反比例して測定対象となる原子、放射性炭素14の数  $N_r$  に比例する。それから(3)の<sup>14</sup>Cカウンティング(つまりAMS)の場合は電流  $I$  に比例し、アイソトープ比  $N_r/N_s$  に比例し、エフィシエンシー  $\epsilon_{AMS}$  が効いてくる。ですから、たとえば、この一番下にあるように、カウンティングタイム、サンプルの量、これはサンプルとしてはモダンカーボンを考えていますが、1mgの量ですと1時間でカウンティングではわずかに一個しかこない、ところがAMSでやりますと2万7千個近く来ます。ただ、試料を増やしても加速器質量分析の場合は増えません。というのは結局イオン化しないと、ダイレクトカウントでは意味がないということです。

表1 AMSと放射能測定における<sup>14</sup>Cおよび<sup>10</sup>Be測定の効率の比較

Counting hours	Sample amount	<sup>14</sup> C		<sup>10</sup> Be	
		$n_c$	$n_{AMS}$	$n_c$	$n_{AMS}$
1 hr	1 mg	0.83	26,600	0.11	684,000
1 hr	1000 mg	830	$\geq 26,600^*$	110	$\geq 684,000^*$
10 hr	1000 mg	8,300	266,000**	1,100	6,840,000**

Conditions:  
 $\epsilon_c = 1.0$   
 $T_{1/2} = 5,730 \text{ yr}$   
 $\epsilon_{AMS} = 0.1$   
 $I = 10 \mu\text{A} (6.2 \times 10^{11} \text{ ions/s})$   
 $N_r/N_s = \text{<sup>14</sup>C/<sup>12</sup>C} = 1.2 \times 10^{-11}$   
 $\epsilon_c = 1.0$   
 $T_{1/2} = 1.6 \times 10^6 \text{ yr}$   
 $I = 10 \mu\text{A} (6.2 \times 10^{11} \text{ ions/s})$   
 $N_r/N_s = \text{<sup>10</sup>Be/<sup>9</sup>Be} = 3.1 \times 10^{-11}$

このように違いますし、特にベリリウムの場合には大きな差があります【OHP-5】。この程度のモダンというか割と濃度の高いものについて比較すると、カウンティングでは1時間、1mgで約0.1個に対して、AMSでは68万個計算上では測定できることになります。これはひとえに半減期が長いことによります。

OHP-5

AMSで測定可能な対象として、他にもいろいろありますけれども、このような例があ

げられます【OHP-6】。その応用としては、主として年代測定、トレーサーとして医学とか地球科学的な利用、それから宇宙線科学などの利用もあります。このうち半減期が短いトリチウム、ベリリウム7、炭素14については、さきほども申しましたようにベータ線カウンティング法もあるのですが、それもだんだん加速器法がとって変わりつつある状況です。

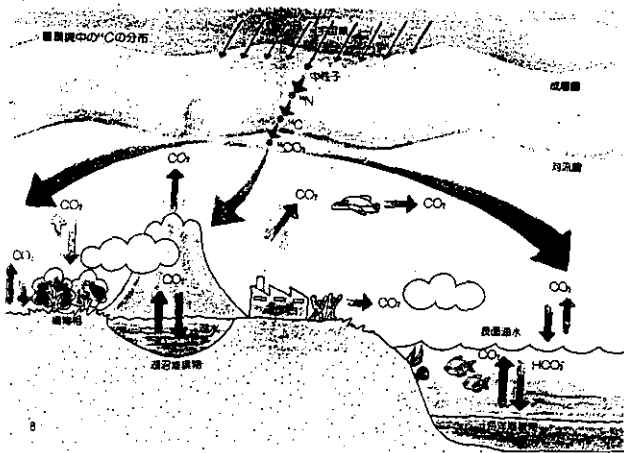
加速器質量分析 (AMS) で測定対象となる主な宇宙線生成放射性核種とその応用

放射性核種	半減期	生成機構	応用
$^{14}\text{C}$	5730年	$^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ $\text{N}_2\text{O}$ の核分裂反応	地下水の年齢と流動追跡、トレーサーとして医学利用
$^{10}\text{Be}$	53.3日	$\text{N}_2\text{O}$ の核分裂反応	成層圏一対流圏大気の流れ
$^{26}\text{Al}$	$1.5 \times 10^6$ 年	$\text{N}_2\text{O}$ の核分裂反応	海洋堆積物や氷床の年代測定、岩石表面照射年代測定、宇宙線強度変動、地球磁場強度変動、太陽活動の変動、火山帯のマグマの起源
$^{14}\text{C}$	5730年	$^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$	各種試料の年代測定、隕石の落下年代測定、トレーサーとして環境中の炭素循環の解析や医学利用
$^{26}\text{Al}$	$7.1 \times 10^5$ 年	$\text{Fe-Ar}$ の核分裂反応 $\text{Al, Si}$ との核反応	岩石表面照射年代測定、トレーサーとして医学利用
$^{36}\text{Si}$	101-172年	$\text{Ar}$ の核分裂反応	地下水の年齢
$^{37}\text{Cl}$	$3.0 \times 10^5$ 年	$^{37}\text{Cl}(n,\gamma)^{37}\text{Cl}$ $^{37}\text{Ar}(n,p)^{37}\text{Cl}$ $\text{Ar}$ の核分裂反応	隕石の落下年代、地下水の年齢、岩石表面照射年代測定、太陽活動の変動、トレーサーとして医学利用
$^{44}\text{Ca}$	$1.0 \times 10^5$ 年	$^{44}\text{Ca}(n,\gamma)^{44}\text{Ca}$	骨などの年代測定、トレーサーとして医学利用
$^{54}\text{Mn}$	$3.7 \times 10^5$ 年	$\text{Fe}$ との核反応 ( $^{54}\text{Fe}(p,\alpha)^{54}\text{Mn}$ , etc)	年代測定、宇宙線強度変動
$^{238}\text{U}$	$4.57 \times 10^9$ 年	$^{238}\text{Xe}(n,p)^{238}\text{U}$ $^{238}\text{U}$ の自発核分裂	年代測定、火山活動の歴史、宇宙線強度変動、トレーサーとして地下水の流動追跡

主な利用：(1)年代測定  
(2)トレーサーとして医学・地球科学的利用  
(3)宇宙線科学

OHP-6

このような加速器質量分析計をつかって、我々年代を測定してきたわけです。これは約13年前に名古屋大学に入った装置で【OHP-7】、ターミナルボルテージ3ミリオンという話でしたが、結局2ミリオンにしかあがらなくて、1.8ミリオンでいま運転しているという状況になっています。これを用いて、我々炭素14について測定して、いろいろ研究を進めているところです。今日はそのれについて簡単にご紹介させていただきます。



OHP-8

宇宙線がふってきてそれと大気中の原子と反応して中性子ができる、できた中性子が窒素に吸われて炭素14になって、炭素14がCO<sub>2</sub>として環境中をまわり、これが光合成で取り込まれて生物体の中に入って行って、それが死にますと、あとはその半減期に基づいて減少していきます【OHP-8】。ですから、減少して、いまどのくらい残っているかを測定してやれば、閉鎖系になった後の年代値がでてくるということで、年代測定をしていることになります。

## タンデロン 加速器質量分析計 放射性炭素計測システム



名古屋大学年代測定資料研究センター  
加速器質量分析第一実験室

OHP-7

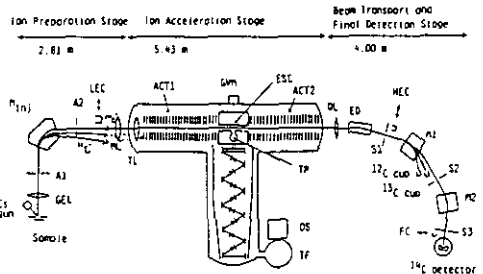


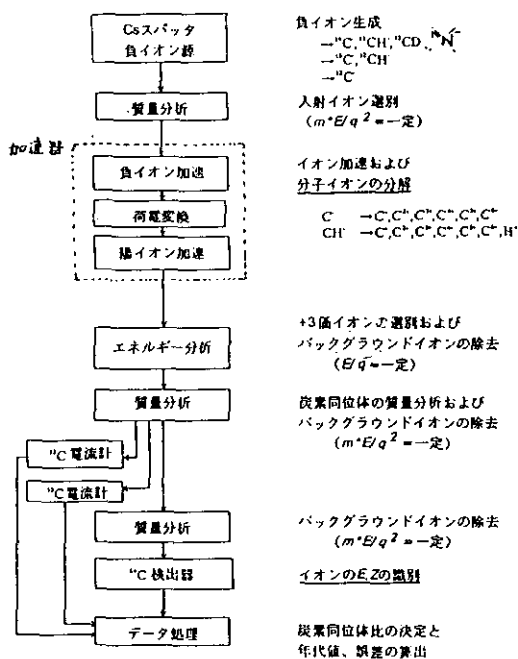
図2  $^{14}\text{C}$  測定用タンデロン加速器質量分析計の全体図

A1, A2, S1, S2, S3: ビームスリット, GEL, ML, TL, QL: 静電レンズ系, LEC, HEC,  $^{14}\text{C}$  cup,  $^{13}\text{C}$  cup, FC: イオン電流計測用フォラディカップ, Cs gun: セシウムスパッタ負イオン源, Mini, M1, M2: 質量分析用電磁石, ACT1, ACT2: 加速管, GVM: 発電型高電圧計, ESC: 荷電交換カナル, TP: 荷電型換ガス (アルゴン) トラップ用ターボ分子ポンプ, OS: 高電圧発生用の高周波交流電源の発振器, TF: 高周波交流電流のステップアップトランス, ED: 静電型15度デフレクター,  $^{14}\text{C}$  detector:  $^{14}\text{C}$  検出用直イオン検出器

OHP-9

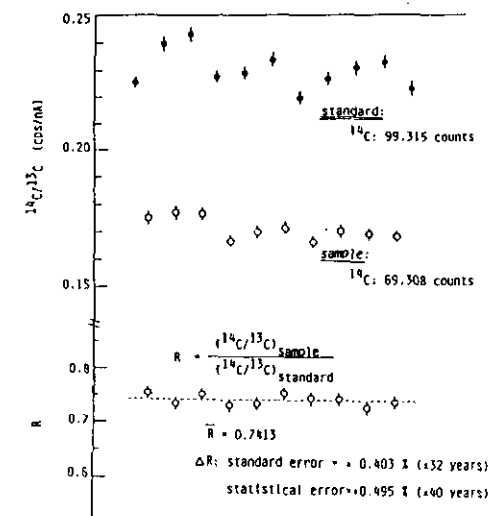


さきほど写真をお見せしました加速器の装置ですが【OHP-9】、固体状のターゲットをイオン源にセットして、それから、セシウムで叩いて、負イオンを作るわけです。それを加速器で加速してやって、1.8ミリオンで動かしておりますが、加速してやってエネルギー分析、質量分析をして、炭素13はファラデーカップで受けて、炭素14はもう一度質量分析して、<sup>14</sup>Cディテクターでたしかに炭素14であることを確認して測定します。



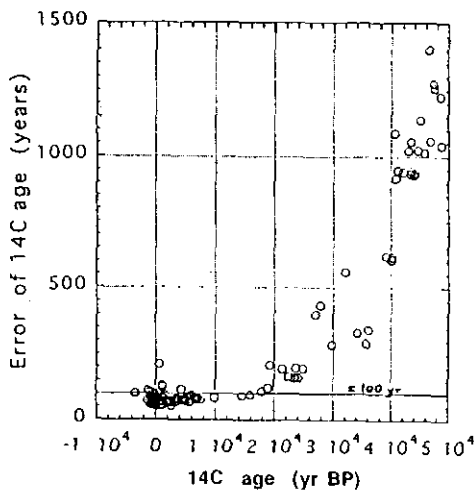
OHP-10

ここでも重要な点は3つあります【OHP-10】。まずはこのイオン源ですが、こういった負イオンを作るわけですが、炭素14を正確に計りたいわけですが、窒素もおなじ質量をもっております。ですからこれがまざってくると非常に問題があるわけですが、実は窒素の負イオンは作られないということで、負のイオンでイオン源を使うというメリットが一つあげられます。それからもうひとつ、同時にこのような分子イオンができるわけです。これが結構多量にできます。特に<sup>14</sup>Cに対しては、分子イオンのほうが一億倍ぐらい多くできます。10の8乗倍ぐらいできます。ですから、それをのぞかなければならないというのが加速器で、この加速器は負のイオンを加速した後、荷電変換し、こんどは陽イオンにして、それを加速するというふうになっていますが、ここで分子イオンは完全にHとCに分けられまして、<sup>13</sup>CHというのが分子の状態では存在できなくなる、これが2つめの点でございます。こうやって、同重体を除くことができます。それからもう一つは、高エネルギー



OHP-11

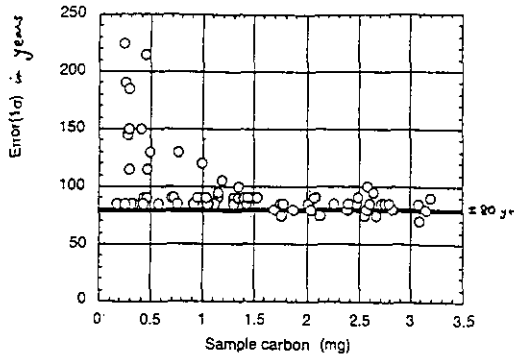
こうやって検出するわけですが、実際の名古屋大学でやっております方法としては、スタンダードとサンプルを交互に測る、つまり、まずスタンダードについて炭素の13と14の比を測る。おなじ状況でこのイオン源のところだけ交換して、回転ホルダーに乗っているサンプルをちょっとかえてやるわけです。あとのところは全然もとのままです。サンプルとスタンダードとの比をとってやると、このRという値が出てまいります【OHP-11】。この分母のほうはわかっておりますから、このRに適当な数字を掛けてやりますと試料の<sup>13</sup>C、<sup>14</sup>C濃度、すなわち最終的には



OHP-12

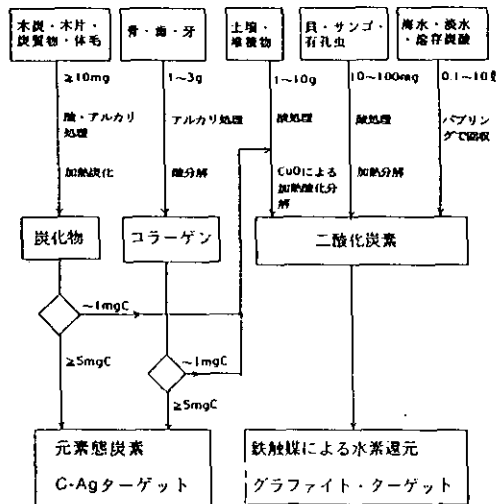
年代が測定できるということになります。

それから、これが炭素14の誤差がどのくらいかを示したもので、最近200イベント近くの統計をとったものです【OHP-12】。年代は1万年、2万年、3万年、4万年、5万年という、だいたい1万年から1万5千年の間は、だいたい100年より誤差が小さく、それから年代が大きくなるにしたがって誤差が大きくなります。



OHP-13

ですから、機械がルーチンに動き出しますと問題は試料調製をいかにうまくやるかということになります【OHP-14】。試料については、炭素14測定については、木炭、象牙とか歯とかそれか



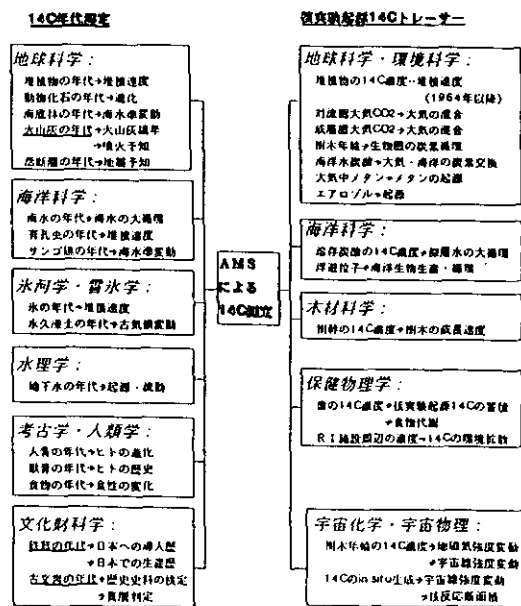
OHP-14

ら土壌中の有機物、それから海生のサンゴとか有孔虫、それから水とか海水に含まれております炭酸、このように環境試料から考古学試料にいたるまでいろいろあります。重要なことは、ここにありますように前処理でいかにその汚染を除くかということです。それからあと、二酸化炭素を作ってグラファイト化するわけですが、このグラファイトをいかにピュアなもの、ようするにビームがでるグラファイトをつくるかということが問題になってきます。

こうして測定をやるわけですが【OHP-15】、炭素14の学際的利用として、炭素年代測定と、トレーサー実験として、地球科学、海洋科学、文化財科学、或いは海洋科学とか木材科学とか、このように幅広く使われておられて、やはり、AMSのなかで、どこでもやはり炭素14を測定するというぐらい、広い応用範囲をもっています。今日は時間がありません限り、古文書、それから下からいくとあとは、火山灰、堆積物の年代測定ということについて簡単にご紹介させていただきます

それからもうひとつ重要なことは、試料の量によって変わってくるということです【OHP-13】。これは、主として試料調製の難しさによるわけですが、横軸が試料の量、縦軸が誤差ですけれども、これ(図中の太線)がプラスマイナス80年のところで、1.数ミリグラム以上になりますと、だいたいコンスタントにプラスマイナス100年以下に抑えることができますが、1mg以下では、うまく行くこともあるんですが、このように誤差が大きくなります。これは、主としてターゲットの出来、それがイオン出力を決めてきますので、それで誤差が大きくなるということになります。

AMSによる<sup>14</sup>C測定の学際的利用



OHP-15

ます。

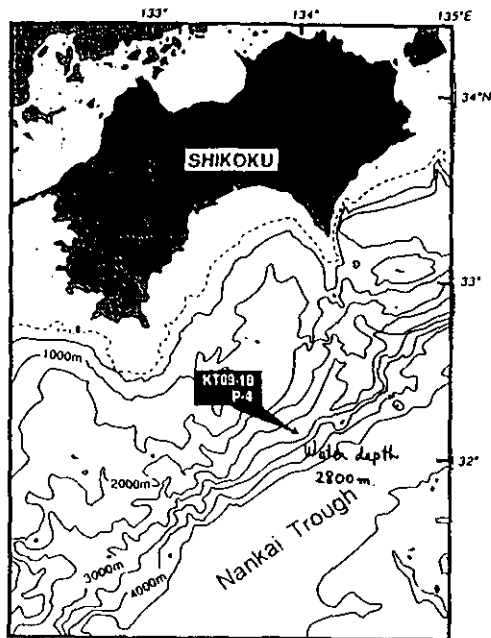


図2 KT 89-18, P4コアの採取地点.

OHP-16

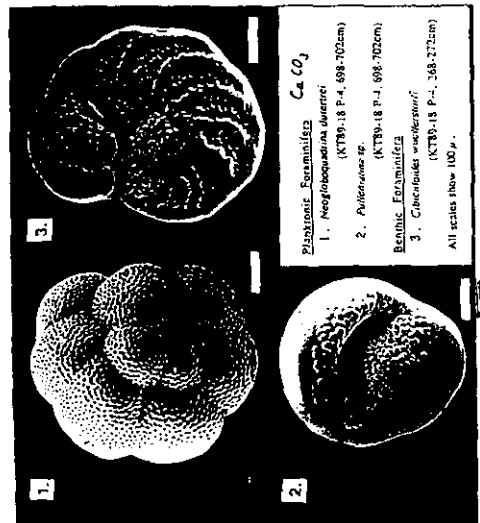
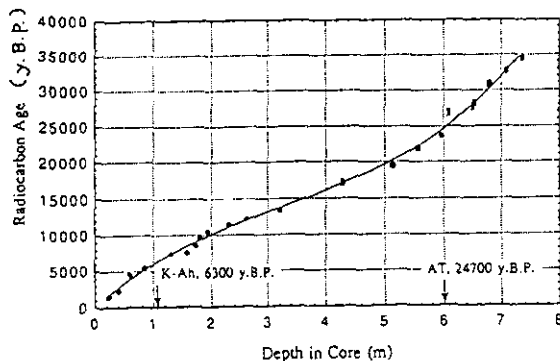


写真1. 海洋堆積物中から採取された有孔虫化石。図中のスケールのほうがより  
 なる。直径が約400μmととても小さいので目録の中で「有孔虫」には  
 添えられる。詳細は、本誌に掲載されている論文(山田ほか, 1997)を  
 参照のこと。

OHP-17

まず、海洋堆積物の年代測定の例です【OHP-16】が、採取場所は四国沖のこのあたりで深さ2800メートルぐらいです。環境変動を追跡するためには必要なことですが、年代値もきちんと入れる必要があります。そこで、年代軸をいれるときに何をつかうかという、すぐに思い浮かぶのは堆積物中の有機物ですが、ここでは加速器を使うようになってこのような有孔虫というものを使うようになった【OHP-17】。これが100μmですから、これで500μm、非常に小さいもので、顕微鏡でのぞかないとわからないようなものです。これを500-600個ぐらい集めますと、それでだいたい10から20mgの炭酸カルシウムを得ることできる。その中には、だいたい10分の1の炭素がふくまれておりますから、それを抽出してやって、測定してやればよいことになります。

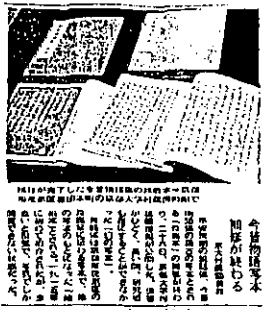
<sup>14</sup>C age of foraminifera  
 浮遊性有孔虫の<sup>14</sup>C年代



OHP-18

代と非常に良くマッチしています。非常に微量な試料を精度よく測定できるという例のひとつです。

その結果がこれです【OHP-18】。有孔虫には2種類ありまして、浮遊性と底生の有孔虫があります。底生のは当然底層流のなかに含まれている炭素から自分の殻を作るわけで、底層流の場合は古いカーボンを含んでいる可能性がありますので、年代測定する時には、浮遊性のものを選び出して測定してやる必要があります。横軸が深さ、縦軸が年代になっておりますが、20点測定しまして、だいたい深さとともにきちんと年代は古くなっています。それから、火山灰がいくつかみつかりまして、それについての位置の年代は、AT、これがだいたい2万5千年ちかく、それからアカホヤ火山灰(K-Ah)が6300年ということで、その有孔虫の年



今昔物語集本  
綴紐が中心

1994.7.27 朝日新聞

今昔物語集本  
綴紐が中心  
京都大学図書館蔵  
今昔物語集本  
綴紐が中心  
京都大学図書館蔵

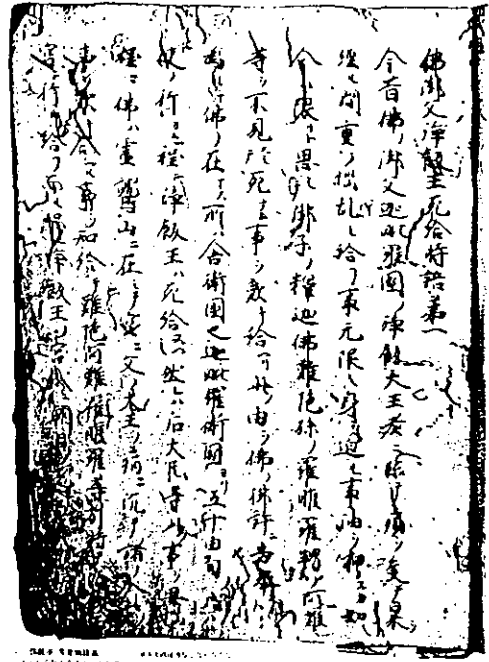
重要文化財指定申請へ



今昔物語集本  
綴紐が中心  
京都大学図書館蔵

幻の写本、修復完了  
「今昔物語集」京大図書館が公開

1994.7.27 朝日新聞



今昔物語集本  
綴紐が中心  
京都大学図書館蔵

OHP-19

OHP-20

それから、次のような応用もごさいます【OHP-19】。重要文化財に指定されております、いま国宝にされたと思いますが、京都大学図書館の今昔物語鈴鹿本、ただ、これは本自体は、紙切れは測れませんで、じつは綴じ紐ならいいだろうということでしたものです。これがその今昔物語集で【OHP-20】、僕には全然読めないのですが、この辺の何もかいてないところを、このあたりを少し切らせていただければ、紙自体について測定できるわけですけど、それも許されませんで、製本をやり直すときに、綴じてあった紐がいらなくなった、これならつかっていいということで、使わせていただいたものです。

試料 = "とじ糸"

表1. 「今昔物語集」(律書上)綴じ糸の試料測定

試料 No.	巻 (位置)	採取箇所	試料 [mg]	炭素濃度 [%]	δ <sup>13</sup> C [‰]	δ <sup>14</sup> C [‰]
1	二(上)	41.2	22.4	1.38	0.35	
2	二(中)	54.2	28.4	1.46	1.22	
3	二(下)	54.9	40.7	1.43	1.49	
4	五(上)	49.8	46.7	1.44	2.31	
5	七(中)	57.0	25.7	1.56	1.49	
6	九(上段)	10.2	6.3	0.71	0.41	
7	九(上)	70.2	42.5	1.49	0.36	
8	九(下段)	54.2	11.2	1.04	0.44	
9	二十七	55.7	29.6	1.42	1.22	
10	二十七	24.1	14.6	1.20	0.95	

表2. 「今昔物語集」(律書上)綴じ糸<sup>14</sup>C年代測定結果

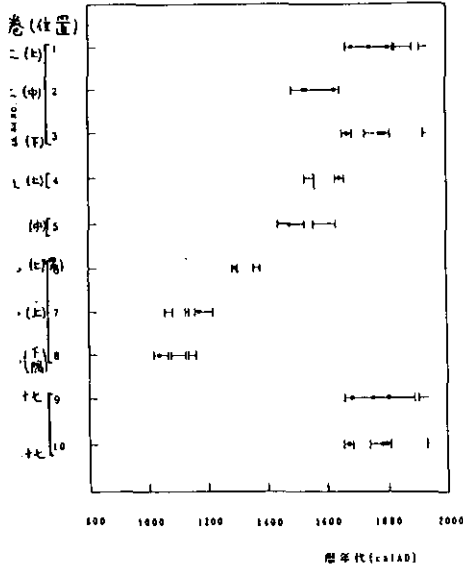
試料 No.	試料 [mg]	δ <sup>13</sup> C [‰]	δ <sup>14</sup> C [‰]	<sup>14</sup> C年代 [BP]
1	0.3261 ± 0.0041	-23.43 ± 0.06	-18.90 ± 0.06	134 ± 53
2	0.3128 ± 0.0059	-25.64 ± 0.06	-18.73 ± 0.06	119 ± 57
3	0.3119 ± 0.0011	-25.24 ± 0.06	-18.60 ± 0.06	138 ± 61
4	0.3217 ± 0.0052	-25.33 ± 0.06	-18.93 ± 0.06	130 ± 45
5	0.3084 ± 0.0079	-25.74 ± 0.06	-18.84 ± 0.06	400 ± 70
6	0.2712 ± 0.0042	-26.10 ± 0.06	-18.89 ± 0.06	440 ± 35
7	0.3351 ± 0.0042	-26.02 ± 0.06	-18.93 ± 0.06	484 ± 40
8	0.4062 ± 0.0050	-26.04 ± 0.06	-18.50 ± 0.06	368 ± 44
9	0.3158 ± 0.0046	-26.71 ± 0.06	-18.83 ± 0.06	170 ± 13
10	0.3313 ± 0.0059	-25.62 ± 0.06	-18.77 ± 0.06	202 ± 51

OHP-21

で、綴じ紐ですけど、全部で10点測定しております【OHP-21】。これが、巻、号数です。上中下とありますが、これは3カ所とめてありますと、上の綴じ紐、二番目の綴じ紐、下の綴じ紐ということでごさいます。だいたい試料として1mg程度を使いまして、C14濃度を測って、それを年代もっていきます。

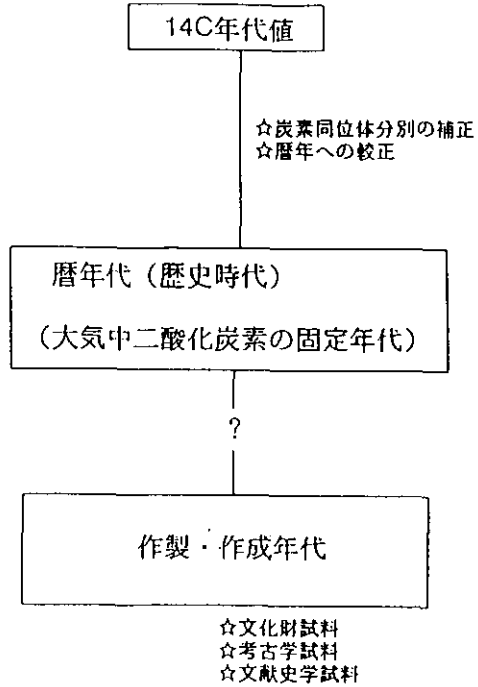
この炭素14年代ではじつはその成立年代にはいきませんで、それをさらに年輪年代で補正ということをやります【OHP-22】。それについては時間がありませんので省略させていただきますが、横軸は、カーボン年代を暦年代に補正したのを使っております。縦軸は綴じ紐の番号です。そうすると、グループ分けできまして、まずこれがひとつ非常に古い年代を示しています。それから中間、それから三つ目、四つ目、というふうに四つの種類に分けることが出来る。でこれはなんだという

図1. 『今昔物語集』「縁起本」綴じ糸の暦年代



『今昔物語集』「縁起本」綴じ糸の暦年代について、これを以下の四つの時代に区別することができる。  
 1. 1000~1150[calAD]…巻九(上)(下段)  
 4. 1300[calAD]…巻九(上段)  
 8. 1450~1650[calAD]…巻五(上)、巻七(中)、巻二(中)  
 7. 1650~1940[calAD]…巻二(上)(下)、巻二十七

OHP-22

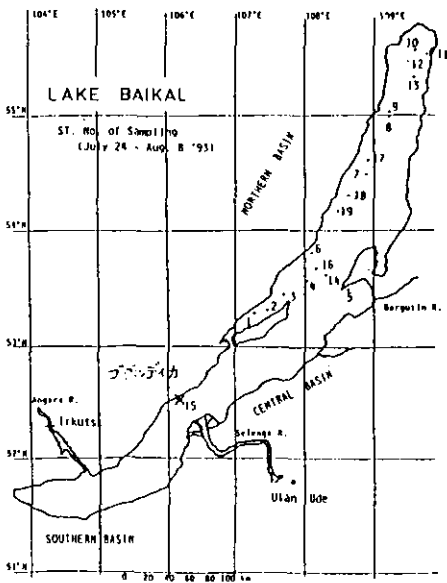


OHP-23

ことなのですが、結局考えますに、この成立年代は、今昔物語集という物語が出来たのが、1120年から1125年、これは、話の内容でだいたい推測できます。それがきちんと書かれて製本されたのがいつごろかということですが、綴じ紐として、それに非常に近い綴じ紐の年代が得られたということで、われわれとしては、これがその清書した、最初の原書に一番近いものじゃないかと考えています。そのあとの年代は何かということですが、よく読まれて綴じ紐がだんだん廃れてくる、それを交換した年代ではないかということですが、

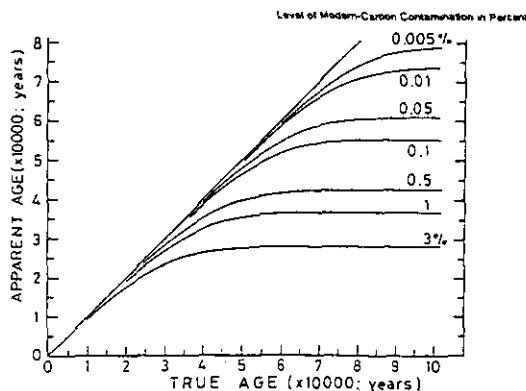
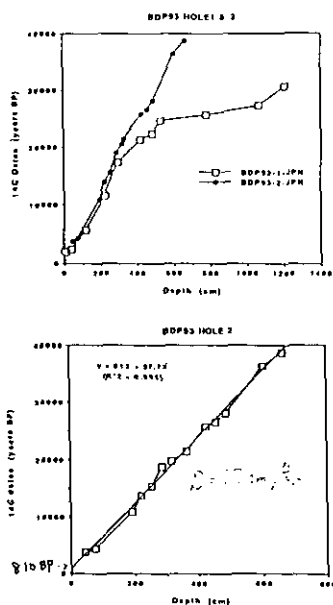
でも、このような文化財で一番問題となるのは、われわれ、試料の年代をはかる、そしてそれをさきほど言いました暦年代に校正して試料の暦年代を測る【OHP-23】わけですが、それと、やはりその対象となる、われわれが知ろうとしている年代、たとえば、今昔物語がいつ出来たということを知りたいわけですが、それを直接知ることとは、多少のギャップがあるわけですね。われわれが測ったのは綴じ紐ですから、そのところがありますので、いろいろまだ「ほんまかいな」と言われる問題もあると思うのですが、こういうものをだんだんと積み重ねていきたいと考えております。

それから、ここの河合先生が主にやっておられますバイカル湖の研究ですが、これでまた、おもしろい結果が得られております【OHP-24】。このブルディカのところで100mのコアが2本採られております。年代測定した結果をお示しますと、この上の方の結果が得られております【OHP-25】。近くで二本、10m足らずの距離で二本掘られておりまして、



OHP-24

バイカル湖 100 m CP  
(1993)



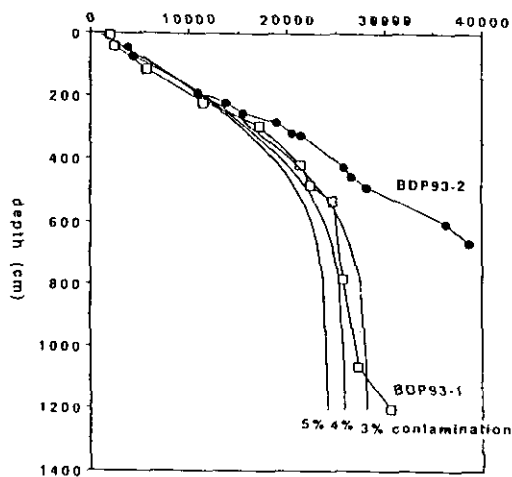
OHP-25

最初に分析したのはこの白抜きのほうですが、このあたりで堆積速度がやけに速くなっているという結果がでました。ほんとかいなということ。それからもうひとつ、もう一回別のところを掘ったら、こう真っ直ぐになった（黒丸）。これとこれの違い、近いところですからそんなに堆積速度が違うはずはないのですが、このようにずれてきたということです。じつはこの一番上の白抜きを採ったときには試料の分割をそんなに気にせずに行ったということで、そのために試料のコンタミがあるんじゃないかということがあります。実はコンタミレベルといいますか.....。これ【OHP-26】は、横軸がリアルな年代で、縦軸が見かけの年代で、どういうことか

OHP-26

かというと、これは現代の炭素が3%試料に、カーボンのうち3%がモダンカーボンが混じったときにどういう年代を示すかを表す線です。このような年代のところに、たとえば6万年の年代のものに3%（現代の）炭素14が混ざりますと、これは2万6千年ぐらしか示さない、という計算ができるわけです。これは計算上のものです。

14C Dates (years BP)



ですからさきほどの黒い二番目の測定が正しいとして、これにどのくらいモダンカーボンが混ざるとこういう白抜きのカーブに近くなるかという【OHP-27】、だいたい3%とから4%。ですから、試料の分別とか、保存の状態で、おそらく、3、4%のモダンカーボンが混ざってきたのではないかということがこれで結論されます。非常に大事なことは、やはり年代測定する上で一番大事なのは、もちろんきちんと試料を調製して測定することも大事ですが、そのほかに、試料をいかに汚染無しに保つことができる

OHP-27

かということです。ですから、試料分割というのは非常に注意しなければならないということになります。

さて、時間がありませんので、このくらいにしまして、別な話に移らせていただきます。これは、実は柴田先生がまとめられた、今年のアリゾナの加速器質量分析計の学会で発表したものを

アメリカ大陸

AMS\_FAC2.XLS (from Y. Shibata, NIST)

	型式	製作	納入	電圧	14C	10Be	26Al	36Cl	41Ca	129I	その他
1	Canada										
2	Chalk River	MP	HVEC	1965	15						
3	Arizona	Tandatron	GIC	1980	2						
4	WHOI	Tandatron	US-AMS	1991	2.5						
5	PEIRIE Lab.	FN	HVEC	1991	7.3						
6	LLNL	FN	HVEC	(from U)	7.3						JH
7	Pennsylvania	FN	HVEC	?	7.5						
8	U. Washington	FN	HVEC	Shut-down							
9	Rochester	FN(MP?)	HVEC	Shut-down							
10	North Texas	9SDH	NEC		3						TEAMS
11	Hawaii Res. Lab.	9SDH(?)	NEC		3						TEAMS
**											
	[ブラジル]										
12	Sao Paulo	8UD	NEC	1971	9						
13	Rio de Janeiro	?									
	[アルゼンチン]										
14	LANBAR	20UD	NEC	1980?	20						ICF, RI

OHP-28

ヨーロッパ

AMS\_FAC2.XLS (from Y. Shibata, NIST)

	型式	製作	納入	電圧	14C	10Be	26Al	36Cl	41Ca	129I	その他
1	[スウェーデン]										
	Lund	3UDH	NEC	?							
2	[ドイツ]										
	Munchen	MP	HVEC	1970	15						
3	Erlangen	FN	HVEC	1966							190Sr
4	Kiel	Tandatron	HVEC	1995	3						
5	Rossendorf			?							JH
6	[オランダ]										
	Utrecht	FN	HVEC	1967	6						
7	Groningen	Tandatron	HVEC	1992	2.5						
	[フランス]										
8	Gif-sur-Yvette	Tandatron	GIC	1983	2						
	[イギリス]										
9	Oxford	Tandatron	GIC	1982	2						Gas Microbeam
10	Daresbury			Shut-down							
	[オーストリア]										
11	VEGA	9SDH	NEC	1996	3						
	[スイス]										
12	PSI/ETH	FN	HVEC	1960							Microbeam Si, Fe等
13	Denmark	FN	HVEC	1972	6						
	[イスラエル]										
14	Racah	14UD	NEC	1975	14						

OHP-29

アジア・オセアニア

AMS\_FAC2.XLS (from Y. Shibata, NIST)

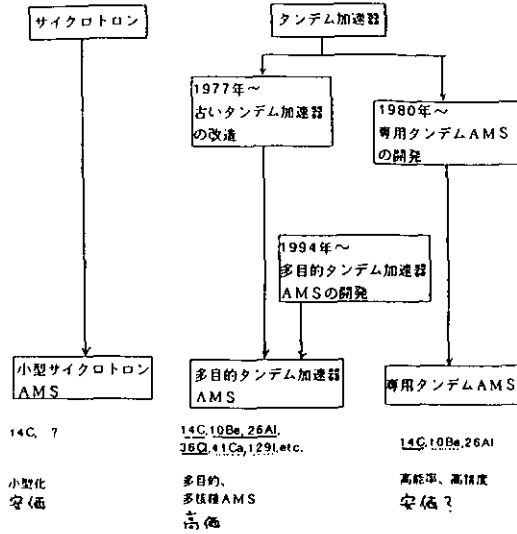
	型式	製作	納入	電圧	14C	10Be	26Al	36Cl	41Ca	129I	その他
1	日本										
	東大	5UD	NEC	1994	5						
2	京大	Tandatron	GIC	1982	2						
3	筑波大	12UD	NEC	1975	12						
4	京大	8UDH	NEC	1990	7						
5	NTS	15SDH-2	NEC	1996	5						
6	九州	自作		1980?	10						
7	[韓国-大漢]	Tandatron	HVEC		3						
8	[韓国]	15SDH-2	NEC		5						
9	京大	Tandatron	HVEC		3						
	[中国]										
10	CIAS	HI-13	HVEC?	?	>10						1995e
11	PRUAMS	FN	HVEC	1991	5.5						
12	SINR-Tandem	自作?			6						
13	SINR-SHAMS	Cyclotron									
	[オーストラリア]										
14	ANU	14UD	NEC	1973	14						59Ni
15	AMTARES	FN(Rutgers)	HVEC	1989							
16	CSIRO(AUSTRALIS)	Tandatron	GIC	1990	2						TEAMS
	[ニュージーランド]										
17	Inst. Geol. Nucl. Sci. EM?			1987							

OHP-30

もとに、各国でどのくらい加速器分析計を所有して動かしているかということを示したものです。これはアメリカ大陸で【OHP-28】、ちなみにアメリカは9施設がございます。それからヨーロッパも同じくらいで、だいたい14、同じくらいです【OHP-29】。今日、クレッチマー先生が来ておられますが、このエルランゲン大学でございます。それから日本の場合、アジア・オセアニア地方はどうなっているか【OHP-30】、ここもだいぶ多くて、これから入るところを含めると全部で9施設、9台も入ることになりまして、いよいよ日本もアメリカなりに装置の数だけは入るんだよということ、これを使って、柴田先生、この間おっしゃっておられました。そのうち動いているのはこの一番上の名古屋大学と東京大学で【OHP-31】まだまだなんですが、これから、京都大学、九州大学、筑波大学も、古い加速器をがんばって動かそうとされておられます。これからもうすこしいろいろと必要かと思えます。それで、この加速器分析の発展の歴史ですが【OHP-32】、最初、サイクロトロンで加速器分析が最初に行われました。引き続いてタンデム加速器を使ったものがつかわれました。最初はこちらだったんですが、こちらのほう(サイクロトロン)は結局ルーチンで働かすことがほとんどむずかしいということで諦められたようですが、まだ努力は続けられています。もしこれが成功すれば、やはり小さいということと、比較的安価に装置が組めるということで、将来的には魅力的なものですが、いまのところ実用化はむずかしいということです。それからタンデム加速器については、古いタンデム型の加速器を改造して用いる所がありまして、それから専用のマシン、これはタンデトロンがそうですが、ぜんぶで5台入りまして、そのう

日本における加速器質量分析研究の進展状況

- AMS専用機**
- 1) 名古屋大学年代測定資料センター-タンデム加速器  
 → ● 1981-1982導入 3 MV / 4130 A C-14 タンデトロン  
 1996-1997導入 3 MV / Ultra-sensitive 14C analyzer, タンデトロン
  - 2) 国立環境研究所  
 → ● 1995導入 5 MV / 15 SDH-2ペレトロン
  - 3) 日本原子力研究所 / 日本海洋科学振興財団-むつ海洋研究所  
 1997導入 3 MV / Ultra-sensitive 14C and 129I analyzer, タンデトロン
  - 4) 動力炉・核燃料開発事業団 / 東海地科学センター  
 1997導入 5 MV / 15 SDH-2ペレトロン
- AMS汎用機**
- 1) 東京大学タンデム加速器  
 → ● 1991-1993導入 5 MV / 5 UDペレトロン
- AMS開発中**
- 1) 東京大学タンデム加速器  
 1988-1989改良 6 MV / 6 UDHペレトロン
  - 2) 九州大学タンデム加速器  
 1981完成 1.0 MV / 手作り
  - 3) 筑波大学タンデム加速器  
 1976導入 1.2 MV / 1.2 UDペレトロン



OHP-31

OHP-32

ちの一台が名古屋大学の我々のところに入ったタンデトロン加速器です。それから十何年たった後、多目的のこちらの線に沿ったタンデム加速器が作られ、その1号機が東京大学のものであり、ここの加速器 (NIES-TERRA) にも関連するものです。それは多目的に、いろいろな核種を測ろうとする目的のものです。それからこちらのライン (AMS専用機としての加速器) としては、炭素14、あるいはベリリウムに限るんですが、高能率で高精度な測定を行いたいということで進められています。そういう2つの流れがあります。

OHPはあと2枚です【OHP-33】。

従来型から新型のAMSへの改良点として、測定の効率化、測定精度、正確度の向上、操作性、安全性の向上ということで進められてきました。ですから、ここの段階からここの段階に移って行く上でそのような改良が行われたということです。どのくらい違うのかということですが、こちらの我々のものにお話を限ってご説明させていただきますが、従来のタンデトロンでは、1%の精度というものがぎりぎりでした。

測定時間は2時間から4時間、年間800

個ぐらいが限度でしたが、それが新型になりますと、まだ、名古屋大学では動いておりませんが、0.3%、測定時間は20分から40分、測定数が3000個になるということでございます。原理的には、こちらの装置も同じですので、年間3000個やるためには、試料調製をいかにうまくこなすかということが問題になってくると思います。

それから将来の発展としては、できるだけ小型にした状態で、多核種を測れるように、重たいイオンを測れるようにそれぞれ努力されるようになって行くだろうと思われ【OHP-34】。それから、小型の加速器、加速器とは言えないような1ミリオンボルトの放射線の取り扱いの対象にならないようなものを使って、生物医学のC14測定、トレーサー研究が重要です。それからもうひとつ重要なことですが、ここのタンデム加速器でも装備されているガスイオン源の実用化、それから二次イオンの加速器質量分析などが徐々に、完成に近づいて行くのではないかと思います。それからもう一つやはり重要なのは、試料調製をいかに効率よくやるかです。海水試料につ

表1 タンデトロンAMSと放射能測定による<sup>14</sup>C測定と比較

項目	最新型 <sup>14</sup> C AMS (名古屋大学)	<sup>14</sup> C AMS (名古屋大学)	ガス比例計数管 (日本計測工業協会)
必要な試料量	0.05~1 mg	0.2~1 mg	2.2 g
測定可能な 古い年代の限界	約60,000 yr BP	約60,000 yr BP	35,000~40,000 yr BP
測定精度	±0.3 % (±20~±30 yr)	±0.7~±1.0 % (±60~±80 yr)	±1.0 % (±80 yr)
計測時間	20~40分 (標準体と試料)	2~4 時間 (標準体と試料)	16~20時間 (試料のみ)
測定数	~3000個/年	~800個/年	

OHP-33



#### 4. AMSの現状と将来

##### (1) 従来型AMSから最新型AMSへの改良点

- \* 測定の高効率化 (High through put)
  - ① 計算機制御による測定操作の自動化
  - ② 検出効率の向上:
    - (最適加速電圧、ビームライン・加速管の改良)
- \* 測定精度、正確度の向上
  - ① 加速器質量分析計の最適化:
    - (同位体の分離入射から同時入射へ  
: Bouncer → Re-combinator, -biner)
  - ② 装置の安定度 (装置の連続運転、空気の精密制御)
  - ③ 専用装置化 (単一核種の測定)
- \* 操作性、安定性の向上
  - ① 計算機制御による測定操作の自動化
  - ② 加速器の小型化、安定化 (保守の簡便化)

##### (2) 今後の展開

- \* 小型加速器による多核種の測定への対応
- \* 小型加速器 (加速電圧 1 MV 以下) による生物・医学試料の<sup>14</sup>C測定
- \* ガス (CO<sub>2</sub>) イオン源の実用化……“GC-AMS”
- \* 二次イオンの加速器質量分析 (SIMS ⇔ SI-AMS) の実用化

##### (3) その他

- \* 試料調製操作の自動化:
  - 米国ウッズホール海洋研究所 (WHOI) では、海水試料抽出、グラファイト化を自動化

いてはすでに試料調製装置の自動化ができていますので、今後、年間あたりの測定試料を増やすという意味では、やはり試料調製をいかにうまくやっていくかということが非常に大切なことだと考えております。

OHP-34

# 地球表層における宇宙線生成同位体とその応用

東京大学原子核研究所助教授  
(現国立歴史民族博物館教授)  
今村峯雄

ただいまご紹介いただきました東京大学原子核研究所の今村と申します。このたびはこちらの加速器MSの施設が完成したということで、心からお祝い申し上げます。

今日はこちらにお招きいただきましてつたないお話をさせていただくこととなりますが、このような題目でお話しさせていただくことにいたしました【OHP-1】。実は、先ほど中村先生からお話がありました $^{14}\text{C}$ というのは、これは大気の中でできる放射性核種です【OHP-2】。 $^{14}\text{C}$ というのは半減期5730年で壊変し、大気の中で毎秒できる量というのはこのように一番高いのですが、現在地球上に存在する量としては75トン位です。一方 $^{10}\text{Be}$ というのは、それよりかなり生成率が低い半減期が長いために、大量のものが地球上に存在しています。このように、 $^{14}\text{C}$ 以外にも、大気からできたいろいろな核種を使って、地球の大気の流れとかあるいは物の動き、そういうものを追いかける、そういう研究がされているわけです。

【OHP-3】今日お話しするのは、実は地球表層の中でも特に岩石の中でできる放射性核種についてで、これが最近、注目されております。岩石というのはご存じのように酸素がたくさんあります。そこで、酸素からできる $^{10}\text{Be}$ ですとか $^{14}\text{C}$ などがありますし、それからケイ素(Si)というのは必ずあるわけで、そこから $^{26}\text{Al}$ など、さらに不純物として、不純物というより主要元素ですが、塩素とかカルシウムなどから半減期が31万年の $^{36}\text{Cl}$ 、そういうようなもろもろの半減期の核種ができるわけです。それらを利用

しますと、今までできなかった新しい研究ができるのではないかとということで、私も十年程前からいろいろと測定をはじめようと思っておりました。残念ながら昔の東京大学のタンデムでは難しいところがありまして、最近できました新しいタンデムでようやくこういった仕事ができるのではないかとことになりました。実際にデータは諸外国でなされているものを中心にお話ししますのでお恥ずかしい状況ですが、そういうことをご紹介かたがたお話ししたいと思います。

## 地球表層における宇宙線生成同位体とその応用

今村峯雄 (東京大学原子核研究所)

1. Introduction
2. Cosmic-ray-produced radionuclides in rocks
3. Roles of AMS in measurements of *in-situ* produced nuclides
4. Applications to dating rocks
5. Applications to studies on the Earth's surface processes
6. Future prospects

### OHP-1

Table. Cosmic-ray-produced isotopes in Earth's atmosphere

Isotope	Half-life	Production Rate (atoms $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ )	Global Inventory
$^3\text{He}$	Stable	0.2	3200 tons
$^3\text{H}$	12.3y	0.25	3.5kg
$^7\text{Be}$	53d	$8.1 \times 10^{-2}$	3.2g
$^{10}\text{Be}$	$1.5 \times 10^6\text{y}$	$4.5 \times 10^{-2}$	260tons
$^{14}\text{C}$	5730y	2.5	75tons
$^{26}\text{Al}$	$7.3 \times 10^5\text{y}$	$1.4 \times 10^{-4}$	1.1tons
$^{32}\text{Si}$	130y	$1.6 \times 10^{-4}$	360g
$^{36}\text{Cl}$	$3.1 \times 10^5\text{y}$	$1.1 \times 10^{-3}$	15tons

after Lal and Suess ('68)  
(with revision for half-life)

### OHP-2

## 岩石中に生成する長半減期宇宙線生成核種

主な核種                      主なターゲット元素

$^{10}\text{Be}(1.5 \times 10^6 \text{ y})$	C, O
$^{14}\text{C}(5.73 \times 10^4 \text{ y})$	O
$^{26}\text{Al}(7.2 \times 10^5 \text{ y})$	Al, Si
$^{36}\text{Cl}(3.1 \times 10^5 \text{ y})$	Cl, K, Ca
$^{41}\text{Ca}(1.02 \times 10^5 \text{ y})$	Ca, Ti
$^{53}\text{Mn}(3.7 \times 10^6 \text{ y})$	Fe
$^{129}\text{I}(1.6 \times 10^7 \text{ y})$	Te,
$^3\text{He}(\text{stable})$	Li, O, Si
$^{21}\text{Ne}(\text{stable})$	Mg, Al, Si

OHP-3

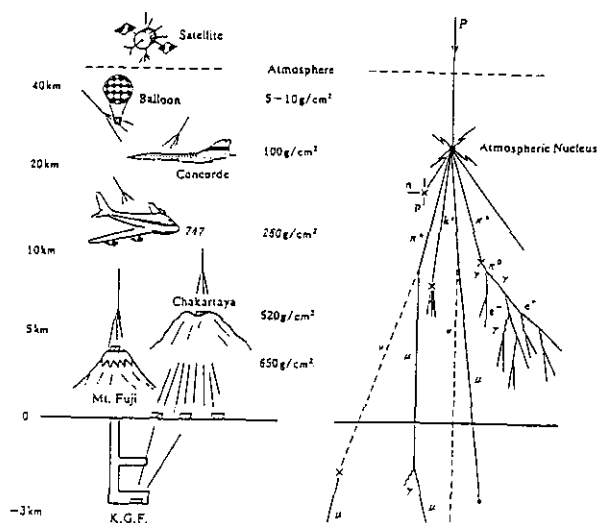


Fig. 7.1.1. The outline of the cosmic ray phenomena and their observing methods.

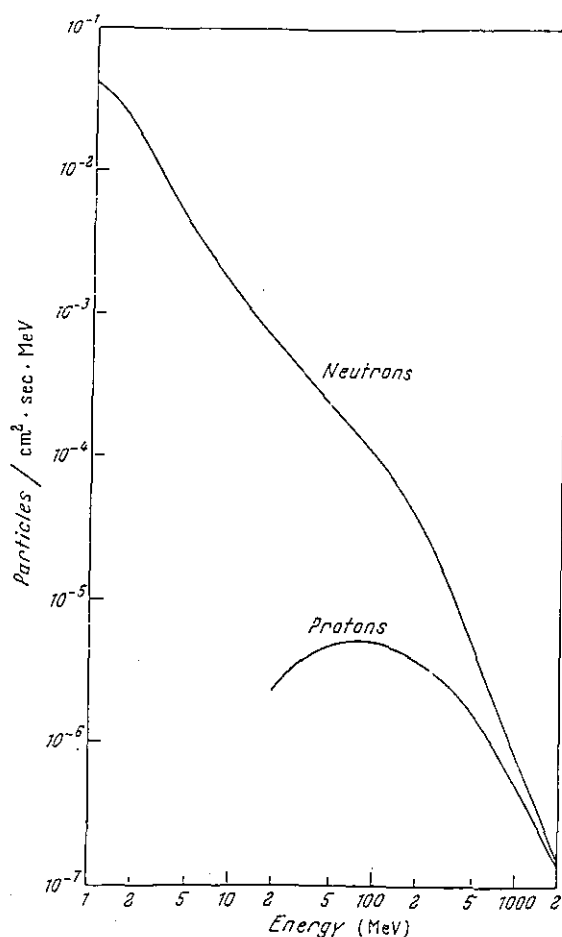
(after Miyake '83)

OHP-4

【OHP-4】宇宙線は外側に行けば非常にエネルギーの高いものですが、地球の大気の中では二次的にできた中性子とかパイオンとかミューオンなどでできています。そのなかで、例えば

ヒマラヤでいいますと 9000 m 近くあるわけですが、その辺りでは宇宙線は地上のだいたい 100 倍くらいあります。ここでそういう宇宙線生成核種ができる反応には、中性子が主要な核種として寄与します。富士山ですとだいたい地上の 10 倍くらいの核種ができるということになっています。【OHP-5】他の宇宙線はあまり寄与がありません。例えば、これは 680 g ですからだいたい 4000 m 前後の高さになると思いますけれども、そういうところでは、このように中性子が大きな比重を占めておりまして、そのために実際に岩石の中でできる核反応というものは中性子によるものと考えてよろしいわけです。

【OHP-6】どれくらいできるのかといいますと、測定値があります。Nishiizumi さんというカリフォルニア大学のバークレイにいる方がやったものですが、 $^{10}\text{Be}$ だと 1 g の石英でだいたい毎年 6 個ずつ、ずいぶんばらつきがありますが  $^{14}\text{C}$ だと 20 個、 $^{21}\text{Ne}$ だと 15 個、 $^{26}\text{Al}$ では 37 個たまってきます。そういうたまった量を測りますと、いろいろ

Fig. 7. The differential kinetic energy spectrum of nucleons in the atmosphere at  $\lambda = 50^\circ$ ,  $68^\circ\text{C}$ .

OHP-5

宇宙放射線による核反応生成物の蓄積

in atoms/g SiO<sub>2</sub>-year at sea level, >50°

- Be-10: 6.0
- C-14: 20
- Ne-21: 15
- Al-26: 37

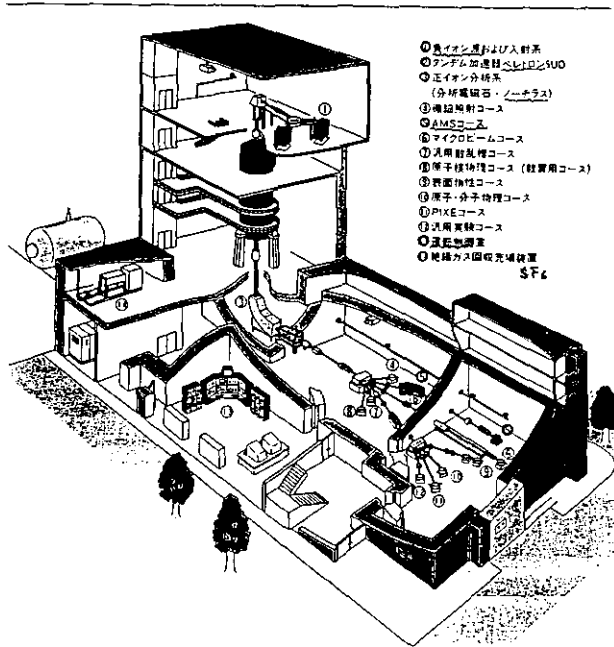
(K.Nishiizumi et al.,1993による)

質量分析: Ne-21

加速器質量分析: Be-10, C-14, Al-26etc.

OHP-6

AMS  
of  
very small sample  
ex. Cosmic spherule  
(Zoppi et al. '96)



OHP-7

年代の問題ですとか、浸食の問題、あるいは堆積の問題などに応用できます。

【OHP-7】 そういう少ない量というものが本当にちゃんと測れるのかどうかということですが、我々も最近非常にわずかな量の核種を測る方法を確立しました。これは東大の原子力研究総合センターにあります装置です。こちらに完成しましたNECの5MVと同じもので、縦型ですが、ここにAMSのコースがありまして、これらはほかのビームラインで、PIXEなど他の研究に使われております。

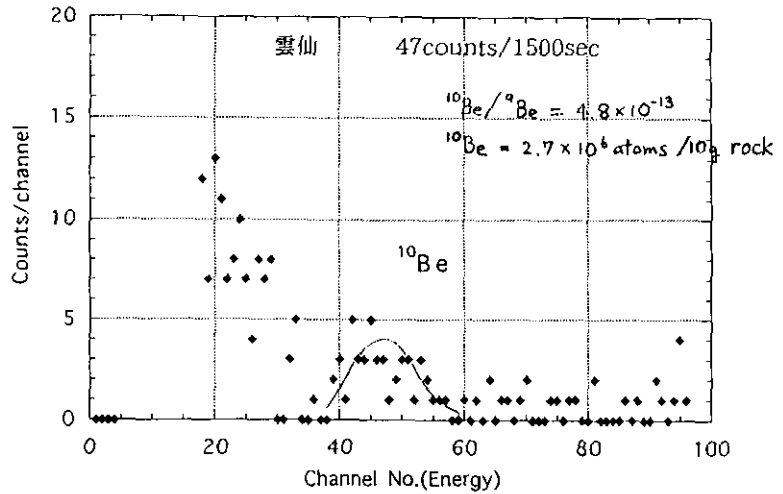
#	m [μg]	Size [μm]	ρ [g/cm <sup>3</sup> ]	O [%]	<sup>10</sup> Be [dpm/kg]
44	18.4	257 x 251	2.17	36.04	8.8 ± 7.7
47	17.0	245 x 233	2.45	37.80	5.3 ± 7.3
54	23.4	306 x 282	1.84	41.91	11.7 ± 11.0
55	25.3	294 x 282	2.08	43.32	12.7 ± 8.3
57	21.0	306 x 282	1.65	45.73	19.9 ± 13.8
58	26.7	318 x 294	1.86	38.27	28.9 ± 22.5
59	69.3	306 x 306	4.62	22.43	6.6 ± 6.5
60	16.8	245 x 208	3.03	38.07	38.7 ± 33.3
64	30.1	453 x 355	1.01	42.42	15.1 ± 12.4
65	121.2	526 x 453	2.15	39.93	3.9 ± 2.3
67	89.9	428 x 410	2.39	38.42	3.9 ± 1.9
77	123.0	367 x 355	5.09	22.52	0.7 ± 4.4
79	353.6	563 x 563	3.79	26.32	1.9 ± 2.2
80	74.5	306 x 306	4.98	28.31	9.2 ± 17.3
81	128.5	379 x 367	4.81	22.64	4.1 ± 1.7
82	47.4	330 x 318	2.71	41.51	8.1 ± 4.1
83	98.8	465 x 453	1.98	40.29	3.6 ± 1.9
85	91.5	477 x 367	2.72	38.66	4.7 ± 3.9
88	88.3	367 x 306	4.91	22.82	4.2 ± 3.2
89	192.5	428 x 428	4.68	22.96	3.7 ± 1.5
90	117.9	367 x 367	4.56	23.00	3.6 ± 1.5
97	30.6	232 x 232	4.66	22.59	3.5 ± 4.5
101	238.0	612 x 575	2.25	41.43	2.6 ± 1.4
103	35.4	343 x 306	2.11	33.94	3.0 ± 7.9
104	77.2	404 x 404	2.24	37.59	0.5 ± 2.0
105	87.9	453 x 367	2.75	41.15	14.0 ± 5.6
106	39.0	355 x 294	2.44	32.65	3.0 ± 3.3
110	70.7	391 x 367	2.56	39.24	1.6 ± 2.1
113	136.1	550 x 428	2.58	41.02	2.8 ± 1.2
114	313.1	648 x 624	2.37	36.06	4.0 ± 1.4
115	76.3	318 x 306	4.90	22.30	13.8 ± 3.9

OHP-8

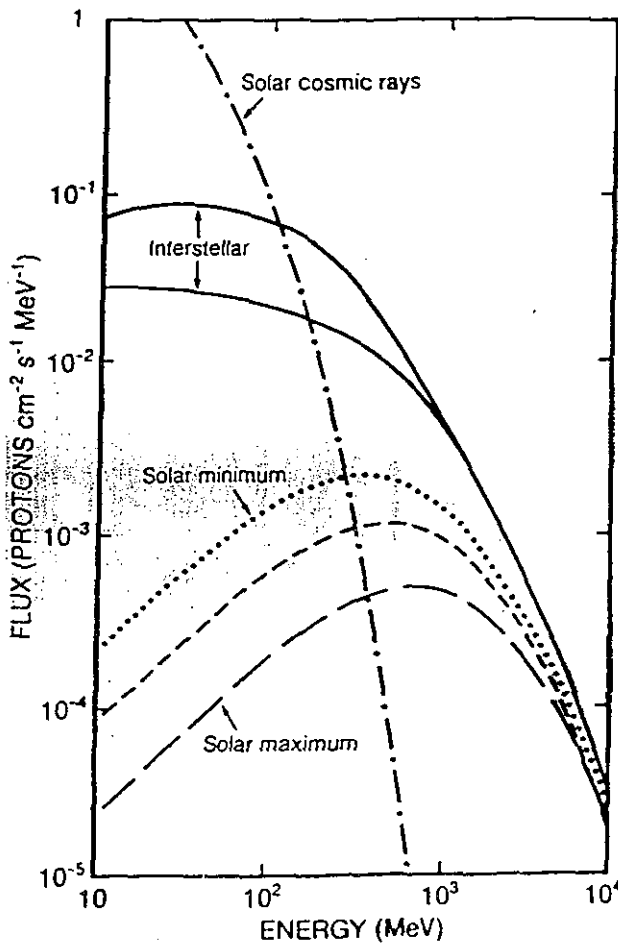
【OHP-8】 これは一つの例です。数字がたくさん並んでおりますが、これは最近測ったもので、いわゆるコズミックダスト、或いはコズミックスフェリユールと呼ばれる、球状の非常に小さい粒子が海底堆積物などに含まれていますが、これを我々のグループの一人が測りました。サンプルの量としては18 μgとか17 μgとか非常にわずかです。大きいものでも300 μg、それくらいの量の中の<sup>10</sup>Beを測ってほしいサンプル1個あたり10<sup>5</sup>~10<sup>6</sup>個くらい入っているわけで、まだまだ精度は悪いんですが、こういうものを測れる、少なくとも何らかのデータを得ると

ころまでやってきております。

【OHP-9】これは、私が最近測りました雲仙の火山です。雲仙の火山の中に含まれるベリリウム、これはまた別の目的があるのですが、このあたりのスペクトルは実はボロンでして、 $^{10}\text{Be}$ というのは $^{10}\text{B}$ と同重体であります。それでこの $^{10}\text{B}$ のテールがずっと入っていますが、ここで一応分かれておまして、ここにベリリウムのピークがでます。このカウントは少しバックがありますけれども、 $^{10}\text{Be}$ と $^9\text{Be}$ の比がこれでわかりますように  $4.8 \times 10^{-13}$ 、そういう比になります。10 g の岩石からベリリウムを分けまして、結果的に見ますと  $2.7 \times 10^6$  個の $^{10}\text{Be}$ が含まれます。1 g の岩石から見ますと  $2.7 \times 10^5$  乗個ということになります。この場合は別の起源で $^{10}\text{Be}$ が入っているわけです。もしこれが地表の岩石だとしますと、 $2.7 \times 10^5$  個になりますから、先ほどの毎秒6個ずつできるということ、それから雲仙では高さが高いためにだいたい地上の4~5倍の生成率になるかと思いますが、それで割り算しますと数千年という年代になると思います。そういう年代だったらだんだん測れるという、そんなところになってきています。



OHP-9



OHP-11

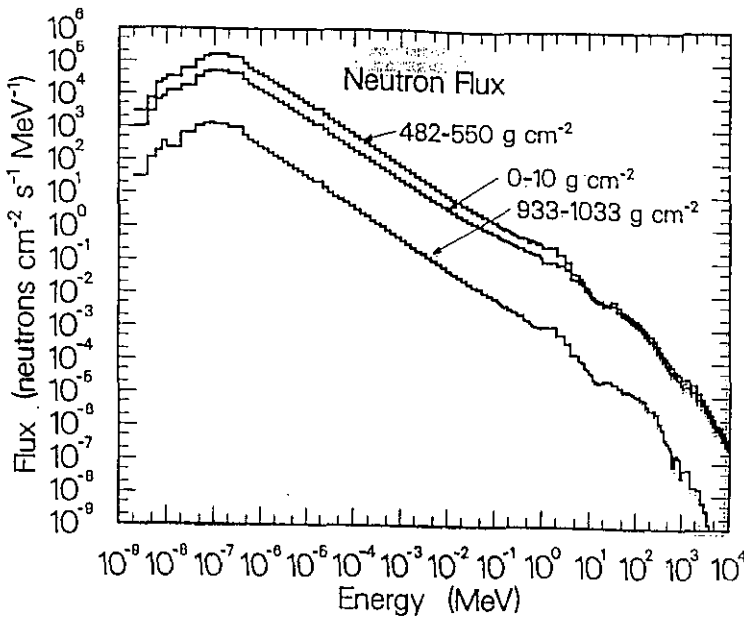
イオン化効率 (Middleton )

- BeO<sup>-</sup> : 1.8%, BeO+Ag
- C<sup>-</sup> : 9%, graphite; 7.7%, CO<sub>2</sub>
- Al<sup>-</sup> : 0.25%, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+Ag
- Cl<sup>-</sup> : 16%, AgCl
- CaH<sub>3</sub><sup>-</sup> : 0.2%, CaH<sub>2</sub>+H<sub>2</sub>
- など

OHP-10

【OHP-10】実はやはり非常に量が少ないということがハンディキャップであります。例えばBeのオキサイド、こういうものを加速器から負イオンとして出して、そして分解してBe<sup>3+</sup>として加速して測るわけですが、このイオン化効率というのが避けて通れない部分です。これが1.8%とBeの場合少ないわけで、100%後ろでカウントしても100個入れて2個というように非常に少ない。先ほどの場合でいいますと、さらにイオン化したもののだいたい3, 4%位しかカウントしていません。また加速器自体にいろいろ問題がございます。これを少なくとも3倍、4倍くらいにはできるはずでありまして、非常に短期的にはそういう効率が実現しておりますので、先ほどよりもさらに感度のいい測定はできるはずで、カーボンの場合ですとこ

れが 10% に近づいておりますから、はるかによい。はるかにといっても 4, 5 倍の感度の良さです。アルミニウムですともっと少ない、塩素ですとこれがさらに高い、そういうような特徴がありますので、そういうことも見ながら、どういう風にこういう岩石の中にできた宇宙線生成核種を利用して仕事をするか目安をつけることができるように思います。



OHP-12

だこのスペクトルの形としてはそれほど変わらないという状況もあって、だいたい宇宙線生成核種に寄与する核種のエネルギーの重要なところは 100 MeV、 $10^8$  eV 位までの核反応断面積が重要な寄与をします。

【OHP-13】式で書くのはなんですが、何が大事かといいますと、ターゲットの組成です。それと宇宙線のスペクトル、これはだいたい決まっていますから、ここからこのターゲットと粒子のスペクトルによって決まるいわゆる核反応断面積、一種のできやすさ、そういうのを計算する必要があります。

【OHP-14】それを求めてみますと、例えば  $^{10}\text{Be}$  の場合ですと酸素が 95% 位占めています。それから Mg、Si、Al こういうものが少しずつ影響してるわけです。それぞれの核種で非常に主要なターゲットというものがあって、 $^{36}\text{Cl}$  の場合ですと K、そういうようなことになります。このような、それぞれのものからどういうふうにしてできるかということはある程度見ておきませんと、いろんなデータの解析で矛盾点が出てくるようなときにそれを解釈するのが難しいわけです。

私は原子核研究所という場所にいる性格上、特に、宇宙線に相当するエネルギーの粒子からどんな粒子がどれくらいできるかというようなことをずっとやっております。

【OHP-11】これは少し専門的な話になりますけれども、宇宙線というのは地球の近傍ではこのようなエネルギースペクトルを持っていて、だいたい平均でいいますと  $2 \times 10^9$  eV 位のエネルギーを持っています。これは太陽活動とともに多少上下しますが、こういうようなスペクトルです。【OHP-12】これが地球の大気に入りますと、中性子をたくさん出します。これは計算値ですが、こういう風にエネルギーの高いところは非常に少ないですが、エネルギーの低いところは増えてきます。た

#### Nuclide Production Rate ( surface )

$$P = \sum_i N_i \sum_j \int \sigma_{ij}(E) F_j(E) dE$$

where

$N_i$  : abundance of the  $i$  th element

$\sigma_{ij}(E)$  : cross section as a function of energy for producing the nuclide from element  $i$  with particle  $j$

$F_j(E)$  : differential flux of particle  $j$  at energy  $E$

$j$  : n, p,  $\mu$

$\rightarrow k(E+60)^{-2.45}$

OHP-13

$$P(^{10}\text{Be}) = 10.87[\text{O}] + 0.52[\text{Mg}] + 0.39[\text{Si}] + 0.45[\text{Al}] + 0.16[\text{Fe}]$$

$$P(^{14}\text{C}) = 31.3[\text{O}] + 5.3[\text{Mg}] + 4.2[\text{Al}] + 4.3[\text{Si}] + 1.2[\text{Fe}]$$

$$P(^{26}\text{Al}) = 225[\text{Al}] + 77[\text{Si}] + 0.15[\text{Fe}]$$

$$P(^{36}\text{Cl}) = 129[\text{K}] + 65[\text{Ca}] + 16[\text{Ti}] + 0.9[\text{Fe}]$$

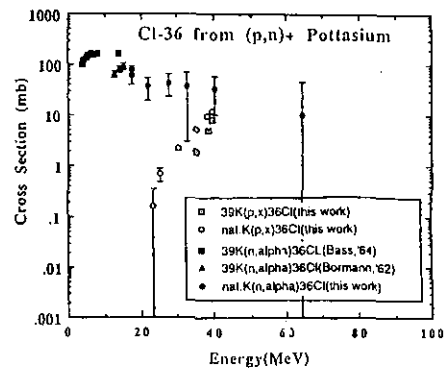
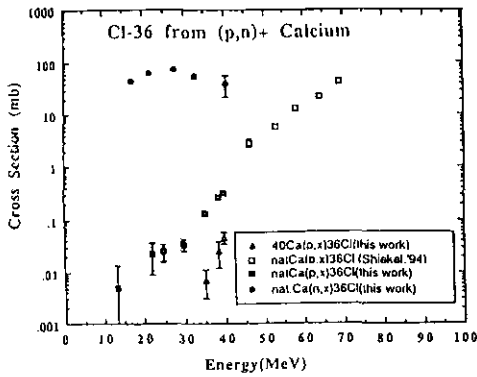
$$P(^{21}\text{Ne}) = 98[\text{Na}] + 131[\text{Mg}] + 65[\text{Al}] + 39[\text{Si}] + 4[\text{Ca}] + 0.20[\text{Fe}]$$

$$P(^3\text{He}) = 135[\text{O}] + 116[\text{Mg}] + 107[\text{Al}] + 111[\text{Si}] + 61[\text{Ca}] + 40[\text{Fe}]$$

after J. Masarik and R. C. Reedy ('96)

OHP-14

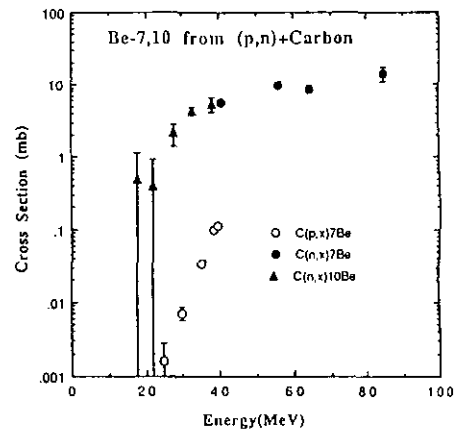
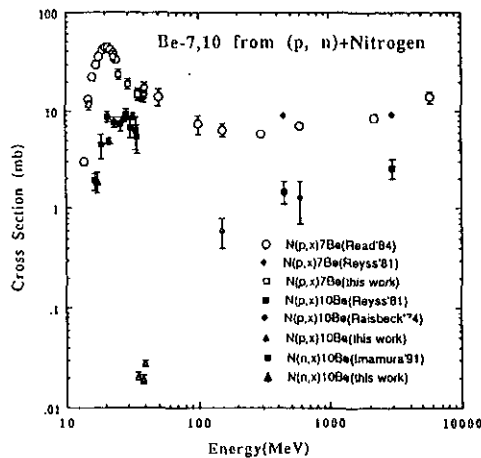
【OHP-15】。私が自分でやらなくても、このようなそれぞれのエネルギーに対して、中性子ですと $^{36}\text{Cl}$ だったらCaからこういうふうにできる、それからKの



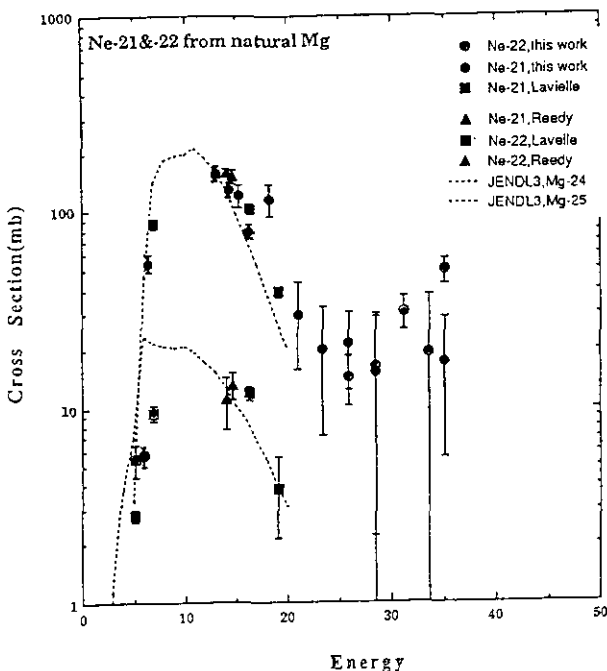
OHP-15

場合ですとこれは人のデータですがこういうことになっています。プロトンの場合だったらこのような。そういうことをいろいろ測っているわけでありまして、これらをうまく基本的なスペクトルと足しあわせると、【OHP-16】つなぎ合わせますといろいろな核種でどれくらい、それぞれ何ができるかというようなことがわかってくるわけでありまして。

【OHP-17】例えばNeみたいな非常に安定な核種についてもこういうことをして安定な核種も含めていろいろ議論すると、それだけ研究の手法が広がってくるわけです。



OHP-16



OHP-17

【OHP-18】このようなわけで、最近はこのように主要な宇宙線生成核種、それからターゲットについて、各計算値だとか、それに対応するいろいろな測定値などがいろいろな人によって求められてきています。ですから、例えば石英ですと、こういうふうにだいたい数値が固まっていますから、石英の中にできた $^{10}\text{Be}$ の量を測って、その個数をグラム単位当たりで示します。例えば6万個できていれば、これを6で割り算して1万年である。そういうようなことができるわけです。

【OHP-19】もちろん、こういうでき具合というのは地上からの高さに依存します。先ほどの海水面での値にしてありますけど、実際には高いところであれば、例えば3~4 kmですと大きくなるわけで、こういうふうにとどんどん増えてきます。この形は実際にはほとんどかわらなくて、ただ単に平行移動したような形でできますので、あるいはこの計算、そういう年代の

Calculated and measured production rates of cosmogenic nuclides at the Earth's surface at sea level (atmospheric thickness of  $1033 \text{ g cm}^{-2}$ ) with no geomagnetic cutoff and calculated and measured e-folding lengths ( $L_e$ ) below the surface.

Nuclide	Target	Production rate atoms $\text{yr}^{-1}$ (g-target) $^{-1}$		$L_e$ g $\text{cm}^{-2}$	
		Calc. <sup>a</sup>	Measured	Calc. <sup>a</sup>	Measured
$^3\text{He}$	$\text{SiO}_2$	124.		158	
$^{10}\text{Be}$	$\text{SiO}_2$	5.97	6.0 [35,36], 6.4 [37]	157	145 [38], 159 <sup>b</sup>
$^{14}\text{C}$	$\text{SiO}_2$	18.6	20 [39]	162	
$^{21}\text{Ne}$	$\text{SiO}_2$	18.4	21 [40]	167	179 <sup>b</sup>
$^{26}\text{Al}$	$\text{SiO}_2$	36.1	36.8 [35,36], 41.7 [37]	158	156 [38], 166 <sup>b</sup>
$^{36}\text{Cl}$	$\text{CaO}$	46.2	54 [41], 52 [42]	158	
$^3\text{He}$	basalt <sup>c</sup>	105.	107 <sup>d</sup> [43], 109 [44], 115 [45]	158	159 [46], 165 [47]
$^{21}\text{Ne}$	basalt <sup>c</sup>	41.1	45 [44]	167	165.5 [46]

<sup>a</sup> Does not include any muon contributions.

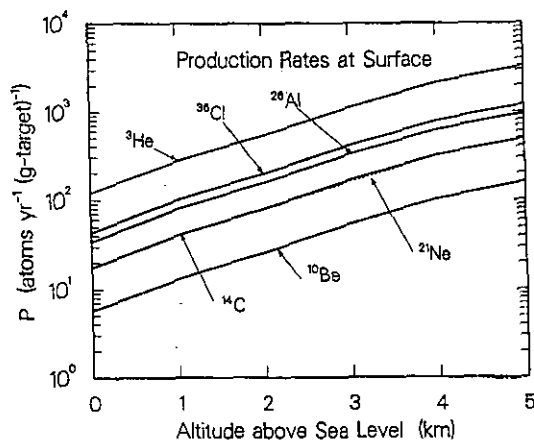
<sup>b</sup> K. Nishiizumi, J. Poths, et al., Personal communication, 1993.

<sup>c</sup> Calculations done for Fo<sub>81</sub> olivine (41.9% O, 25.8% Mg, 18.4% Si, and 13.9% Fe).

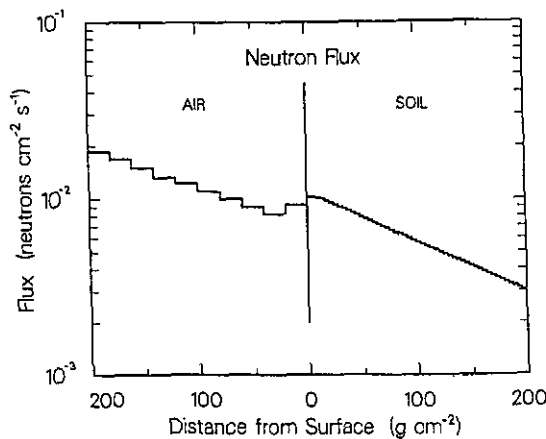
<sup>d</sup> From the reported value of 97 for 37°N geomagnetic latitude using the geomagnetic latitude correction factors of [1].

Masarik & Reedy '95

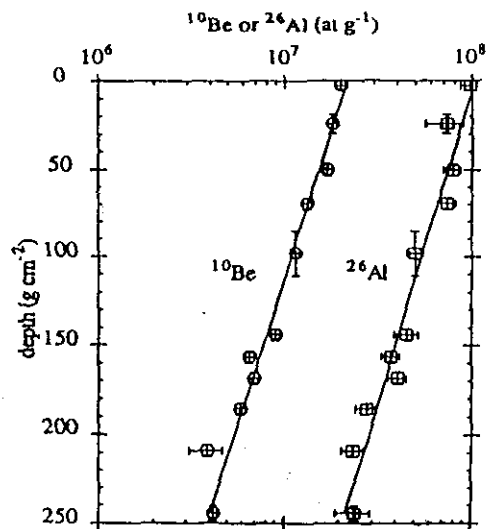
OHP-18



OHP-19

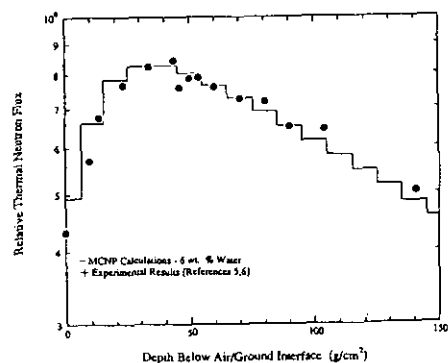


OHP-20



$^{10}\text{Be}$  and  $^{26}\text{Al}$  in quartz (E. T. Brown et al 92)

OHP-21



OHP-22

仕事でいいますと難しくありません。【OHP-20】それから、もう一つ気をつけないといけないのは、地中に入った宇宙線というのがありますが、それはやはり減衰してゆきます。だいたい大気の深さによって減衰するのと似たような形ですが、こういうふうには土の中で、ほとんど指数関数的に減衰いたします。だいたい半分になるのが  $110 \text{ g/cm}^2$ 、これくらいの厚さです。

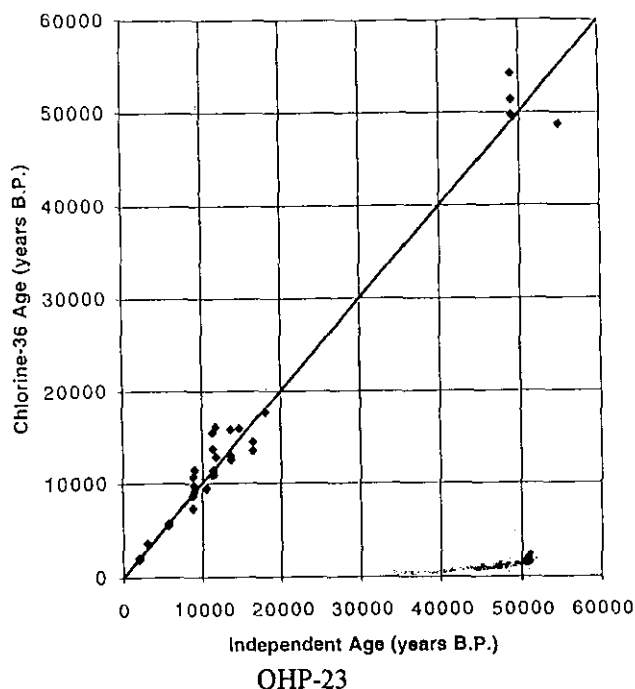
【OHP-21】こういうものに対してどれくらい減衰するのか、実際にはいろんな実測値があるわけで、これはフランスのグループのデータであります。

【OHP-22】それから、熱中性子という成分がありますが、こ



これは非常にエネルギーの低い、0.002 eV程度のサーマルの成分ですが、それについて非常に特徴的なのは地下に入りますとぐっと増えて減衰する、こういう形を取ります。例えば $^{36}\text{C}$ 1が中性子を捕獲すると $^{36}\text{C}$ 1ができますけれども、そういうデータを解釈するときは、こういうことをきちんとおさえながらデータの解釈を行わないといけないわけです。

Phillips et al.



【OHP-23】実際にこういう研究というのは、これはまだ揺籃期といいますか、研究としてはほとんど始まったばかりですので、まだ基礎的なデータだけがありまして、応用としてはそれほどまだたくさんのデータが出ているわけではありません。例えば、これは $^{36}\text{C}$ 1を測りまして、年代値を実際のほかの例えば $^{14}\text{C}$ の年代などと比べたデータです。かなり一致しているようで、よい結果が得られております。

【OHP-24】応用例としては、年代というのは非常に単純な例でありまして、これの非常に具体的な例としては、例えば Meteor Crator というのがあります。これはやはり Nishiizumi さんのデータからですけれども、いわゆるアリゾナのクレーターですね、その中からこのボーリングされた大きな岩ですが、【OHP-25】こういうものの表面のたとえばゴールドーという大きなロックを、このようなところを掘り出して測ったわけです。これをベリリウムとアルミニウムで測定した年代と、これは $^{36}\text{C}$ 1、これは別のグループが $^{36}\text{C}$ 1を使って得たデータをプロットしたものであります。この Meteor Crator のデータ、昔は確か2, 3万年といわれていた、確か私が二十数年前行ったときは2, 3万年と書いてあったものですが、最近はこの5万年という値が書いてあります。

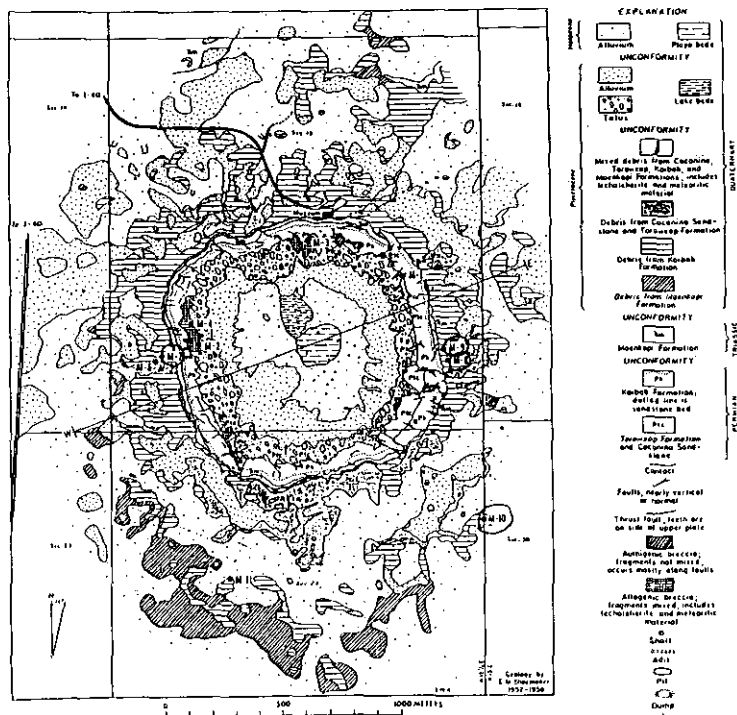


FIG. 1. Geological map of Meteor Crater, Arizona (Stoemaker, 1963), showing locations of samples M-1 through M-11.

OHP-24

有効であろうと考えられます。例えば、氷河の年代としてよく使われるのが氷河が後退した時期で、【OHP-27】これはちょっと見にくい図ですけれども、例えば氷河がずうっと下がっていき

【OHP-26】非常に概念的な話ですが、地球の地形がありますと、その中では、例えば高地に行きますと氷河の運動があつて、それから斜面ではいわゆる浸食、エロージョンという現象がありまして山が削られていきます。それが削られたものが堆積して、こういう作用が変移するわけです。一方でそういう変移してゆく中ではある種の輸送現象というものがあるわけで、そういうことを調べるためにはこういう今の表面の宇宙線照射年代を、宇宙線生成核種を測ってその年代を調べてゆくことは非常に

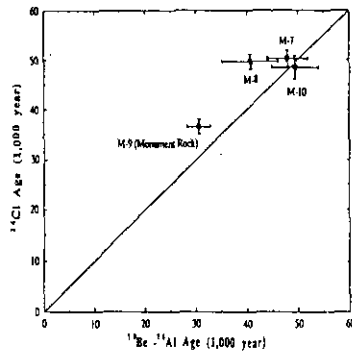
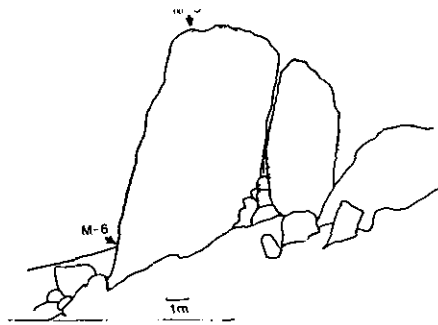
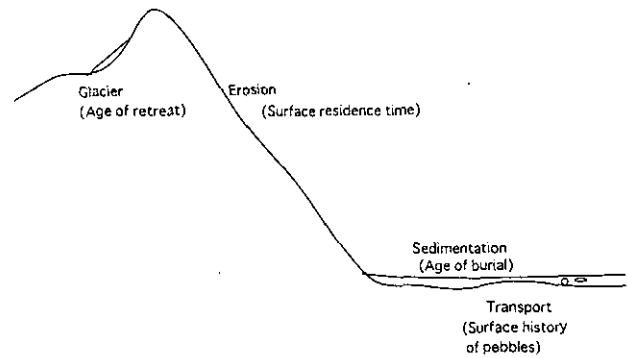


FIG. 3. The  $^{14}\text{C}$  ages of Phillips et al. (1991) are plotted vs. the  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$  ages for M-7 to M-10 discussed in this paper. Samples M-7 to M-10 correspond, respectively, to  $^{14}\text{C}$  samples MC-5, 1, 2, and 4.

Nishiizumi et al. 1991



### OHP-25

まずとそれがモレーンを残してどんどん後退してゆくわけです。そういう後退する面に沿ってサンプリングしてゆきますと、どの時代にどれくらいまでの氷河があったのかということがわかるわけで、氷河の運動についての情報が得られます。

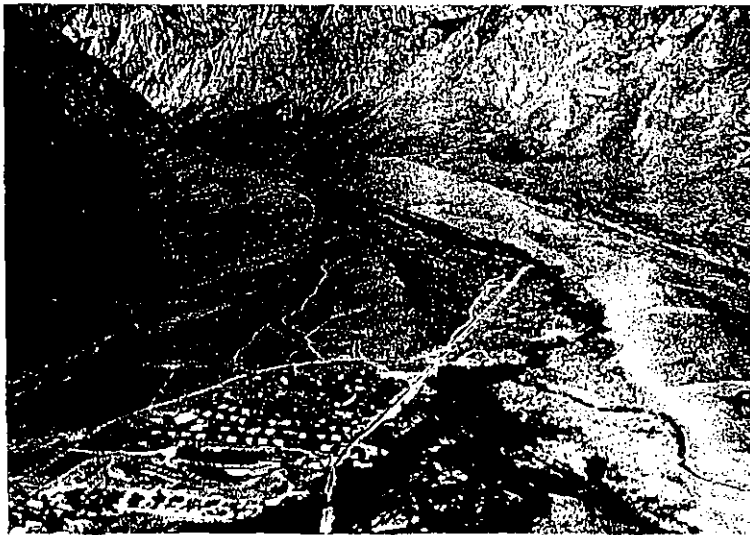


Figure 4. Oblique aerial photograph of the glacial moraines at Pine Creek in eastern California, showing the locations of boulder collection. Sample numbers correspond to data in Table 1.

K. Nishiizumi et al.

*Earth Surface Processes and Landforms*, Vol. 18, 407(1993)

### OHP-27

比べて少なくなるのでこう上がってくるわけです。例えばエロージョンが非常に少なければこういう値ですが、前言ったように1年間に  $10^{-5}$  cm位ですとまあこういうような、ということだ

### OHP-26

【OHP-28】それからエロージョンというものは、これは先ほどは年代ということで申しあげましたけれど、もし表面がずっと長い間ありますと、これは定常的な値になります。これはやはり Nishiizumi さんのデータで、南極の山の表面の岩を測ったデータであります。例えばほとんどサチュレーションになっているとしますとだいたいこの辺にきます。それが、もしエロージョンが存在しますとこういうふうに値がずれてきます。これは  $^{26}\text{Al}$  に対する  $^{10}\text{Be}$  比というのが変わってくるわけで、そのために例えば  $^{10}\text{Be}$  が何もエロージョンが起きないときに比

Surface History of Antarctic Rocks (Nishiizumi et al. '94)

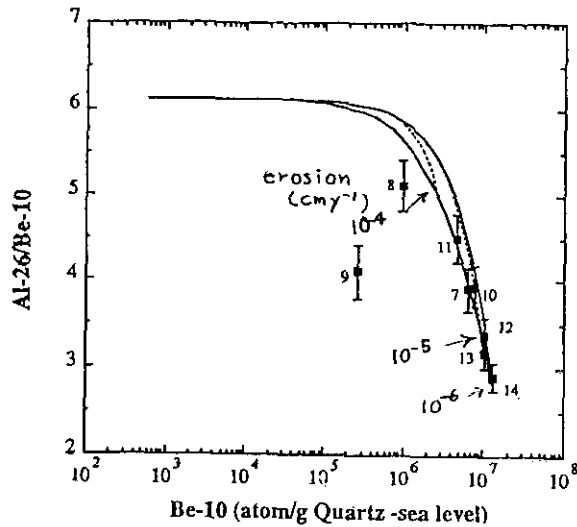


Figure 3.  $^{10}\text{Be}$  concentrations (normalized for atom/g quartz at sea level) plotted against  $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be}$  ratios for Sör Rond from Antarctica (from Nishiizumi et al.; 1991a; see this reference for numbers which refer to different sample

OHP-28

いたいこのようなエロージョンの速度としては、南極の場合は  $10^{-4} \sim 10^{-6}$  の間の浸食速度になります。ただ、こういうちょっとはずれたデータがあるというのは原因があるに違いないと思われれます。これは一つは、ある時期に雪がかかってそのために遮蔽をされた、そういうようなことがありますとこの比はこちらに動くことになりますので、こういう違ったデータができることになります。これはAlとBeの場合ですけれども、いくつかの核種を組み合わせますとさらにもっと時代的な情報が得られると思われれます。

【OHP-29】これも、やはり Nishiizumi さんのデータからとったものですが、これはサハラ

の砂とかそれぞれ砂漠の砂、あるいはこういうレスといわれる非常に細かい粒です。そういうもの

の見かけ上の年代を測りますとこういうふうに差がでてきます。普通は必ず $^{10}\text{Be}$ から得たものが $^{26}\text{Al}$ で得たよりも高くなるわけです。ちょっとこういうのは単純なエラーかもしれませんが、一般的にこのような差を、あるいは絶対値を見ることによってこの砂が実際上どれくらい表面に存在したか、砂の動きとかそういうものを追ってゆくことができるわけです。同様なことは、例えば川底とかあるいはそういうところに隠れている小石などを調べれば、そういうものがどういう運動をしてきたかということがわかるでしょうし、また別にこういう堆積によって隠れた過去の照射の記録を調べることによってどういう堆積の現象が起きているかなどもわ

Table V. Cosmogenic nuclide accumulations in selected sand (paper in preparation) and loess samples

Site	Measured concentrations ( $10^6$ atom/g $\text{SiO}_2$ )		Effective exposure ages (ka)	
	$^{10}\text{Be}$	$^{26}\text{Al}$	$^{10}\text{Be}$	$^{26}\text{Al}$
<b>Sand</b>				
Ogolien, Sahara	$0.42 \pm 0.02$	$1.78 \pm 0.13$	100	70
Ogolien, Sahara	$0.43 \pm 0.03$	$1.70 \pm 0.07$	105	70
Modern Dune, Sahara	$0.45 \pm 0.02$	$1.63 \pm 0.06$	110	67
Gran Desierto, Mexico	$0.41 \pm 0.02$	$1.99 \pm 0.13$	71	58
Gobabeb, Namibia	$0.56 \pm 0.03$	$1.18 \pm 0.03$	105	36
<b>Loess</b>				
Banks Peninsula-1 New Zealand	$0.05 \pm 0.01$	$0.30 \pm 0.10$	9	9
Banks Peninsula-4 New Zealand	$0.04 \pm 0.01$	$0.55 \pm 0.07$	7	15
Kaiserstuhl Germany	$0.03 \pm 0.01$	$0.40 \pm 0.15$	4	9

K. Nishiizumi et al.

Earth Surface Processes and Landforms, Vol. 18, 407(1993)

OHP-29

かるだろうということです。

【OHP-30】非常におおざっぱな話になりましたけれども、お話ししましたようないわゆる岩石中で、外でできたその場生成といいますか、そういう宇宙線生成核種を測ることによって一つは年代測定、こういうものを年代測定することができる、こういう考古学の応用みたいにつなげることができます。

それからもう一つは土地の浸食や堆積、あるいは場合によっては隆起だとか沈降という地球的、ローカルでも起きますけれども、そういう現象に伴う宇宙線生成核種の蓄積とか変化などを

調べて、地形変化に対する定量的なモデルというのが可能であると考えられます。それは可能でありますので、いずれそのような細かい議論がそのうちに始まってくるだろうと思います。

それから他の年代測定、 $^{14}\text{C}$ もそうですね、希ガス、それらの組み合わせでいろいろ温度の情報を組み入れたような、そのような地球表層の変化、それ全体を追ってゆくような研究が可能になるだろうと思います。

以上、ちょっと時間がオーバーしましたけれども、私のお話を終わらせていただきます。

まとめ及び展望

- In-situ 宇宙線生成核種による年代測定が可能
- 土地の浸食・堆積、隆起・沈降等が宇宙線生成核種の蓄積に反映されるので地形変化に対する定量的なモデル化ができる。
- 他の年代測定法との組合せで多彩なアプローチが可能である。

OHP-30

# The Erlangen AMS Facility and its Applications in Interdisciplinary Research

Prof. W. Kretschmer  
Univ. Erlangen, Germany

Before starting my talk, I would like to thank Prof. Suzuki and also Dr. Shibata for the invitation to participate in this special symposium on the occasion of opening the AMS facility. I wish this facility much success. I apologize that I cannot talk in Japanese.

The Erlangen AMS Facility and its Applications  
in Interdisciplinary Research

W. Kretschmer  
University of Erlangen, Germany

I. Introduction

II. The Erlangen AMS facility

- sputter ion source
- fast isotope switching
- EN tandem accelerator
- electric and magnetic deflection
- stable isotopes  $\Rightarrow$  position sensitive Faraday cup
- radioisotopes  $\Rightarrow$   $\Delta E$ -E gas detector
- sample preparation

III. Applications

- $^{14}\text{C}$ : archaeology, environmental research, geology
- $^{87}\text{Sr}$ : fast detection in case of nuclear accidents

IV. Summary and outlook

## OHP-1

on Tandetrans and small tandems, and some new AMS facilities, like Groningen Netherlands, Kiel Germany, and Vienna Austria.

This slide shows a schematic picture of the Erlangen AMS facility, which we have built by ourselves. Here is the ion source, where the radioactive ions as well as stable isotope ions are produced, for example carbon 12, carbon 13, and carbon 14. The negative ions are injected into the tandem, and for the beam transport we have, from the injection magnet up to the analyzing magnet, only electrostatic elements for all three isotopes to have the same ion optics. We inject the different carbon isotopes by applying high voltage onto the chamber of this injection magnet. The negative ions are accelerated to the terminal, where charge exchange takes place at the voltage of 5 MV. The most frequent charge state 4+ is selected in an electrostatic 15 degree deflection and the mass separation is performed by this 55 degree magnet used for

First I want to show where I'm coming from. This is middle Europe, you may know Munich, and Erlangen is about 200 km north of Munich. I want to discuss our Erlangen AMS facility including the sample preparation, show some selected examples of its applications, and give a summary of the results. Due to the introduction by Professor Nakamura, I can skip almost all of the introduction, and I want to start with a list of AMS facilities in Europe. First there are facilities based on EN tandem accelerators which have been used for many years for nuclear physics and have now switched to AMS. Then there are some facilities based

carbon. Carbon 14 is detected in a gas ionization chamber, carbon 13 and carbon 12 in Faraday cups. From the isotope ratio the age of the sample can be deduced. For heavier ions like Strontium-90, we use the high resolution 120 degree magnet. This slide shows the principle of our ion source. Cesium vapor is ionized to  $\text{Cs}^+$  at a spherical electrode made from Tantalum which has a temperature of about 1100 Celsius. As the computer simulations show, the  $\text{Cs}^+$  beam is focused to the sample by a potential difference of 5 kV between ionizer and sample, the sputtered negative carbon ions are extracted into the opposite direction by the same potential difference.

This shows our 30 ms cycle for fast isotope switching. The injection magnet is adjusted to mass 14, for 28.5 ms carbon 14 is injected. If we increase the kinetic energy of the particles by applying a 1 ms high voltage pulse of about 4.4 kV to the deflection chamber, carbon 13 is injected, and a further increase of the kinetic energy by a subsequent 0.2 ms high voltage pulse of 9.2 kV results in the injection of carbon 12 into the tandem beam line.

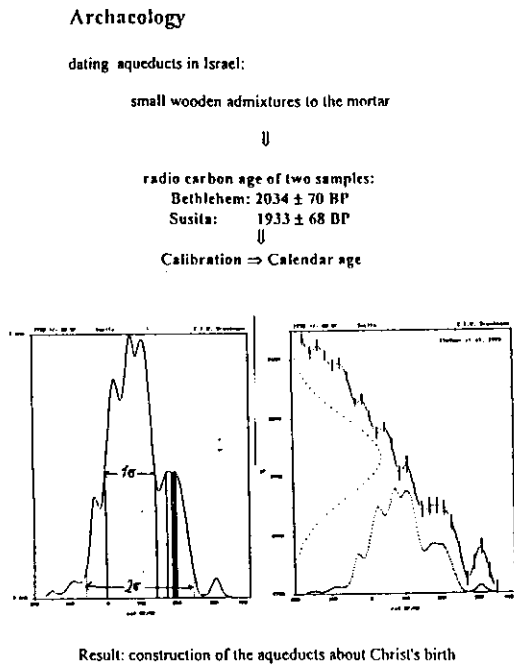
This shows a  $\Delta E - E$  spectrum of a sucrose calibration standard, which is 150 % modern. You see here the energy loss in the gas detector versus the remaining energy of the ions, this peak shows the carbon 14 events, and in the lower half of the picture the same is shown for a graphite sample. In just ten minutes run, we have 42,000 counts for the calibration sample containing modern carbon compared to only 22 counts for the graphite sample, which represents the background of the facility corresponding to an apparent age of the graphite of 58,000 years.

For the conversion of a sediment sample to a sputter target, we first apply the usual AAA treatment, which means acid - alkali - acid. In this way both the carbonates and humic acids, which may obscure the dating result, are removed. The remaining material is centrifuged, dried in an oven, combusted by copper oxide to  $\text{CO}_2$  at 900 C and then reduced to carbon with hydrogen and iron as catalizer at 625 C, the resulting graphitized carbon is very well suited for sputter target giving high negative ion currents.

Especially for sediment samples, we also tried to date pollens, which should be representative for the age of a layer. The procedure is schematically shown here. Due to the limited time I cannot discuss too much details. We select a fraction between 20 and 100 micrometer by appropriate sieving and treat it repeatedly with sodium hydroxide and hydrochloric acid at 80 C. The fraction larger than 20 micrometers contains pollen, but it can also contain sand. Sand is then dissolved by 40% hydrofluoric acid. Cellulose, which can also be in this fraction, is removed by

sulfuric acid. The remaining material predominantly consists of pollen, which are inspected under the microscope with the result shown here. If it looks quite pure, then we oxidize it to CO<sub>2</sub> and reduce it to produce the sputter target.

I will show some examples for measurements:



Some examples from archaeology (OHP-2). From aqueducts in Israel we extracted small wooden admixtures to the mortar. We get a radiocarbon age for two samples from Bethlehem and Susita, about 2000, and if we apply the calibration curve, like this here, by Stuiver et al., we get a probability distribution for the calendar age. For a one sigma standard error we end up with the age of between Christ's Birth and 140 AD, and so the construction of the aqueducts was Roman. Another example is shown here. The influence of the Romans in southern Germany was considerable. For example, for the reconstruction of old

### OHP-2

trading streets, we did the excavation (two meter depth and 8 m length) of an old street covered with thick wooden slices located in a moor site close to Murnau, 60 km southwest of Munich. Close to this site there is a farm house from 1100 AD which rises the question whether the street was Roman or medieval. The result of our AMS measurement is 1835 ± 38 BP corresponding to a calibrated age of 130 to 220 AD, which means that the trading street is of Roman origin.

Now I show another application of C-14. We had a project with an expert for tropical trees. Growth rate of tropical trees is important due to the worldwide deforestation. The standard method for the determination of growth rate would be just tree ring counting and measurement of the diameter, but due to the absence of regular summer/winter seasons tropical trees usually have no tree rings. Only in some regions with periodical severe dry seasons or long inundation phases trees form some periodical structures. But it's not clear whether these structures are annular structures or not. Here I show some examples. Look at the example 11 and 12. As just the same sort of tree, tree number 11 is in a light stand where enough light comes in. This forms some regular structures, but the other tree of the same sort

(No.12) is in dense stand and it shows not such structures, and therefore it is quite difficult to determine the growth rate. As an alternative to tree ring counting we use the carbon 14 peak of the '60s as a tracer. Due to the nuclear bomb tests, the carbon 14 concentration reached a maximum around 1963. We determined the carbon 14 content, and compared it with the carbon 14 curve of air samples from southern hemisphere.

So another two examples. Here we had a Leguminosae tree from the region of River Amazon. It was roughly predated by structure analysis. Our AMS data show an increase of about 60 to 70 % due to the nuclear bomb peak after 1960. From a comparison with the atmospheric  $^{14}\text{C}$  concentration of the southern hemisphere a shift of this predating by about two years has to be applied, which enables a calibration accuracy of  $\pm 1$  year for the different layers of this tree. Another example, shows AMS data of an Ayous tree from Cameroon, Africa, where again from the steep increase of  $^{14}\text{C}$  concentration the calibrated age could be very well determined.

Now we will talk about some sediment samples. This is interesting since after the end of last glacial period, the temperature raised by about 10 degrees in our region, and now it is interesting how the vegetation in southern Germany evolved from just a few species to this huge variety we have now. In a collaboration with Dr. Kuester, University of Munich, we investigated several sediment cores from bog sites in Bavaria. From a simultaneous determination of pollen distributions and of the absolute age of the core layers one can deduce the vegetation history. Now the sediment samples. Here I will present the results for three sediment cores from Lake Starnberg, Lake Chiemsee and one close to Oberammergau. For the Lake Chiemsee core we have dated three fractions, one bulk sediment, second pollens, and another fraction larger than 100 micrometer. The calibrated calendar age shows an increase vs. depth, and we have agreement here among three fractions which gives us confidence about the calibrated ages. This sediment sample starts at four meter depth, since above there are three meter fifty water and another fifty centimeters soil. The pollen distributions determined by our collaboration partner are shown below for pine, hazel and beech. The pine pollen exhibit a sharp increase at about the age of 12000 BC, hazel and beech like warmer climate, and they came up at 8000 BC and at 2500 BC, respectively. For another profile north of Lake Starnberg we have the same findings for the subsequent pollen. So this is one of our projects to determine the age of different layers of sediment cores, and look how the different pollens evolved as a function of time.



## II. $^{90}\text{Sr}$ - Measurements

Fast quantitative detection of  $^{90}\text{Sr}$  by direct counting

$^{90}\text{Sr}$ :  $T_{1/2} = 28.5 \text{ a}$   $E_{\beta} = 0.5 \text{ MeV}$   
stored in bones!

measure isotope ratios  $^{90}\text{Sr}/^{88}\text{Sr} \approx 10^{-8} - 10^{-10}$

### Problems:

- no stable Sr (but stable  $\text{SrF}_2$ : 200 nA)
- high resolution analyzing magnet required
- isobar nucleus  $^{90}\text{Zr}$  !!

↪ possible solutions:

- high quality chemical separation → \*
- measurement of stable Zr isotopes → detection of  $^{90}\text{Zr}$  content
- gasfilled analyzing magnet → separation according to  $Z_{\text{nucl}}$ . possible
- ████

\* collaboration with Prof. Knöchel (Hamburg)

### OHP-3

zirconium-90. So some possible solution for this zirconium problem is to use high quality chemical separation, and this is what we have done together with Professor Knoechl from Hamburg, a radiation chemist. Alternative solutions would be the use of a gas filled analyzing magnet or the measurement of stable zirconium isotopes, which can be used to deduce the zirconium-90 content.

Now we use  $\text{SrF}_2$ -compound with the negative  $\text{SrF}_3^-$  ion as the most abundant peak after the ion source. We use a terminal voltage of 5 MV with the most frequent charge state 8+. Here we have  $\Delta E$ -E spectra for a blank, for three calibration samples of a known amount of Sr-90. If we subtract the background determined from the blank we have agreement with the expected values for the calibration samples within the errors. This demonstrates that we can directly measure strontium isotope ratios down to  $10^{-9}$ .

Now I summarize the status of our AMS-facility and what we will do in future. With our high current ion source we can obtain negative ion currents up to 150  $\mu\text{A}$  carbon 12 with the terminal voltage of 5 MV and charge state 4+. We use fast isotope switching as I have shown before. Particle transmission is up to 80 % and we have a count rate of about 100 Hz for such a 150 pMC calibration sample for 25  $\mu\text{A}$   $^{12}\text{C}$ . For the machine background we obtain 0.07 pMC corresponding to 58000

Now I show a completely different application. We also measured Sr-90 which is a quite dangerous nucleus due to its half life of 28 years and its incorporation into bones. In a nuclear accident, like Chernobyl accident, Sr-90 might be emitted into the air, and since it is time consuming to detect it conventionally, we tried to measure it directly by counting, using our AMS-facility. The aim of this project was the measurement of the isotope ratio, Sr-90 vs Sr-88, in the range of  $10^{-8}$  to  $10^{-9}$ . But there are some problems: There is no stable negative Sr ion, so we had to look for  $\text{SrF}_2^-$ . Second, a higher resolution analyzing magnet is required since the relative difference in mass is much smaller compared to carbon. The other difficulty is the isobar

#### IV. Summary and outlook

##### Status

1. ion source current:  $\approx 150\mu\text{A }^{12}\text{C}$
2. terminal voltage 5MV, charge state 4<sup>+</sup>
3. fast isotope switching:  $^{12}\text{C}$ : 1.2ms ;  $^{13}\text{C}$ : < 0.4ms ;  $^{14}\text{C}$ : 28ms
4. particle transmission up to 80%
5.  $^{14}\text{C}$  count rate 100Hz for ANU sample and  $25\mu\text{A }^{12}\text{C}$
6. machine background:
  - 0.07 PMC  $\leftrightarrow$  58ka (untreated graphite sample)
  - 0.6 PMC for chemically treated sample

##### Main research project

Dating of sediment cores from southern Germany

##### Future plans

1. installation of a new injection system:
  - 90° electrostatic analyser
  - 90° magnetic analyser
2. new source for element analysis  $\leftrightarrow$  SIMS AMS

years for an untreated graphite sample and 0.6 pMC for a chemically treated sample. Our main research project right now is dating of sediment cores from southern Germany. For future plans, next month we will install a new injection system with an electrostatic analyzer in addition to the magnetic analyzer. A new injection magnet of higher magnetic field is good for even heavier ions. As a new project, we want to apply for a new source for SIMS-AMS, which can be used for detection of elemental analysis, e.g., for the detection of impurities of semiconductor material. The upper and lower picture just show us the high potential of the AMS for the detection of impurities of semiconductor material. Here silicon is

investigated by extracting negative secondary ions. Before the tandem accelerator you see a lot of molecular background resulting in lower detection limits of about  $10^{-4}$ , and if one looks after acceleration and magnetic and electrostatic analysis the molecular background is removed and detection limit of  $10^{-8}$  and better can be achieved for the same sample. Lots of elements can now be identified: Cu, Ni, Fe, Ga, Se and so on. Therefore AMS offers a very strong method for elemental analysis. This shows the schematic view of the new injection system. We put here electrostatic deflector which can be switched. Our old AMS source is here and a new ultraclean source for elemental analysis will be placed here. Ultraclean means that first the Cs beam has to be cleaned by a Wien filter so that we investigate impurities in the sample and not in the Cs. And lastly I will show our team, collaborators shown here.

Thank you for your attention.

# 炭素循環解明に向けての加速器質量分析法の応用

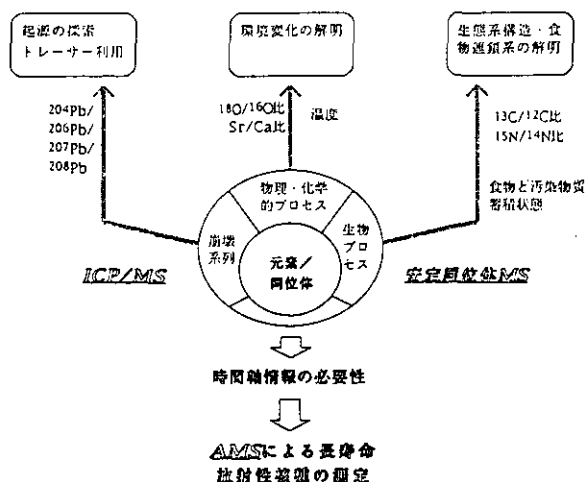
国立環境研究所地域環境研究グループ  
森田昌敏

本日はオープニングをしようというのでこの会を催しました。今日お配りしましたパンフレットはこんな形になっていますが【OHP-1】、この加速器質量分析の装置が導入された経緯、それから私たちが現在何を目標しているかをご紹介しますと思います。



OHP-1

環境研究における元素/同位体比測定の系統

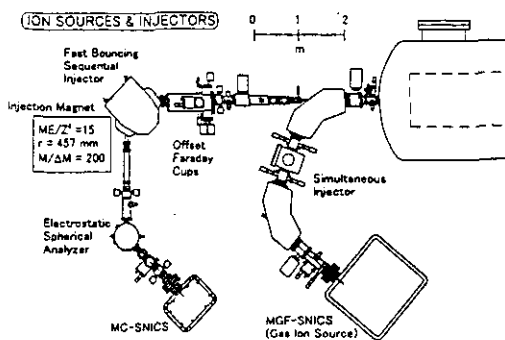


OHP-2

ここでは「地球をはかる」となっておりますけれども、私どもの研究の発展の過程でどうしても加速器MSの方に展開をすべきだという一つのロジカルなものがありました【OHP-2】。従来環境の研究は、ICP質量分析法を使った同位体比の測定、もちろんそれ以外にサーフェスアイオナイゼーションMSもありまして、元素の同位体比の精密測定をここでやってきました。それから又、もう一方では炭素13と12の比を安定同位体MSをつかって、これはガスアナライザーですが、これによって生態系の構造を調べるような研究をやっていたわけです。けれども、時間軸情報に関する情報がどうしても足りないということで、それが加速器MSを導入しようという、そういう判断になったわけです。4年前にプロポーズを出しまして、そしてたまたま3年前に補正予算という大きな動きがありまして、そこで買うことが出来ました。

そのときにいったいどういう加速器質量分析法を我々もつべきだろうか、と議論を致しまして、いくつかの新しいファンクションをつけようといいました。既に、加速器質量分析法は、我が国におきましては名古屋大学の年代測定センターで、特に炭素の測定に特化する形で動いておりますし、それから東大の小林先生のところは多目的利用、これはAMSだけではありませんで、加速器の多目的利用という形で展開されています。おそらく私共のところでは環境に特化した形で、しかし同時に新しい情報をあたえるものでなければならないであろう、ということでもあります。ここで、3つの条件をかんがえました。まず第一に、カーボンの専用機というよりも、もう少し広いパースペクティブをもっているマシンにしようということです。これは、後で述べますように加速器の、アクセラレーターの電圧を5ミリオンボルトに設定したのが、その背景にあります。それから第2は、精度の高いものを作ろうということを考えました。これにつきましては、同時入射系というものを作っております。それから第3にガスのままイオン化して測れるようなシステムをつくらうと考えまして、それがガスイオン源の作成という、そういう形でそろそろ実りが見えるかもしれないという状況になっております。このような形で、3年前に契約を結びまして、昨年の9月に装置の本体が導入されまして、ほぼ一年間いろいろな問題ととりくんできております。まだ、いくつかの問題がのこっておりますけれども、まあ1年たったということがありまして、そろそろテイク

オフするための準備にはいろいろかということ、本日のあいさつになったわけでありませう。



OHP-3

固体イオン源高速逐次入射系

$^{12}\text{C}$ 、 $^{13}\text{C}$ 、 $^{14}\text{C}$ の同位体存在比  $1 : 10^{-2} : 10^{-12}$  以下に対応してそれぞれのイオンの測定時間を調整して分析精度を向上させる。

例えば

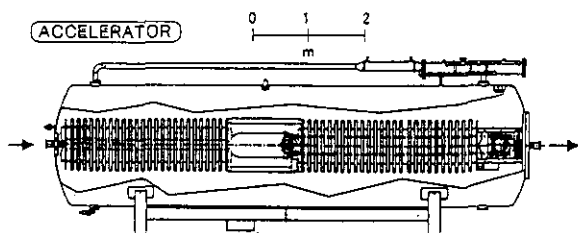
- $^{12}\text{C}$  1 ミリ秒
- $^{13}\text{C}$  10 ミリ秒
- $^{14}\text{C}$  100 ミリ秒

$^{13}\text{C} / ^{12}\text{C}$ の変動は瞬間最高値で 0.04% (但し、別のカソード位置で数%の誤差)

OHP-4

加速器質量分析装置は、最初の図【OHP-1】にありましたように、大きくわけてこのあたりにイオンソースがありまして、それからイオンのインジェクターがありまして、それからここに加速器があって、さらに曲げて、最後に検出器がある、そういう構造をしておりますけれども、それぞれの段階にある種の工夫をこらしているということでもあります。まず、イオンソースとインジェクターの部分ですけれども【OHP-3】、これは二系統からなっています。こちらの方は固体イオン源でありまして、例えば炭素ですとグラファイト化された炭素をここに詰めまして、セシウムのスパッタでイオンを取り出して、曲げて、こういう形になります。このときにファーストバウンシングで入射します。ご存じのように炭素というのは12, 13がある程度多くて、14は非常に少ないということがあって、その測定の強度比をあるダイナミックレンジ内に抑える、いれこむ必要が有って、12, 13を減らす必要があります。そのために高速の逐次入射系を用意しています。通常現代カーボンはその存在比が  $1 : 10^{-2} : 10^{-12}$  という比ですけれども、例えば12のイオンを加速器に入れる時間を短くしてやることによって、全体のバランスをとる【OHP-4】、例えばですが、実際はここをもう少し小さくして、12と13が1:1にするようなことも出来ますし、これをもっと長くして観測時間を稼ぐことも出来ます。このようにして、高速逐次入射系というものを構築しまして、逐次入射としての精度をかせごうということでもあります。現在、瞬間的な最高値0.05%が炭素13と12の変動について与えられています。これは瞬間的な値でターゲットのカソード位置によってその値が大きく変わってくるという問題も、まだ解決していません。

次は加速器の部分です【OHP-5】。私共は最終的にはペレットロンの方式を採用しまして、高圧の5ミリ



15SDM-2

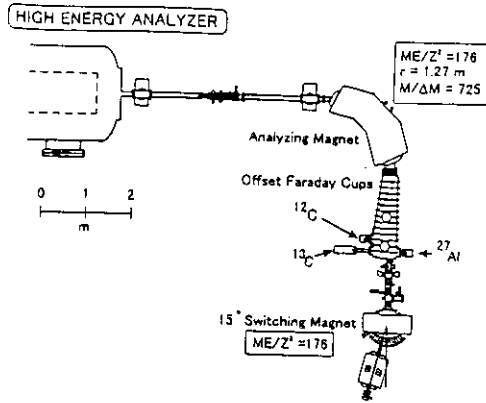
Pressure Vessel SF <sub>6</sub>	8.43 m long, 2.13 m diameter 5.4 atm
Stripper Gas Canal	95 cm long, 8.0 mm diameter
Charging Current Rating	250 μA (2 Chains)
Voltage Stability	1 kV
Voltage Ripple	750 V at 5 MV

OHP-5

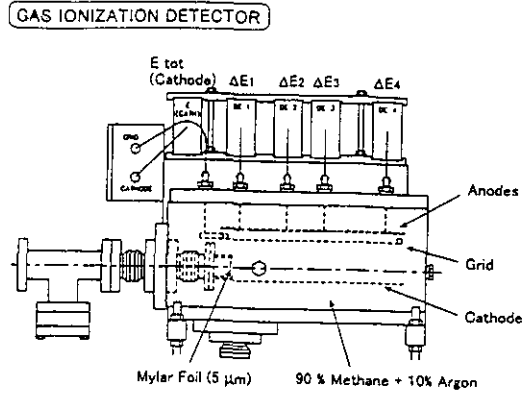
オンボルトを作っています。ペレットロンは加速器としては安定性を誇ってしまてなかなかいい装置です。現在ほぼ目標の加速電圧は達成されています。原理的にはここにマイナスイオンをたたき込み、このところがターミナルで、これがさきほどのように5ミリオンボルトの加速器ですけれども、ここにバシンとぶつけて荷電変換をさせて、プラスイオンを作り、それがこのグラウンドレベルのところでもう一度再加速されて、これがタンデム加速器の原理になります。5ミリオンボルトですと、炭素イオンは+4価ぐらいになります。このような高電圧を採用した理由の一つは、炭素の測定にしましても、訳の分からない所が若干あります。そのバックグラウンドレベルを下げるのに、ひょっとしたら5ミリオンボルトが役に立つかも

知れない、ということがあります。それから、他の核種への展開の可能性が広がるかもしれない、ということがあります。

それから、アナライザーの方ですけれども【OHP-6】、12と13はファラデイカップでうけまして、それによって同時測光が可能になっています。それから同時に、アルミニウム27も外側のファラデイカップで測定可能で、構造的には炭素とアルミが、このままの形ですぐはかれるようになっています。それから、ディテクターの方ですけれども【OHP-7】、ガスディテクターが一番最終段につながってしまて、この

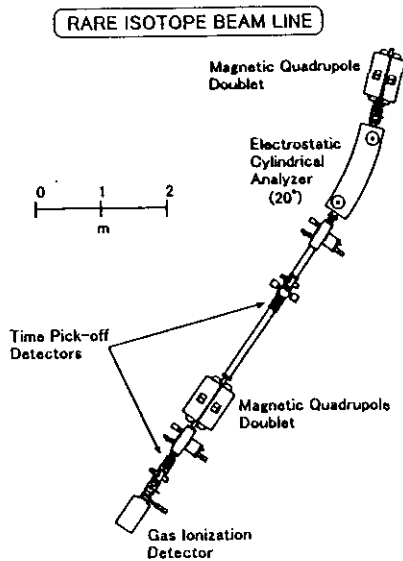


OHP-6



OHP-7

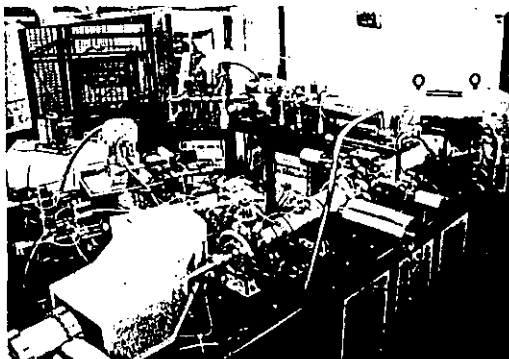
へんはハイエネルギービームの測定そのものであります。それから、ヨウ素だとか、特殊なイオンビームに対応する為に、このあたりにタイムオブフライトMSが入っています【OHP-8】。それで、イオンをピックアップするシステムになっています。このような形で炭素以外のいくつかの元素も測定出来るようなかたちになっています。



OHP-8

この所にSIMS過程が入っている、この部分のふらつきが一番大きいんですが、時間的ふらつきが非常に大きいんですが、その部分のふらつきをキャンセルしようというものです。

後で実際の装置を見ていただくとよいのですが、見にくいでしょうか、このあたりはイオンの導入系になっています【OHP-9】、こちらの方は検出系です【OHP-10】、これは実際のものを見ていただければいいと思います。一方で、イオンの同時入射系で炭素同位体の精密測定をやりようと考えております【OHP-11】。今日は中村先生がお見えでありますけれども、中村先生の所のタンデトロンは従来は逐次入射系ですが、新しく入るものは同時入射系になっています。同時入射系は概念としてはいいんですけども、なんらむずかしいところはないと思いますけれども、概念としてはイオン源で発生するイオンビームのふらつきをキャンセルして、高精度に同位体比を測定します、ということで、13と14のイオンを同時入射します。それから炭素12につきましては、電場で引き出して、一部だけを導入する、という形で同時入射を行います。2つの磁場と2つの静電場をつかった光学系で加速器の中にたたき込む、ということで、その後は12, 13はファラディカップで同時検出になりますし、14は最終段の検出器を使って測定します。いずれにしても、おそらくビームが同じ軌道を通って計測系まで入って行くことで、精度がよくなるだろう、特に加速器質量分析法はイオン



OHP-9



OHP-10

イオン同時入射系

ー炭素同位体精密測定

・イオン源で発生するイオンビーム強度のふらつきをキャンセルして高精度の同位体測定を行う。

・<sup>13</sup>C、<sup>14</sup>Cイオン(m/z=13及び14の負イオン)

・2つの磁場と2つの静電レンズを組み合わせた光学系

OHP-11

ガスイオン源

CO<sub>2</sub>をはじめとするガスをセシウムスパッタリングにより直接イオン化することにより、従来行われていたグラファイトに変換するプロセスを省略する。

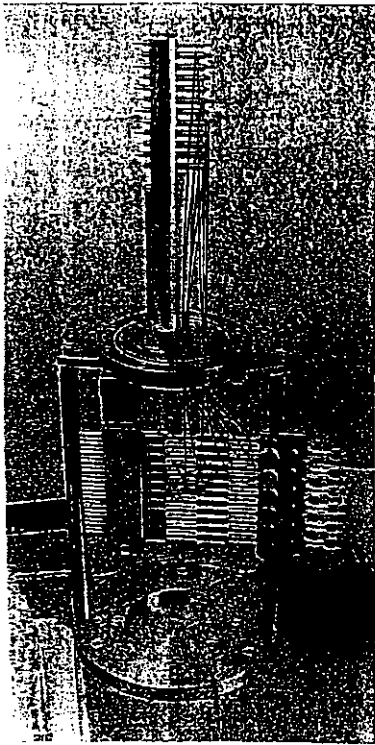
これにより

- 1) 分析のスループットが大きくなる
- 2) 微量のガスでも分析が可能となる
- 3) ガスクロマトグラフ等の分離手段と組み合わせることが可能

現在、20μAの電流が引き出されている

OHP-12

それから、3番目の特徴はガスイオン源でありまして【OHP-12】、炭酸ガスを初めとするガスをセシウムのスパッタリングで直接イオン化することはできないだろうか、ということでもあります。従来ですと炭酸ガスをグラファイトまで化学的な過程で変換を致しまして、ここに非常に時間がかかっております。それによって、実際に測定出来るサンプルの数が規定されてしまう、めんどくさいプロセスなんですけれども、それを省略してガスを直接測れないか、ということです。それによって、分析のスループットが非常に大きくなります。それからもう一つは、化学変換はかなり大量の試料を使いますけれども、それが微量のガ



OHP-13

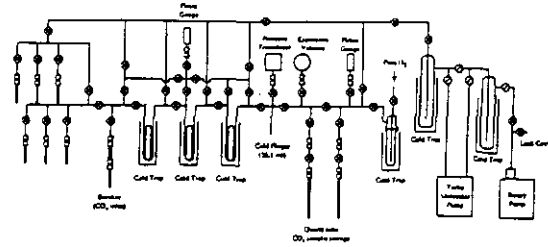


図2 ガラス真空ラインの模式図

OHP-14

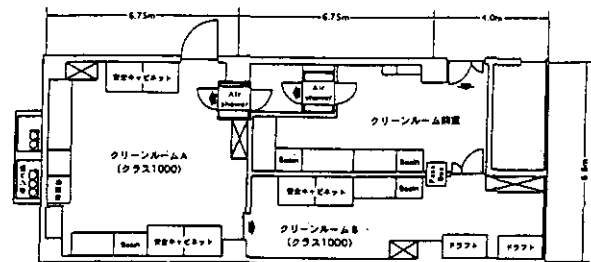


図1 試料調製室(クリーンルーム)平面図

OHP-15

スで十分に可能になるだろう、さらにはガスクロマトグラフなどのような分離手段と組み合わせることも可能になるだろうと思われます。まだガスイオン源の性能検査は終了しておりませんが、一応電流はでるよ、というところまで進んでおります。ガスイオン源はもちろん従来から提案されておりました。しかしながら、メモリー効果等のいくつかの問題点が指摘されています。これも、まだしばらく我々の施設におきましても確実に存在する、起きるかもしれない事でもありますけれども、いちおうガスイオン源がある一定のかなりよい水準に達しているということでもあります。ガスイオン源はこんな構造をしております【OHP-13】。下にサンプルをいれておくためがあるのですが、次々とサンプルを交換して次々に測ることが出来るようになりますので、もしそれが実現されればきわめて便利なものになります。それから、併せて、ガスイオン源でどんどん測れればいいんですけど、そうでないという可能性もありますので、炭

1. 研究テーマその1

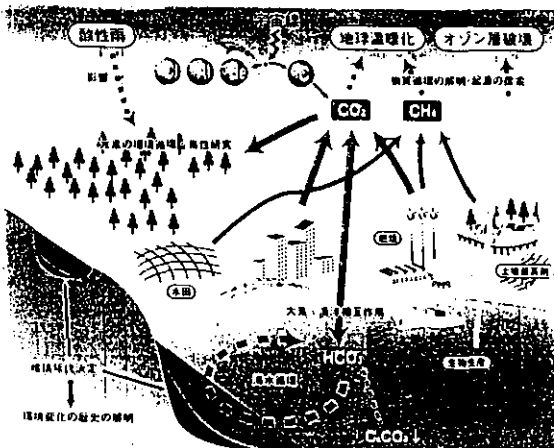
- 1) 炭素同位体比測定の高精度化に関する研究
  - 高精度同位体比測定のための同時入射系の確立に関する研究
  - 気体試料直接導入・測定のためのガスイオン源の確立に関する研究
  - CとOとの結合による、少量・微量成分の同位体比測定法の確立に関する研究
  - 試料前処理法に関する研究（高真空度、ガス導入、バックグラウンドレベル低下）
- 2) 他元素同位体比測定に関する研究
  - Beの同位体比測定に関する研究（試料前処理を中心に）
  - Alの同位体比測定に関する研究
    - ：試料前処理法
    - ：検出系の改良
    - ：バックグラウンドの低減
  - Cl, Iの同位体比測定に関する研究
    - ：とりあえず試料調製法の確立とプレリミナリーなデータの蓄積
  - Caの同位体比測定に関する研究
    - ：試料調製法の確立
    - ：バックグラウンドの低減
    - ：検出系の改良
    - ：適用性の把握と拡大

2. 研究テーマその2

- 1) 地球温暖化と関連した炭素循環の解明に関する研究
  - 試料採取・調製法の確立（グラファイト用）
  - 分析の高精度化に関する研究（同時入射系を中心とする）
- 2) オゾン層破壊物質の動態解明に関する研究
  - 試料採取・調製法の確立
  - ガスイオン源の実用化に関する研究
  - CとOとの結合による微量成分の同位体比測定法の開発
- 3) 有害汚染物質の経路の探索に関する研究
  - 試料採取・調製法の確立
  - ガスイオン源の実用化に関する研究
  - CとOとの結合による微量成分の同位体比測定法の開発
- 4) 地球環境の炭素の履歴に関する研究
  - バイカル炭素ターゲットとする、埋蔵試料の年代決定法に関する研究
    - ：炭素同位体比
    - ：Be/Al同位体比の測定に基づく絶対年代決定法の確立
  - 生物起源の炭素埋蔵物による過去の環境変化の解明に関する研究
    - ：道産サンゴ、頁石、頁岩などの炭素同位体比の経年変化の読み出し
- 5) トレーサーとしての埋蔵炭素放射性同位体の応用
  - 生体中Alの代謝研究 他

OHP-16

炭酸ガス、カーボネートの変換に関する研究、そのほかに生物生産から、例えばメタンとか、臭化メチルのようなそういう物質がでて、それぞれが地球の温暖化やオゾン層破壊につながって行く、そのような一連のプロセスの中に研究のいくつかのプログラムが位置付けられております。



OHP-17

例えば、一番右側にあります臭化メチルというのは、一体禁止すべきか、禁止すべきでないか、という議論がいまだに続いております。臭化メチルというのはオゾン層破壊物質ですからこういうことがいわれるわけですが、一方でこの物質は人工的につくられて大量に使用されていると同時に海洋で生産されていて、実際の海洋の中に含まれている臭化メチルの量はマンメイドの量ですとか、あるいは大気中の濃度のトータルにたいする量のはっきりしておらず、人工的な臭化メチルの生産活動を禁止すべきかどうかの判断を問われるようになったものであります。臭化メチルは大気中に非常に薄い濃度しか含まれておらず【OHP-18】、従ってそれを測定するのは非常に難しい事になります。例えば、10<sup>4</sup>m<sup>3</sup>の大気、これは大気の重さとして10トンに相当しますが、この10トンの大気中に臭化メチルとして0.3mg、300マイクログラム、その中の炭素に言及しますとわずか10マイクログラム弱しかありません。そのわずかな臭化メチル

酸ガスからグラファイトを作るプロセスも並行して動かしています【OHP-14】。このようなガスの真空ラインの中で、炭酸ガスのグラファイト化をやっています。一番心配になります現代カーボンのコンタミネーションを防ぐということもありまして、全体のシステム、試料調製作業は、クリーンルーム内で行う、ということになっています【OHP-15】。

これが研究施設の概要でありまして、あとでもまなくご案内をすることになるとおもいます。つづきまして、どんな研究を実際にやろうと考えているか、ということでありまして、非常に広範囲な研究が可能でありまして、これは一例ですけれども【OHP-16】、さしあたり炭素と他の元素の同位体比の測定に関する研究を展開すると同時にいくつかの地球環境プログラムあるいはその他のプログラムと連動しながらやろうと考えておりまして、現在のスケジュールですと、恐らく1年後くらいには炭素に関するデータが、初歩的なデータがではじめて、それから後かなり急速にアプリケーションを広げられるだろうと予想しています。また、他の元素につきましてもおいおいデータが出せる状態になっていくのではないかと考えています。どうしても炭素循環に関する研究はこの種のタイプの測定で一番重要でありまして、これはパンフレットの中にかいてありますけれども

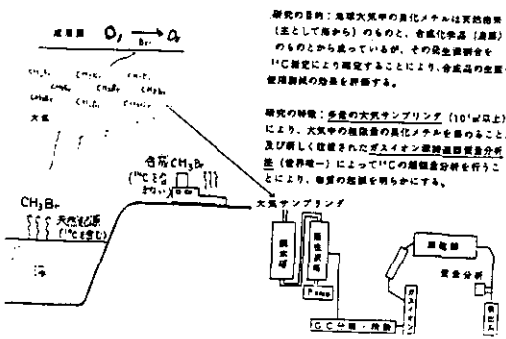
【OHP-17】、大気と海洋の相互作用に関する研究、

大気中の微量ハロゲン化合物

物質	存在量 (10 <sup>4</sup> m <sup>3</sup> あたり)	沸点(°C)
臭化メチル	約0.3mg	-4.5
フロン 11	約 5mg	23.8
フロン 12	約 32mg	-29.8
フロン 113	約 1mg	47.6
メチルクロロホルム	約 2mg	74.0
四塩化炭素	約 1mg	76.6
トリクロロエチレン	約 10mg	86.9
テトラクロロエチレン	約 10mg	121
ジクロロメタン	約 2mg	-40.2
塩化メチル	約 2mg	-23.7
クロロホルム	約 2mg	61.2
塩化エチル	不明	12.3
代替フロン		
HCFC-123	-	28
HFC-142b	-	-9
HCFC-124	-	-12
その他		
塩ビモノマー	-	-13.9
プロパン	-	-42.1
ブタン	-	-0.5

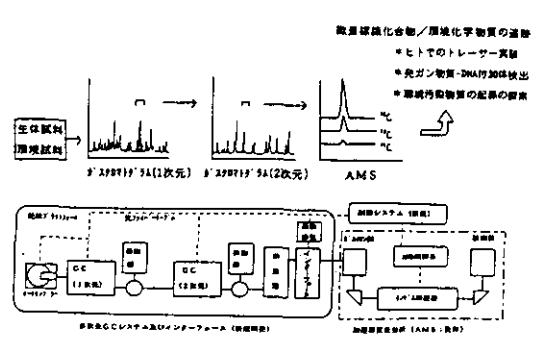
OHP-18

放射性炭素同位体比測定による、臭化メタルの起源に関する研究



OHP-19

GC-AMS：加速器による生体中、環境中微量成分の超高速検出法の開発

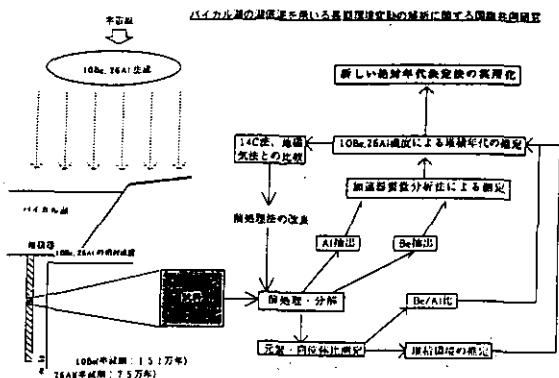


OHP-20

を大気中から捕集し、ほかの成分から分離/精製して、さらに炭酸ガスに変換し、グラファイトにかえて加速器質量分析で測定を行おうという訳です【OHP-19】。ガスイオン源を使った直接イオン化のようなプロセスによって、このような微量成分の測定がより容易になるものと期待されます。同時にGCと結合することによって、微量に含まれている各種の物質の分離とそこに含まれている炭素の年代測定を並行する事によって、ある物質が人工的に石油等から作られたものであるか、あるいは天然に存在しているものであるかの判断がつけられる、これも次の課題であると思われます【OHP-20】。それから、バイカルの炭素

については中村先生の方にお問い合わせをしておりますが、ベリリウムについてはこの装置を使って測定をすることになっており、これは研究をスタートしております【OHP-21】。

では、スライドをお願いします。そのほか、いくつかの、このような加速器MSの装置の立ちあげと並行して、これが立ち上がった時点ですぐいろいろな結果が得られるように各種のサンプルの採取あるいはセパレーションを進めています。ここでは、オーストラリアで私共がサンプリングしている状況をお示しします。おもに炭酸塩に関するものです。これは飛行中に取ったもので【写



真1】、アプロロス諸島という、サンゴ礁の島で、ここでサンゴのコアサンプルを採取しました。この辺りというのは昔から間潮帯でサンゴが徐々に成長して島を形成する、そういうところであります。船ででかけるわけですが、このくらいの大きさの船です【写真2】。サンゴの近くに行きますと大きな船では座礁しますので、こういう小船をもって行き、作業を行いました【写真3】。ここが少し変色していますけれども、このあたりがサンゴです【写真4】。大きなサンゴです。こういう浅いところにサンゴが少しずつ成長して行きます。こういうスイムスーツを着て、これからサンゴのボーリングをやろう、という訳です【写真5】。これが穴を掘っている所で、海面から大体1m弱、ここまで成長してきたサンゴです【写真6】。そこに穴を掘る道具を差し込んで、コアを取ります。これはとれたコアを並べているところで【写真7】、大体4mくらいのコアです。過去の200年くらいのヒストリーが刻まれています。このサンゴのコアサンプルというのはいろいろな意味で使い道があります。例えば、海水温、過去の海水温の変化の歴史を復元するのもに使えますし、あるいは過去に行われた核実験あるいは原子炉からのカーボンの放出みたいなものを追跡して海水の流れを追いかけることもできます。さらには、炭素年代と暦年代というのがありまして、ある種のギャップがあります。これは通常木の年輪を使って補正するやり方がありますが、サンゴというのは海に生きる生き物の年代の形を知るうえで貴重なサンプルといえます。それから、もうひとつ炭酸カルシウムの実際に生産されている場所に行くということがあります【写真8】。これはさきほどの島です、サンゴの島です。サンゴのかけらによって島が形成されています。こういうサンゴで島全体が覆われています。これはもう一つの例で【写真9】、オーストラリアの西側に雨が少なく蒸散速度が非常に早く、とんでもない高塩濃度のプールがあり、特殊な生物が生息すると同時に炭酸カルシウムが生物的な形で作られています。ここのサンプルです。これはシェルビーチとよばれる所で【写真10】、ここに白く見えているのは皆貝で、小さいものです。そしてそれがたった一つの種によって構成されてい









ます。それが累々と積み重なっていき、一部は掘り起こして鳥のえさにしています【写真11】。このようにほっているところでは地層的なものがみえています。たった1種類の貝が積み積もって石灰岩を作っていく、そういうところなんです。これが切通の部分で、このあたりになりますと、つぶれて貝の構造が変化して、石灰岩となっていきます。もう一つはストロマトライトという生き物です【写真12】。地球の生物の中で初めて生まれたらん藻類、これが酸素を出すことによってそれまでの地球の環境を大きく変化したものですが、このようなストロマトライトは同時に炭酸カルシウムを自ら出す粘液によって固めていきます。ここまで成長するのに3000年と言われてはいますが、このような試料です。

私共の加速器質量分析はこうにして、やっとなんか状態だろうと思います。が、同時にかなり急速にいろいろな新しい研究プログラムを組み込んで展開する事になります。本日おいでの皆様、お客様には、今後ともいろいろと教えていただく事になろうかと思えます。ひとつよろしく御願ひすると同時に、できるだけ多くの機会を作って共同研究を展開したいと思えます。よろしく御願ひ申し上げます。

【平成10年3月4日編集委員会受理】  
〔国立環境研究所資料 F-112-'98/NIES〕

国立環境研究所タンデム加速器分析施設レポート No.1

問い合わせ先：化学環境部 柴田 康行  
電 話 0298-50-2450 (ダイヤルイン)

---

平成10年3月31日 発行

発 行：環境庁 国立環境研究所  
〒305-0053 茨城県つくば市小野川16番2

---

印 刷 (会社名) 朝日印刷株式会社  
(住 所) 茨城県下館市中館186