

加速器質量分析 (AMS) の過去 30 年の発展と将来展望 Review of development of AMS in the past 30 years and future perspective

中村 俊夫^{1*}
NAKAMURA, Toshio^{1*}

¹ 名古屋大学年代測定総合研究センター
¹Center for Chronological Research, Nagoya University

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て、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が、数 mg という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、また、人工放射性同位体 ²³⁶U (2.35×10^7 yr), ²⁴⁰Pu (6563 yr) などが、対象とする元素の量で数ミリグラムを用いて測定できる。利用される加速器は、AMS 専用機としては加速電圧が 0.2MV~6MV 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 (¹⁴C) 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 ¹⁴C は酸化されて二酸化炭素 (¹⁴CO₂) となり、大気中に存在する他の二酸化炭素とよく混合して、¹⁴C 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 ¹⁴C 初期濃度がほぼ一定であり、試料に残存している ¹⁴C 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、⁴¹Ca 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、⁴¹Ca の検出は、それぞれの試料中の ⁴¹Ca の初期濃度が明白ではないため、また ¹⁴C の検出に比較して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、¹⁰Be, ²⁶Al, ¹²⁹I 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、³⁶Cl は地下水の年齢の推定、²³⁶U や ²⁴⁴Th は海水の循環の研究などに利用される。

本報告では、AMS の発展の歴史、日本および世界における稼働状況を述べたあと、AMS の利用分野および将来の展望について紹介する。

キーワード: 加速器質量分析, 宇宙線生成核種, 放射性核種, 年代測定, イオン核種識別, イオン粒子計数

Keywords: accelerator mass spectrometry, cosmogenic nuclides, radionuclide, age measurement, ion nuclide separation, ion particle counting

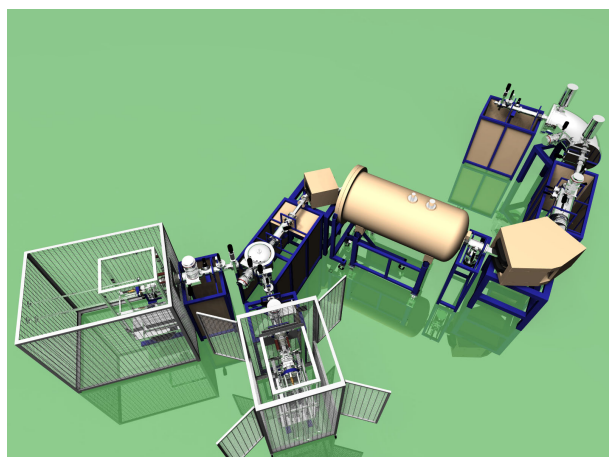
山形大学高感度加速器質量分析センターの現状 Present status of YU-AMS

門叶 冬樹^{1*}
TOKANAI, Fuyuki^{1*}

¹ 山形大学高感度加速器質量分析センター
¹Center for YU-AMS

Yamagata University (YU) installed an AMS (YU-AMS) system in the Kaminoyama Research Institute to meet the requirement of ¹⁴C AMS for microdosing and medical studies as well as that of radiocarbon dating in the same facility. An automated graphitization line was also installed in the same research institute for sample preparation. This AMS system is the first AMS system installed in a university in north Japan (Tohoku-Hokkaido region). The facility also provides radiocarbon dating for samples from other universities, institutes and public organizations. Currently, we are planning to install a second new ion source and an automated graphitization line until March in 2014. In this paper, we describe the status of the YU-AMS system.

キーワード: AMS, マイクロドーズ
Keywords: AMS, microdose



AMSにおけるレーザーを用いた同重体分離システムの開発 Development of isobar suppression system using Laser in Accelerator mass spectrometry

三宅 泰斗^{1*}; 松崎 浩之¹; 長谷川 秀一²
MIYAKE, Yasuto^{1*}; MATSUZAKI, Hiroyuki¹; HASEGAWA, Shuichi²

¹ 東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻, ² 東京大学大学院工学系研究科原子力専攻
¹Department of Nuclear Engineering and Management, School of Engineering, The University of Tokyo, ²Nuclear Professional School, The University of Tokyo

加速器質量分析 (Accelerator mass spectrometry, AMS) において目的核種と同重体核種を分離することは、測定精度やシステムのバックグラウンドを決める上で非常に重要な意味を持つ。AMS では従来、同重体の分離にガス充填型電磁石やガスカウンターなど、イオンと物質の相互作用を利用した装置が用いられてきた [1-2]。

1980 年代には加速器入射前にレーザーとイオンビームを相互作用させることにより同重体を分離する方法が試みられた [3]。この手法では、目的核種と同重体核種の電子親和力 (Electron Affinity, EA) の差を利用する。目的核種の方が同重体核種よりも EA が大きい場合、その中間のエネルギーをレーザー光によりイオンに与えれば、光脱離反応により同重体核種のみを選択的に中性原子化し、加速器に目的核種のみを入射させることができる。しかし、当時はパルスレーザーにより光反応を実現していたため、レーザー光がイオンビームと相互作用する時間が非常に短く、同重体の抑制が十分ではなかった。それ以降、この技術はまだ実用化に至っていない。

近年、レーザーの性能の発展や、イオンビームとの実質的な相互作用時間を延長する手法が考案され、AMS においてレーザーを用いた同重体イオンの分離システムの開発が進められている。例えば、ガスとの衝突によりイオンビームを減速させる反応チャンバーによりレーザー光とイオンビームとの相互作用時間を効果的に延長する方法が検討されている [4]。このシステムが実用化されれば、Cl-36 (EA=3.62eV) と S-36 (EA=2.08eV)、Ni-59 (EA=1.156eV) と Co-59 (EA=0.661eV) のような同重体核種より大きな電子親和力をもつ目的核種の測定において同重体干渉を軽減できる [4]。あるいは、目的核種と同重体核種の EA の関係が逆になっている核種でも、目的核種を分子イオンにすることで、EA が逆転し、光脱離により分離できるようにできる可能性も期待される。

レーザー光とイオンビームを効果的に相互作用させるには、反応チャンバーを含めたイオンビームのイオン光学系の最適化を行う必要がある。反応チャンバー設置位置としては加速器入射前の静電偏向器の後、入射電磁石の後などが考えられる。本研究では、レーザーによる同重体分離システムの導入に先立ち、実際のビームラインでレーザー光と相互作用させるためのイオン光学系や反応チャンバーの設置位置について検討を行った。

[1] H. Matsuzaki, Journal of the Vacuum Society of Japan, Volume 50, Issue 7, 467-474 (2008).

[2] T. Aze, H. Matsuzaki, H. Matsumura, H. Nagai, M. Fujimura, M. Noguchi, Y. Hongo. and Y. Yokoyama, Nucl. Instr. Meth. **B259**, 144-148 (2007).

[3] D. Berkovits, E.Boaretto, G. Hollos, W. Kutschera, R. Naaman, M. Paul, and Z. Vager, Nucl. Instr. Meth. **A281**, 663 (1989).

[4] Y. Liu, P. Andersson, J.R. Beene, O.Forstner, A. Galindo-Uribarri et al., Rev. Sci. Instr. **83**, 02A711 (2012).

キーワード: AMS, 同重体, レーザー, 光脱離
Keywords: AMS, isobar, laser, photodetachment

C14を含まない実験動物の開発 Development of C14-free laboratory animals.

小林 紘一^{1*}; パレオ・ラボ AMS 年代測定グループ¹
KOBAYASHI, Koichi^{1*}; AMS, Dating group¹

¹ 株式会社パレオ・ラボ
¹ Paleo Labo Co.,Ltd.

創薬研究の初期段階において、非常に高い放射能レベルの¹⁴Cで標識された薬物を実験用小動物に投与して、放射線測定により目的の薬物の生体内における動態を調べる実験が行われている。これに対して、実験動物の身体を構成する炭素の同位体比¹⁴C/¹²Cを下げる事ができれば¹⁴C標識薬物の放射能レベルをそれに応じて下げることが可能である。

自然界の動植物の身体を構成する炭素は、¹⁴C/¹²C \sim 10⁻¹²の割合で放射性同位体¹⁴Cを含む現代炭素でできている。これに対して化石燃料由来の炭素は、¹⁴Cが放射壊変により減少してほとんど無くなっていてdead carbon (DCと略称)と呼ばれる(¹⁴C/¹²C \ll 10⁻¹⁴; ¹⁴C-free carbon)。従って、DCの実験動物を使えば、目的とする薬物に付与する¹⁴Cの標識量を従来の現代炭素の動物を使う実験に比べて10万分の1程度以下に減らすことが出来、現代炭素のように低い放射能レベルの¹⁴C標識薬物による動態実験がAMS測定により可能となる。

これにより研究者の放射線障害の危険性が格段に減少し、また高価な標識化費用の削減効果は非常に大きい。更に、自然放射線レベルの薬物動態実験が可能となるので、薬用資源植物の探索、生薬や漢方薬の開発研究などへの応用が期待される。

本プロジェクトでは、DCの実験動物、特にDCマウスを飼育製造することを目的として、DCの餌を作る研究を約3年前に開始した。まだ研究途中であるが、ここでは今までの成果と最終目標の達成に向けての研究計画の概要を紹介する。

2010年10月、¹⁴Cを含まない生物栽培の実証データを取得することを目的に、簡便な実験を開始した。

¹⁴Cを含まない環境で生物を育てると必然的にDCの生物になることは明らかである。

アクリル製小型グローブボックス内の空気を、¹⁴Cを含まない人工空気(N₂, O₂ガス及びDCであることを確認した通常のCO₂ガス)に入れ替えて、LEDや蛍光灯による適量の光の照射下でブロッコリーなどの植物及び光合成微生物であるミドリムシの栽培、培養を試みた結果、¹⁴C濃度を現代炭素に比べて20%程度まで減少させることに成功(20 pMC: percent Modern Carbon, 80%のDC状態)した。(小林ほか、2011; Kobayashi et al., 2011)

ミドリムシ(ユーグレナ)は植物と動物の中間的微生物(数10 μ m程度)であり、動物の飼育に必要な栄養素をすべて持っていることと、光合成で繁殖するのでDC化が容易であるという理由から、DCの実験動物の餌として培養することにした。

その後、100%のDC化を妨げる様々な原因を探り、小型密閉容器にCO₂発生錠剤と化成肥料、麦飯石(花崗斑岩:ミネラル成分補給)と共にミドリムシを入れて密閉して培養するという簡便な方法により、約96%のDC濃度のミドリムシを製造することに成功した(小林ほか; 2012)。

また、ミドリムシやクロレラが実験動物の餌になり得ることの確認実験を行った。3匹のマウスにミドリムシ80%、クロレラ20%の混合粉末を錠剤にした市販の健康食品を与えて約3ヶ月間飼育した結果、通常の飼料を与えて飼育した3匹の対照群と比較して、少し体重が少ない以外に大きな差は見られず、健康に育つという結果を得た。

上記2件の研究結果は、DCマウスの実現の可能性が大きいことを示しており、次のステップに進むこととなった。

2013年8月、本研究を支援する助成金をいただき、DCマウスの実用化を目指して開発研究を開始した。

現在、容量1 m³の大型密閉培養装置を製造し、大規模化に伴う様々な問題点に対応して改良を加えながら、DCミドリムシの大量培養に取り組んでいる。

引用文献

小林ほか(2011) Production of ¹⁴C-free plants and animals ; Kobayashi, K. ほか(2011) Production of ¹⁴C-free plants and animals ; 小林ほか(2012) Production of dead carbon lives

キーワード: AMSによる薬物動態研究, C14を含まない生物, ユーグレナ
Keywords: Pharmacokinetics by AMS, C14-free lives, Euglena

暦年較正の高精度化に向けた AMS 法による南日本産樹木の ^{14}C 測定 ^{14}C measurement of the Southern Japanese tree by the AMS method for high-precision radiocarbon calibration

箱崎 真隆^{1*}; 中村 俊夫¹
HAKOZAKI, Masataka^{1*}; NAKAMURA, Toshio¹

¹ 名古屋大学年代測定総合研究センター
¹ Center for Chronological Research, Nagoya University

放射性炭素 (^{14}C) 年代法は、過去 5 万年間の堆積物や歴史試料の年代決定に大きく貢献している年代測定法である。しかし、 ^{14}C 年代は暦年代と一致しないため、年代既知試料の ^{14}C データからなる暦年較正データセットでの較正を必要とする。また、大気 ^{14}C 濃度には地域差 (regional ^{14}C offset) があるため (Hogg et al. 2002), 高精度な暦年較正のためには、地域ごとの暦年較正データセットを確立する必要がある。

名古屋大学年代測定総合研究センターでは、日本独自の暦年較正データセットを確立するため、南日本産樹木である屋久杉を用いて 1 年輪ごとの ^{14}C 測定を実施している。これまでの測定から、屋久杉は過去 2000 年間のさまざまな時代において、世界標準暦年較正データセット IntCal13(Reimer et al. 2013) よりも古い ^{14}C 年代を示すことがわかっている (Nakamura et al. 2013)。今回は、紀元 5 世紀の屋久杉年輪試料を用いた ^{14}C 測定結果について報告する。

試料は、鹿児島県屋久島産のスギ(試料名:Yaku_A)である。この試料は、屋久杉標準年輪曲線(木村 未発表)との年輪年代解析が行われており、年代既知である。試料の AD434-502 の年輪を 1 層ごとに切り分け、西暦年が偶数年の試料 35 点 (AD434, 436..., 502) について ^{14}C 測定を行った。測定には、名古屋大学タンデトロン AMS2 号機を使用した。偶数年のみを測定したのは、先に全体傾向を把握するためであり、将来的には奇数年の年輪試料も測定する。

測定の結果、試料の ^{14}C 年代は、IntCal13 よりも平均 28 ± 22 年、最大 76 ± 21 年 (AD488) 古いことがわかった。試料の ^{14}C 年代は、IntCal13 および SHCal13(南半球用暦年較正データセット; Hogg et al. 2013) のほぼ中間に位置した。

屋久島は夏季に熱帯収束帯の北端と接するため、定常的に ^{14}C 濃度の低い南半球大気が供給されやすいと考えられている (中村ほか 2012)。今回の測定結果は、紀元 5 世紀に日本近辺の大気中 ^{14}C 濃度が低下したことを示唆する。このことから、この時代は南半球からの大気供給が強まっていた可能性が考えられる。坂本ほか (2013) は、長野県宮田村産スギ埋没木(年代既知)の ^{14}C 濃度測定から、紀元 5 世紀-6 世紀前半にかけて、IntCal よりも古い年代が得られたことを報告している。今回の結果は長野県産樹木の測定結果と調和するものであり、この時代は南半球大気の影響が中央日本まで及んでいた可能性が考えられる。今後は、紀元 6 世紀まで屋久杉試料の ^{14}C 測定を実施し、坂本ほか (2013) の結果と整合するかを検討する。

キーワード: ^{14}C 地域差, 樹木年輪, 南日本, 暦年較正, 屋久杉

Keywords: radiocarbon calibration, regional ^{14}C offset, Southern Japan, tree-ring, Yaku cedar

連続土壌堆積物中の津波イベント層のC-14年代測定と津波堆積物の地球化学分析 C-14 dating and geochemical analyses of the tsunami sediments in continuous soil deposits from Tohoku area, Japan

渡邊 隆広^{1*}; 細田 憲弘¹; 土屋 範芳¹; 中村 俊夫²; 山崎 慎一¹; 奈良 郁子¹

WATANABE, Takahiro^{1*}; HOSODA, Norihiro¹; TSUCHIYA, Noriyoshi¹; NAKAMURA, Toshio²; YAMASAKI, Shin-ichi¹; NARA, Fumiko¹

¹ 東北大学大学院環境科学研究科, ² 名古屋大学年代測定総合研究センター

¹Graduate School of Environmental Studies, Tohoku University, ²Center for Chronological Research, Nagoya University

Past tsunami sediments preserved in continuous soil and lake sediments are crucial and unique clues to reconstruct the past tsunami invasion area. Generally, the tsunami sediments originated from sea floor, sandy beach and/or coastal land soils containing gravels, sands, muds, shells and microfossils. In particular, muddy tsunami sediments should be found to detect the limit of tsunami invasion areas, because relative small particles move to more inland area with tsunami in comparison with sand deposits. Additionally, dating of tsunami sediments is indispensable to refer for historical disaster events. Therefore, we have to make age models of continuous soil deposits with tsunami sediments and new techniques for detection of invisible muddy tsunami sediment in strata. In this study, we performed the nine radiocarbon measurements of plant residues in continuous soil deposits as well as geochemical characteristics of tsunami sediments. 2m-continuous soil deposits were taken by the handy geoslicer (Fukkenn co. ltd.) from the Pacific coast of Tohoku area in northeast Japan. The samples were composed of cultivated surface soils, peaty clay, silt and sub-rounded medium sands. The sandy deposits were found between the peaty clay layers. To show the sedimentary ages of sandy deposits, plant residues were taken from the sandy and peaty clay layers in the continuous soil sediments. The plant residues were washed with ultra pure water using ultra sonic cleaner to remove soil particles containing relative old carbon. Then, the samples were treated sequentially with 1.2M-HCl, 1.2M-NaOH and 1.2M-HCl at 60 degrees of Celsius for 3 hours. After neutralization and freeze-drying, the samples were combusted in evacuated quartz tubes. Then, the purified carbon dioxide was reduced to graphite using Hydrogen gas with iron catalysts. Radiocarbon measurements were performed by the Tandem AMS system (Model-4130, HVEE) in Center for Chronological Research, Nagoya University. Total organic carbon contents of the plant residues were from 45.9 to 54.5 wt.% (50.4 wt.% in average) and stable carbon isotope ratios of the plant residues ranged between -26.7 and -30.1 permil (vs. PDB), which consist with those of modern terrestrial C3 plants. As a result of this study, part of the calibrated ages of plant residues taken from just above the sandy tsunami sediments was about 1000-1300 cal BP, and these ages were agreed well with those of the Jogan earthquake and tsunami in the Sendai plain.

Keywords: Radiocarbon dating, Tsunami deposits, Jogan tsunami, Geochemistry, EDXRF

HTT35-07

会場:311

時間:5月1日 10:30-10:45

アリューシャン列島, アダック島のテフラの AMS 炭素 14 年代 AMS radiocarbon dating of tephra layers on Adak Island, central Aleutian

奥野 充^{1*}; 中村 俊夫²
OKUNO, Mitsuru^{1*}; NAKAMURA, Toshio²

¹ 福岡大・理, ² 名古屋大・年代セ
¹Fac. Sci., Fukuoka Univ., ²CCR, Nagoya Univ.

アリューシャン列島の中央部に位置するアダック島には, 完新世テフラが分布している. これらのテフラが挟まる土壌層中の炭質物について, 放射性炭素 (^{14}C) 年代測定を行った. また, 一部の地点では, 砂丘砂層中にもテフラが挟まっている. 砂層は堆積速度が早く, 有機物の混入が少ないため, テフラの上下に見られる炭質物が汚染される可能性が低い. これらの微小な試料に対して AMS 法を適用することにより, 信頼できる年代を得ることができた. この講演では, それらの結果を報告する.

キーワード: アダック島, 完新世, テフラ, 放射性炭素年代
Keywords: Adak Island, Holocene, tephra, radiocarbon date

静岡県竜ヶ岩洞石筍の放射性炭素年代測定 Radiocarbon dating of stalagmites from the Ryugashi Cave, Shizuoka

加藤 ともみ¹; 南 雅代^{2*}; 堀川 恵司³; 中村 俊夫²
KATO, Tomomi¹; MINAMI, Masayo^{2*}; HORIKAWA, Keiji³; NAKAMURA, Toshio²

¹ 名古屋大学大学院環境学研究科, ² 名古屋大学年代測定総合研究センター, ³ 富山大学大学院理工学研究部
¹Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, ²Center for Chronological Research, Nagoya University, ³Graduate School of Science and Engineering for Research, University of Toyama

Stalagmites are cave deposits precipitated from drip water. Drip water consists of carbon derived from soil CO₂, which has atmospheric ¹⁴C values in isotopic equilibrium with atmosphere, and carbonate-dissolved CO₂, which has ¹⁴C-free (dead) carbon through interaction with cave host bedrock. As a result, drip water contains a percentage of dead carbon, which will make the ¹⁴C ages of the stalagmite older. Therefore, a correction of the dead carbon fraction is needed for ¹⁴C dating of stalagmites. In recent years, young stalagmites of 10-20 ka have been ¹⁴C dated by comparing the ¹⁴C on samples of known calendar age with the tree ring record of atmospheric ¹⁴C during a period of overlap (Hoffmann *et al.*, 2010; Southon *et al.*, 2012). This procedure involves the implicit assumption that dead carbon fraction in stalagmite remained constant through its growth time. In this study, therefore, we examined dead carbon fraction in two stalagmites from the Ryugashi Cave in Hamamatsu, Shizuoka by investigating seasonal variation in ¹⁴C concentrations of drip water coupled with soil CO₂, atmospheric CO₂, and host limestone, in order to reveal possibility of accurate and precise ¹⁴C dating on stalagmite in Japan.

The drip water samples showed ¹⁴C of 1130 BP to 980 BP and $\delta^{13}\text{C}$ of -10.1 ‰ to -9.1 ‰, which are lower in fall and winter, and higher in spring and summer, and have the annual means of ¹⁴C of 1025±140 BP and $\delta^{13}\text{C}$ of -9.4±0.4 ‰. The RYGS12 stalagmite of 7 cm in length showed 945±30 BP at its top and 2150±40 BP at its bottom, and had a growth rate of about 60 μm/yr. The calibrated age of RYGS12 was estimated by comparing the ¹⁴C with the IntCal13 calibration curve, resulting that the stalagmite had a constant dead carbon fraction through its growth time and gives ¹⁴C ages of 1050 years older than the true age. The carbon isotopic fractionation between drip water and stalagmite was negligible. The results indicate that high-resolution ¹⁴C measurement can be performed on stalagmites in the Ryugashi Cave.

The RYGS12 sample showed rapid decrease of $\delta^{13}\text{C}$ from -8.3 ‰ to -11.8 ‰ at around AD1450. The decrease suggests an increase of soil input to the stalagmite, since soil CO₂ has low $\delta^{13}\text{C}$ of -22.0 ‰. It is reported that there was a great earthquake of magnitude 8.6 (Meio earthquake) accompanied by a catastrophic tsunami in this study area in AD1498. Therefore, the $\delta^{13}\text{C}$ decrease might be caused by the Meio earthquake. In the presentation, we will present ¹⁴C result on another stalagmite sample RYG08 of 30 cm in length.

キーワード: 石筍, 放射性炭素年代, 炭素同位体比, 酸素同位体比

Keywords: stalagmite, radiocarbon age, carbon isotope ratio, oxygen isotope ratio

名古屋における ^{14}C を用いた PM_{2.5} 中炭素の発生源解析 14C-based source apportionment of carbonaceous component in PM_{2.5} in Nagoya city

池盛 文数^{1*}; 山神 真紀子²; 本庄 浩司³; 中村 俊夫⁴

IKEMORI, Fumikazu^{1*}; YAMAGAMI, Makiko²; HONJYO, Koji³; NAKAMURA, Toshio⁴

¹ 名古屋大学大学院環境学研究科、名古屋市環境科学調査センター、² 名古屋市環境科学調査センター、³ 名古屋大学大学院環境学研究科、⁴ 名古屋大学年代測定総合研究センター

¹Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, Nagoya City Institute for Environmental, ²Nagoya University, Nagoya City Institute for Environmental, ³Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, ⁴Center for Chronological Research, Nagoya University

The measurement of radiocarbon (^{14}C) has been used to estimate the relative contributions of fossil and contemporary carbon sources in particulate matter throughout the world. In this study, we use ^{14}C to provide quantitative estimates of carbon origin sources in Nagoya in April 2003 to March 2004. pMC and OC/EC showed similar seasonal variations and high values (range 39.8 to 68.4, 1.0 to 2.0; average 53.4, 1.5, respectively) in May and early June, whereas the values of pMC stayed relatively low values (range 28.3 to 41.9, 0.7 to 1.2; average 34.2, 1.0, respectively) after middle June. To estimate the source region of high pMC values, backward air mass trajectories were calculated during the sampling period in April to June. The air mass appeared to have passed through eastern Siberia when the pMC values showed high values in May and early June which also showed high values of OC/EC ratio and OC concentrations. In 2003, many researchers reported the influence of large forest burning in Siberia. This large forest burning occurred in spring to summer. The smoke from this forest burning had reached to Korea, Japan, and North America. The influences from the Siberian forest fires had an important implication for air quality over East Asian region. We conclude that high pMC values measured in spring are originated from large forest fires in Siberia and transported long distance.

キーワード: 大気エアロゾル, PM_{2.5}, 放射性炭素

Keywords: atmospheric aerosol, PM_{2.5}, radiocarbon

WHP再観測によって明らかになった太平洋における核実験起源炭素 14 の十数年規模変動 Decadal change in bomb-produced radiocarbon in the Pacific Ocean revealed by WHP repeat hydrography

熊本 雄一郎^{1*}; 村田 昌彦¹; 河野 健¹
KUMAMOTO, Yuichiro^{1*}; MURATA, Akihiko¹; KAWANO, Takeshi¹

¹ 独立行政法人海洋研究開発機構

¹ Japan Agency for Marine-Earth Science Technology

核実験によって大気中に放出された炭素 14 (核実験起源炭素 14) が、どのように海洋に移行しているかを明らかにすることは、大気・海洋間の気体交換および海洋循環を研究するための有力な方法のひとつである。JAMSTEC は、2000 年代以降主に太平洋域において WHP(WOCE Hydrographic Program) の再観測を精力的に実施し、海水中炭素 14 濃度を分析してきた。それらを WHP 等の過去に観測されたデータと比較することで、太平洋における 1990 年代から 2000 年代にかけての十数年間の核実験起源炭素 14 の変動が明らかになった。2000 年代に得られた炭素 14 の観測結果を、主に 1990 年代の WHP の観測結果と比較した結果、以下のことが明らかになった。(1) 北太平洋亜寒帯域:鉛直分布、鉛直積算量ともに大きな変動なし、(2) 北太平洋東部亜熱帯域:深度約 500-m までは減少、500 から 1500-m 付近までは増加しており、鉛直積算量は大きな変化なし、(3) 北太平洋西部亜熱帯域:深度約 500-m までは減少、鉛直積算量は約 20 %減少、(4) 熱帯域:鉛直分布、鉛直積算量ともに大きな変動なし、(5) 南太平洋亜熱帯域:深度約 500-m までは減少、500 から 1500-m 付近までは増加しており、鉛直積算量は大きな変化なし。北太平洋東部亜熱帯は比較する 2000 年代のデータが少ないが、米国が実施した同海域における炭素 14 の再観測の結果からも、上記(2)と似たような結果が報告されている。南太平洋の亜寒帯域での再観測データがないため、太平洋全域における 1990 年代から 2000 年代にかけての炭素 14 のインベントリーの時間変化ははっきりしない。一方、北太平洋に限れば同西部亜熱帯における有意な減少によって、同海域のインベントリーは減少していることがわかった。この時間変動は、主に大気から海洋に移行した核実験由来炭素 14 の時間変動に起因するものと考えられる。海水中の炭素 14 の大部分は溶存無機炭素として海水中に存在するため、核実験起源炭素 14 は海洋表層(サーモクライン)循環によって運ばれる。一方で、大気中の核実験起源炭素 14 濃度は年々減少している。ソースである大気中濃度の減少シグナルが西部亜熱帯域で最も早く観測されたことは、同海域におけるサーモクライン循環の時間スケールが相対的に短いことを示唆している。また、北太平洋から失われた核実験起源炭素 14 は、インドネシア通過流によって北太平洋からインド洋への移行した可能性がある。なお本研究成果の一部は、(独)日本学術振興会科学研究費補助金 18310017、および日本原子力研究開発機構の施設共用制度(課題番号:2007A-F03, 2007B-F05, 2008A-F02, 2009A-F05, 2010A-F06, 2011A-F04)によって得られたものである。

キーワード: 核実験起源炭素 14, 太平洋, 海洋循環

Keywords: bomb-produced radiocarbon, Pacific Ocean, ocean circulation

放射性炭素を用いた温暖化に伴う森林土壌有機物の分解特性の解明 Study on property of soil organic matter decomposition by global warming using radio-carbon

荒巻 能史^{1*}; 梁 乃申¹; 寺本 宗正¹; 富田 綾子¹

ARAMAKI, Takafumi^{1*}; LIANG, Naishen¹; TERAMOTO, Munemasa¹; TOMITA, Ayako¹

¹ 国立環境研究所

¹ National Institute for Environmental Studies

温暖化による気温上昇に伴って土壌有機分解が促進され、今後、大気中 CO₂ 濃度が予測値よりも更に増加する可能性が指摘されている。しかしながら、長期的な温暖化環境における土壌有機物の分解特性に関する情報は十分には得られていない。我々は、異なる森林タイプを持つ北海道から九州までの全国6カ所において、赤外線ヒーターを用いた人工的な温暖化操作実験を長年にわたって実施している。そこで、この実験土壌の有機炭素に含まれる ¹⁴C を鉛直的に測定することによって、温暖化に伴う微生物による有機物分解・CO₂ 放出速度などの情報を引き出すことを目的に研究を進めている。平成23年12月に、温暖化操作実験サイトのうち西日本のアラカシ優占林（広島大学敷地内、東広島市）において、温暖化区および対照区の土壌呼吸測定チャンバー内からそれぞれ1本ずつの土壌コアを採取した。これらを実験室に持ち帰り、深さ方向に1cm間隔に切り出した土壌試料を得た。1N塩酸を加えて激しく振とうして一昼夜放置することで含有する無機成分を除去した後、これを炉乾して測定用試料とし、元素分析計によって有機炭素（POC）及び有機窒素（PON）の重量パーセントを測定した。試料のうち炭素量に換算して約3mgに相当する試料を、酸化銅とともに真空中で燃焼して試料中の有機炭素を二酸化炭素ガス試料として抽出した。これを真空ガラス実験装置中で水素ガスを用いて還元して、炭素（グラファイト）試料を得た。独立行政法人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（AMS）を用いて、グラファイト試料中の ¹⁴C/¹²C 比を計測した。測定データは、同時に測定した標準試料中の ¹⁴C/¹²C 比からのずれ分の千分率（ $\Delta^{14}\text{C}$ ）として表現した。なお、 $\Delta^{14}\text{C}$ の測定誤差は $\pm 4\%$ 以下であった。

POC と PON の鉛直分布は温暖化区および対照区ともに表層3cm程度までは高い濃度を示すが、その下層深さ10cm程度までに急激に減少し、深さ15cm以深では検出限界程度の低濃度となる傾向があった。深さ15cm以浅では POC、PON ともに対照区土壌の方が相対的に高い傾向を示していたが、深さ5cm付近では両区画に差違が認められない層が存在していた。この層を除くと、温暖化区土壌の濃度は、POC、PON ともに深度に関わらず対照区のおおよそ70~80%程度であり、温暖化操作に伴う微生物による有機物分解および CO₂ 放出がおおよそ深さ15cm程度まで及んでいることがうかがえる。POC 中の $\Delta^{14}\text{C}$ の鉛直分布は、対照区の $\Delta^{14}\text{C}$ が表層10cm程度まで110~130%程度ではほぼ同様であるのに対して、温暖化区では深さ5cmを極大（約220%）にした特異的な分布を示していた。表層10cm以浅の $\Delta^{14}\text{C}$ 鉛直分布に注目すると、3cm以浅の POC >15 wt % では温暖化区の $\Delta^{14}\text{C}$ が対照区に比べて小さいか同等、それ以深では温暖化区の $\Delta^{14}\text{C}$ が明らかに大きい値をとる。対照区が本サイトにおける土壌有機物中の $\Delta^{14}\text{C}$ の一般的な鉛直分布であるとすれば、表層3cm以浅では温暖化操作に伴って微生物が比較的“若い”、リターや細根などを由来とする有機炭素を分解した結果、見かけ上、温暖化区の $\Delta^{14}\text{C}$ が小さくなったと解釈することができる。この解釈に従えば、逆にそれ以深では“古い”、蓄積されてからの経過時間（滞留時間）の長い有機炭素を分解していることを示唆しているものと考えられる。

キーワード: 土壌炭素, 放射性炭素, 地球温暖化, 有機物分解, 森林土壌

Keywords: soil carbon, radiocarbon, global warming, organic matter decomposition, forest soil

最終退氷期から完新世初期にかけての南極氷床コア中の宇宙線生成核種 $^{36}\text{Cl}/^{10}\text{Be}$ 比 Cosmogenic $^{36}\text{Cl}/^{10}\text{Be}$ ratio in the Antarctic ice core during the last deglaciation and early Holocene

笹 公和^{1*}; 黒住 和奈¹; 末木 啓介¹; 高橋 努¹; 松四 雄騎²; 戸崎 裕貴³; 堀内 一穂⁴; 内田 智子⁵; 松崎 浩之⁶; 本山 秀明⁷

SASA, Kimikazu^{1*}; KUROSUMI, Kazuna¹; SUEKI, Keisuke¹; TAKAHASHI, Tsutomu¹; MATSUSHI, Yuki²; TOSAKI, Yuki³; HORIUCHI, Kazuho⁴; UCHIDA, Tomoko⁵; MATSUZAKI, Hiroyuki⁶; MOTOYAMA, Hideaki⁷

¹ 筑波大学, ² 京都大学, ³ 産業技術総合研究所, ⁴ 弘前大学, ⁵ 東北大学, ⁶ 東京大学, ⁷ 国立極地研究所

¹University of Tsukuba, ²Kyoto University, ³National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, ⁴Hirosaki University, ⁵Tohoku University, ⁶The University of Tokyo, ⁷National Institute of Polar Research

宇宙線が地球大気に入射後、大気中に存在する N, O, Ar などの原子との核破砕反応によって宇宙線生成核種が生成され、氷床上に降下・堆積していく。代表的な宇宙線生成核種には、 ^{14}C (半減期: 5.73×10^3 yr), ^{10}Be (半減期: 1.36×10^6 yr), ^{36}Cl (半減期: 3.01×10^5 yr) などが存在する。本研究では、南極ドームふじ基地で掘削された氷床コアの切削片を用いて (Motoyama et al., 2007), 最終退氷期から完新世初期の気候変遷期から気候安定期にかけての ^{36}Cl について測定を行った。 ^{10}Be 以外に ^{36}Cl を測定することで、 $^{36}\text{Cl}/^{10}\text{Be}$ 比を用いた古い氷床コアに対する年代測定への適用について検討した。

本研究では、氷床コア中の 10.55 - 18.42 kyr b2k 間の ^{36}Cl の測定を行い、降下フラックスの復元を行った (Sasa et al., 2010)。その結果、 ^{36}Cl の濃度は、 $0.21 - 1.80 \times 10^4$ atoms g^{-1} の範囲となり、降下フラックスは、 $0.54 - 3.25 \times 10^4$ atoms $\text{cm}^{-2} \text{yr}^{-1}$ の範囲を示した。本研究と同じ氷床コアを用いて弘前大学の研究グループが測定した ^{10}Be と比較した結果、完新世初期の間では、 ^{36}Cl と ^{10}Be の変動は、ほぼ一致していた。また、11.22 - 11.37 kyr b2k の降下フラックスの増大は、1645 - 1715 C.E. のマウンダー極小期の宇宙線降下フラックスの変動と類似していたことから太陽活動の変動が原因であると考えられる。この降下フラックスの増大があったにもかかわらず、 $^{36}\text{Cl}/^{10}\text{Be}$ 比が 0.10 ± 0.01 と一定を示し、大気中の $^{36}\text{Cl}/^{10}\text{Be}$ 比の理論値である 0.11 とほぼ一致した。よって、 $^{36}\text{Cl}/^{10}\text{Be}$ 比を用いた放射年代測定の初期値として $^{36}\text{Cl}/^{10}\text{Be} = 0.10 \pm 0.01$ が利用可能であると確認できた。完新世以前では、 $^{36}\text{Cl}/^{10}\text{Be}$ 比が理論値の 0.11 よりも低くなった。完新世以前には、最終退氷期が存在する。最終退氷期は、極地からの氷山の流出が起り、海水面の上昇などがあり、気候が安定していなかった期間であるため、ベリリウムと塩素の輸送過程が異なり、 $^{36}\text{Cl}/^{10}\text{Be}$ 比が理論値よりも低くなったと考えられる。したがって、 $^{36}\text{Cl}/^{10}\text{Be}$ 比は宇宙線変動とは独立し、大気循環の変動を反映しているとも考えられる。

キーワード: $^{36}\text{Cl}/^{10}\text{Be}$, 宇宙線生成核種, 加速器質量分析, 年代測定, 氷床コア

Keywords: $^{36}\text{Cl}/^{10}\text{Be}$, Cosmogenic nuclide, Accelerator Mass Spectrometry, Radiometric age determination, Ice core

1998 から 2008 年の大気中 Be-7, Be-10 濃度と太陽活動の関係 Correlation between the concentrations of cosmogenic Be-7, Be-10 in atmosphere and solar activities.

山形 武靖^{1*}; 榎崎 幸範²; 永井 尚生¹; 松崎 浩之³

YAMAGATA, Takeyasu^{1*}; NARAZAKI, Yukinori²; NAGAI, Hisao¹; MATSUZAKI, Hiroyuki³

¹ 日本大学文理学部, ² 福岡県保健環境研究所, ³ 東京大学大学院工学系研究科

¹Collage of Humanities and Sciences, Nihon University, ²Fukuoka Institute of Health and Environmental Science, ³School of Engineering, the University of Tokyo

【はじめに】大気中における ⁷Be ($T_{1/2}=53.3\text{d}$) と ¹⁰Be ($T_{1/2}=1.36 \times 10^6\text{y}$) の生成速度は大気の深さに対して指数関数的に減少しているため、成層圏で全体の 2/3 が、対流圏で 1/3 が生成している。生成速度は宇宙線強度に依存するため、太陽活動の 11 年周期とともに変動しているが、¹⁰Be/⁷Be 生成速度比はほぼ一定であると考えられる。生成後は酸化され、エアロゾルに吸着し移動する。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 ¹⁰Be 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、¹⁰Be 濃度、¹⁰Be/⁷Be は高くなっている。北半球では春期に成層圏-対流圏の交換が起きるため、地表付近の ⁷Be、¹⁰Be 濃度、¹⁰Be/⁷Be が高くなる。大気中 ⁷Be 濃度の永年変動は宇宙線強度の変動の影響を受けているとされているが、成層圏-対流圏の交換速度が毎年変化している場合、宇宙線強度の変動と異なる変動パターンを示す可能性も考えられる。本研究では東京、八丈島、太宰府において 1998-2008 年まで ⁷Be、¹⁰Be 濃度の観測を行い、濃度と ¹⁰Be/⁷Be の変動と太陽活動の関係について考察を行った。

【実験】試料は福岡県太宰府市の福岡県環境保健環境研究所と八丈島の八丈島灯台、東京都世田谷区の日本大学においてハイボリュームエアサンプラーを用いてろ紙に回収したエアロゾルを用いた。回収した試料はまず γ 線スペクトロメトリーを行い ⁷Be ($E_{\gamma}=477.6\text{keV}$) の定量を行った。測定後、ろ紙の 1/4 に Be 担体 0.5 mg を添加し分解液をろ過を行った。ろ液から陽イオン交換カラムを用いて Be を単離した。回収した Be を BeO として東京大学 MALT において ¹⁰Be-AMS を行った。

【結果】太宰府、八丈島、東京の大気中 ⁷Be、¹⁰Be 濃度はほぼ一致した。大気中 ⁷Be、¹⁰Be 濃度は毎年 3-6 月と 10-11 月に高く、7-8 月に低くなる季節変動を示した。¹⁰Be/⁷Be は 3-6 月に高くなる季節変動を示した。大気中 ⁷Be、¹⁰Be 濃度は強い季節変動を持つため、一年を成層圏からの影響がある年前半 (1-6 月) と無い年後半 (7-12 月) に分け平均し、太陽活動と比較すると、⁷Be 濃度は年前半、後半共に太陽活動と同様の変動パターンを示したが、¹⁰Be 濃度は年前半がほぼ一定で、年後半は太陽活動と同じ変動パターンを示した。¹⁰Be/⁷Be は年前半と後半で変動パターンが大きく異なり、年前半は太陽活動の 1-2 年遅れの変動パターンを示し、年後半はほぼ一定であった。

生成速度が宇宙線強度に比例して変化する 2 ボックスモデルを用いて大気中 ¹⁰Be/⁷Be を求め、観測した結果と比較した。その結果、エアロゾルの平均滞留時間は成層圏で 2 年、対流圏で 32 日であり、成層圏-対流圏の大気交換の時期と交換速度は毎年ほぼ一定で、2-6 月にその他の時期より約 3 倍になると算出できた。また生成速度は地表で観測された宇宙線強度の変動量に対し 4 倍 (± 40% 程度) 変動することがわかった。これは Masarik and Beer(1999) が見積もった変動量と同等であった。

キーワード: 加速器質量分析, 宇宙線生成核種, 大気, エアロゾル

Keywords: Accelerator mass spectrometry, Cosmogenic nuclide, atmosphere, aerosol

HTT35-13

会場:311

時間:5月1日 12:15-12:30

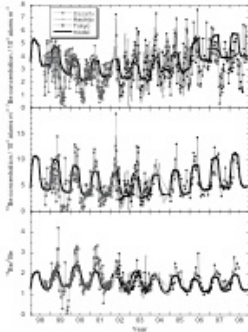


Fig. 1 The decadal variations of ${}^7\text{Be}$, ${}^{10}\text{Be}$ concentration and ${}^{10}\text{Be}/{}^7\text{Be}$ in the atmosphere in Dazaiifu, Hachijo-Island and Tokyo during 1998 to 2008.

福島事故以前における表層土壌中の放射性核種塩素 - 36 とヨウ素 - 129 の分布 Distributions of radionuclides Cl-36 and I-129 in surface soils before Fukushima accident

末木 啓介^{1*}; 北川 潤一²; 笹 公和¹; 高橋 努¹; 松村 万寿美¹; 木下 哲一³; 戸崎 裕貴⁴; 松四 雄騎⁵; 松崎 浩之⁶
SUEKI, Keisuke^{1*}; KITAGAWA, Jun-ichi²; SASA, Kimikazu¹; TAKAHASHI, Tsutomu¹; MATSUKURA, Masumi¹; KI-
NOSHITA, Norikazu³; TOSAKI, Yuki⁴; MATSUSHI, Yuki⁵; MATSUZAKI, Hiroyuki⁶

¹ 筑波大, ² 高エネルギー加速器研究機構, ³ 清水建設, ⁴ 産業技術総合研究所, ⁵ 京都大学, ⁶ 東京大学

¹University of Tsukuba, ²High energy accelerator research organization, ³Shimizu corporation, ⁴The National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, ⁵Kyoto University, ⁶The University of Tokyo

The long-lived radionuclides ³⁶Cl and ¹²⁹I are generated by the nuclear tests or interaction with cosmic rays. They have descended to ground or sea level surface, and they have remained ground surface afterward. We have measured amount of ³⁶Cl and ¹²⁹I by accelerator mass spectrometry (AMS) before nuclear accident at the Fukushima No. 1 nuclear power plant.

We have collected surface soil samples from the Sea of Japan to the Pacific Ocean at the equal-latitude cross-sectional areas (37° 20' N - 37° 30' N) in the south Tohoku, Japan. Inorganic chlorine in soil developed an improved leaching process that uses diluted HNO₃ as an extractant, activated carbon to remove organic matters without decomposition, and H₂O₂ to remove residual organic matters. After leaching from soils, the AgCl samples for AMS-target made from the obtained solutions at ordinary treatment. Isotopic ratios of ³⁶Cl/Cl were determined by AMS at Tandem Accelerator Complex, University of Tsukuba. Preparation of Iodine-129 target was following ordinary method. Isotopic ratios of ¹²⁹I/I were determined by accelerator mass spectrometry (AMS) at MALT, the University of Tokyo. Moreover, we determined ¹³⁷Cs concentrations by gamma spectroscopy and LOI (loss on ignition used by an electric furnace) which related to the amount of the organic matter in soil.

We obtained the distributions of radionuclides ³⁶Cl and ¹²⁹I in surface soils. The measured ³⁶Cl/Cl ratios of 34 surface soil samples which were about 0-10 cm in depth from 6 sites at the equal-latitude cross-sectional areas were between 0.1 × 10⁻¹³ and 4.1 × 10⁻¹³. It was shown that the ³⁶Cl/Cl ratios are lower at both sea sides. The concentrations of ¹²⁹I and ¹²⁹I/I ratios in surface soil (0-10 cm) at 28 points were determined to be 0.18 - 1.13 mBq/kg and 4.3 × 10⁻⁹ - 11.7 × 10⁻⁹, respectively.

The depth profiles of ³⁶Cl/Cl, ¹²⁹I and ¹³⁷Cs were examined that the difference of distribution. The concentrations are higher at close surface in each nuclide. The results of ³⁶Cl/Cl profiles in soil cores up to 1 m long suggested that bomb-produced ³⁶Cl remains in uppermost sections, typically for ~20 cm deep, in undisturbed soil layers. The observed close correlation between organic matter content and ³⁶Cl/Cl ratio implies that presence of biological activity contributes the retention of fallout ³⁶Cl in the surface zone. The concentration of ¹²⁹I is shown the highest in uppermost surface. It is thought that the influence of global fallout has been received until now. In both nuclides, a constant amount exists in deeper than 30 cm. The concentrations of ¹³⁷Cs are not detection in deeper than 40 cm. It is showed that ¹³⁷Cs was lower mobility in soils. Therefore, the sampling soils were not a disturbance.

キーワード: 加速器質量分析, 塩素 - 36, ヨウ素 - 129, 土壌

Keywords: AMS, Cl-36, I-129, soil