

平成 18 年度 修士学位論文  
加速器質量分析法による  
泥炭土の放射性炭素年代測定

奈良女子大学大学院  
人間文化研究科 博士前期課程  
物理科学専攻  
放射線物理学研究室  
武村 麻衣子

## 目次

<b>第1章 序論</b>	• • • 4
<b>第2章 放射性炭素年代測定法</b>	• • • 6
2-1 基本原理	• • • 6
2-2 較正・補正	• • • 8
2-2-1 放射性炭素濃度の変動	
2-2-2 同位体分別効果	
2-2-3 BP 年代から暦年代への較正	
2-3 測定方法	• • • 16
2-3-1 $\beta$ 線計数法	
2-3-2 加速器質量分析法	
<b>第3章 試料</b>	• • • 18
3-1 本実験の目的	• • • 18
3-2 試料採取地点	• • • 18
3-2-1 羅臼木隠湿原	
3-2-2 白馬岳	
3-2-2-1 神ノ田圃	
3-2-2-2 成城小屋湿原	
3-2-3 曽爾高原お亀池湿原	
<b>第4章 実験</b>	• • • 26
4-1 試料調整方法	• • • 26
4-2 京都大学タンデム加速器質量分析システム	• • • 31
4-2-1 測定方法	
4-2-2 装置	
4-2-3 測定ユニット	

第5章　測定実験結果	· · · 43
5-1 実験データ整理	· · · 43
5-2 BP 年代の算出	· · · 48
5-3 結果	· · · 51
5-3-1 BP 年代	
5-3-2 各試料の結果	
5-3-3 各地点ごとの結果	
第6章　考察	· · · 65
まとめ	· · · 67
参考文献	· · · 68
謝辞	· · · 69

## 第1章 序論 【1-4】

年代測定法には、年輪間隔の特徴を測定して年代を決定する年輪年代法、火山灰の層序を用いた年代測定など様々ある。加速器質量分析法(Accelerator Mass Spectrometry:AMS)は、年代測定の手法のひとつとしても用いられている。

AMS 法の開発は 1970 年代から活発になっている。1977 年、Müller により、サイクロトロン加速器の分解能の高い質量弁別効果を利用して  $^{10}\text{Be}$ 、 $^{14}\text{C}$  測定が計画された。また同年、カナダ・マクスター大学およびアメリカ・ロチェスター大学のタンデム型加速器を用いて  $^{14}\text{C}$  測定が行われ、成功している。その後、原子核物理学実験などに用いられていた既存の汎用タンデム加速器（加速電圧 5～12MV）が改造され、加速器質量分析計としての利用が可能となっている。また、アメリカ・General Ionex 社小型タンデム加速器（加速電圧 2～3MV）を用いた加速器質量分析専用のシステム（タンデトロン加速器質量分析計）が開発され、1981～1983 年にかけてアメリカ・日本・カナダ・イギリス・フランスに導入されている。

日本では、名古屋大学において、1981～1982 年にタンデトロン加速器質量分析計を導入、1983 年に  $^{14}\text{C}$  質量分析測定が開始された。さらに 1996 年には、高性能の新型タンデトロン分析系（第 2 世代タンデトロン）を設置している。

また 1980 年代から東京大学・京都大学等において汎用タンデム加速器を利用した開発研究が進められている。その他、大阪大学ではサイクロトロンを用いて質量分析の開発研究が行われ、国立環境研究所、核燃料サイクル開発機構、日本原子力研究所などでは、AMS の導入計画が進行している。筑波大学、九州大学でも、汎用タンデム加速器を用いた開発研究、実用的応用研究が行われている。

放射性同位体は、各種年代測定やトレーサーとしても利用されている。AMS は、考古学・人類学分野だけでなく、宇宙・地球科学、医学・薬学、農学・生物学、環境科学、核物理学の他、非常に広い分野の応用研究に用いられている。 $^{10}\text{Be}$ （半減期  $1.6 \times 10^6$  年）、 $^{14}\text{C}$ （半減期 5730 年）、 $^{26}\text{Al}$ （半減期  $7.4 \times 10^5$  年）、 $^{36}\text{Cl}$ （半減期  $3.6 \times 10^5$  年）、 $^{41}\text{Ca}$ （半減期  $3.0 \times 10^5$  年）、 $^{129}\text{I}$ （半減期  $1.6 \times 10^5$  年）など、様々な放射性同位体の AMS による測定が開発されている。

放射性炭素年代測定法は、1940 年代に Libby によって開発された。 $^{14}\text{C}$  が放射壊変する際に発生する  $\beta$  粒子を検出する、 $\beta$  線計数法である。しかし  $^{14}\text{C}$  を直接計数する AMS 法の開発以来、 $^{14}\text{C}$  年代測定への AMS 利用が多く行われるようになった。今日では、 $^{14}\text{C}$  年代測定件数の大部分を AMS 法が占めるようになっている。その理由として、従来の  $\beta$  線計数法に比べて、古い年代の試料を比較的精度良く年代決定できること、少量の試料を短時間の測定をすることで年代決定できること等があげられる。

AMSの応用分野として最も重要であろう考古学・人類学分野においても、<sup>14</sup>C年代によって測定され導かれた実年代は、従来の土器・石器などの型式で決める手法で導かれた相対年代に加えて、人間の活動を時間的に理解するためのものとして非常に重要な役割を果たしている。人類史を考える上で、大変重要な年代測定法のひとつとなっている。

本研究は、京都大学の加速器質量分析計における<sup>14</sup>C年代測定で、このシステムとしては最善と考えられる結果が比較的安定して出せるようになったこと、及び、このシステムが一般の研究者にも開放されたことを受けて、日本各地の湿原泥炭層年代測定を、共同研究として行ったものである。

## 第2章 放射性炭素年代測定法

天然に存在する炭素同位体には、安定同位体である<sup>12</sup>C、<sup>13</sup>C、放射性同位体である<sup>14</sup>Cがある。放射性炭素年代測定法は、炭素を含む物質中の安定同位体に対する<sup>14</sup>Cの濃度（比）を測定することで、その物質の年代を決定する方法である。

ここでは、放射性炭素年代測定法の原理について述べる。

### 2-1 基本原理 【2-4】

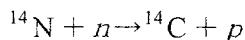
1947年、放射性炭素<sup>14</sup>Cが天然に存在することをシカゴ大学のW.F.Libbyが発見した。1950年までには、放射性炭素年代測定法が開発されている。

天然に存在する炭素の組成比は、およそ

$$^{12}\text{C} : ^{13}\text{C} : ^{14}\text{C} = 0.9889 : 0.0111 : 1.2 \times 10^{-12} \quad \cdots(1)$$

である。

放射性同位体<sup>14</sup>Cは、主に成層圏で、宇宙線が大気と衝突した際に発生する中性子と窒素原子核との(n, p)反応により生成される。



<sup>14</sup>Cは、絶えず降り注ぐ宇宙線により、一定の割合で生成される。一方、生成された<sup>14</sup>Cは半減期 $T_{1/2}$ （5730年）で $\beta$ 崩壊する。このため放射平衡が成り立ち、大気中の<sup>14</sup>C濃度は常にほぼ一定に保たれる。<sup>3</sup>

炭素は酸化し二酸化炭素CO<sub>2</sub>の形をとる。<sup>14</sup>Cも生成後、直ちに<sup>14</sup>CO<sub>2</sub>となる。炭素同位体の化学的性質は同じであるため、他の炭素同位体と同様に海洋中・大気中に混合する。そして光合成・食物連鎖といった生命活動により生物中に取り込まれ、地球規模での炭素循環が行なわれる。こうして原理的には、<sup>12</sup>C及び<sup>13</sup>Cに対する<sup>14</sup>C濃度は全ての生物において組成比が等しくなる。

生物が死ぬと大気や他の生物間での炭素交換が行われなくなるので、放射性同位体である

$^{14}\text{C}$ のみが半減期  $T_{1/2}$  で減少する。従って、死んだ生物中の  $^{14}\text{C}$  濃度が分かれば、大気中の  $^{14}\text{C}$  濃度（組成比）との比較により死後の経過年数を決定することができる。

生物の死後経過した時間を  $t$  (年)、その時の  $^{14}\text{C}$  濃度を  $N$ 、放射平衡時の  $^{14}\text{C}$  濃度を  $N_0$  とする。先にも述べたように、生物の死後、 $^{14}\text{C}$  濃度は減少する一方なので、

$$N/N_0 = \exp(-\lambda t) \quad \dots(2)$$

という関係が成り立つ。

ここで  $\lambda$  は崩壊定数である。平均寿命  $\tau$  の逆数で、 $T_{1/2}$  を用いて表すと

$$\lambda = \ln 2/T_{1/2} \quad \dots(3)$$

である。

従って、死後経過時間  $t$  は、

$$t = -(\lambda^{-1}) \cdot \ln(N/N_0) \quad \dots(4)$$

で与えられることになる。

現在知られている  $^{14}\text{C}$  の半減期  $T_{1/2}$  の値は、 $5730 \pm 40$  年である。しかし  $^{14}\text{C}$  を用いた年代測定では、国際的に Libby の値  $5568 \pm 30$  年を用いることが慣習であり、これを用いると(4)式は

$$t = -8033 \cdot \ln(N/N_0) \quad \dots(5)$$

と表される。

このようにして求められた  $^{14}\text{C}$  年代値は、BP 年代(before present)と呼ばれる特別な年代として示すことが radiocarbon community の国際会議により約束されている。BP 年代とは、AD1950(西暦 1950 年)を基準としてそれより以前を正、それ以後を負とした特殊な暦である。測定結果を同じ半減期、同じ基準年を用いて示すことで議論し易くした  $^{14}\text{C}$  年代測定の共通言語のようなものである。0 BP=AD1950 と定義されているが、例えば、50BP が AD1900 を意味するのではない。BP 年代から暦年代への変換に関しては、2-2 補正・較正項で述べる。

ただし、測定された  $^{14}\text{C}$  濃度を BP 年代に変換しない場合はその限りではない。測定結果の

利用の仕方によって用いる半減期が異なる。例えば試料採取時の比放射能に換算する場合、 $^{14}\text{C}$  の半減期  $T_{1/2}$  の値は、Libby の値ではなく 5730 年を用いる。

年代決定のための  $^{14}\text{C}$  濃度測定では、試料の  $^{14}\text{C}$  濃度を決定するために  $^{14}\text{C}$  濃度が既知の標準試料と未知試料（年代を求めたい試料）とを交互に測定し、相対測定を行う。これは  $^{14}\text{C}$  濃度の絶対測定が困難なためである。

基準年である AD1950 の  $^{14}\text{C}$  濃度に相当すると決められた  $^{14}\text{C}$  標準濃度(modern activity)は、NIST(米国国立標準・技術研究所、National Institute of Standards and Technology、旧名称：NBS)の蔥酸標準体の  $^{14}\text{C}$  濃度にある定数をかけたもので定義されており、標準試料には NIST の蔥酸標準体を用いる。

この蔥酸標準体は、最初に供給された OX1 と、それが少なくなったため新しく作成・供給された OX2 との 2 種類がある。 $^{14}\text{C}$  標準濃度は、OX1 の  $^{14}\text{C}$  濃度の 0.95 倍で定義された。また OX2  $^{14}\text{C}$  濃度は、OX1  $^{14}\text{C}$  濃度の 1.2736 倍であることから、 $^{14}\text{C}$  標準濃度は OX2  $^{14}\text{C}$  濃度の 0.7459 (=0.95/1.2736) 倍と表される。

$^{12}\text{C}$  標準濃度に対する  $^{14}\text{C}$  濃度の割合( $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比)を( $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ )と表記すると、実際の測定では  $(^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{sample}} / (^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{AD1950}}$  (未知試料  $^{14}\text{C}$  濃度の、 $^{14}\text{C}$  標準濃度に対する割合) を求めることになる。この比を(5)式の  $N/N_0$  に代入すると、BP 年代が得られる。

以下  $^{12}\text{C}$ 、 $^{13}\text{C}$ 、 $^{14}\text{C}$  各同位体の濃度比も同様に表す。

## 2-2 補正・較正【2-10】

### 2-2-1 放射性炭素濃度の変動

$^{14}\text{C}$  濃度の初期値は地球上で常に一定であると仮定して年代を算出したが、これは厳密には正しくない。実際の初期  $^{14}\text{C}$  濃度は地域差や経年変動を考慮して決定される必要がある。

まず、地域差について考える。大気中の  $^{14}\text{C}$  生成量は宇宙線の強度が高度や緯度に依存するためそれに応じて変化するが、対流圏内では大気循環により速やかに均一化と考えられている。 $^{14}\text{C}$  は大気圏から水圏や生物圏、そして堆積物などの炭素リザーバー間を  $^{12}\text{C}$ 、 $^{13}\text{C}$  とともに循環していくが、この炭素循環は  $^{14}\text{C}$  半減期  $T_{1/2}$  に対してゆるやかであるため、生成の

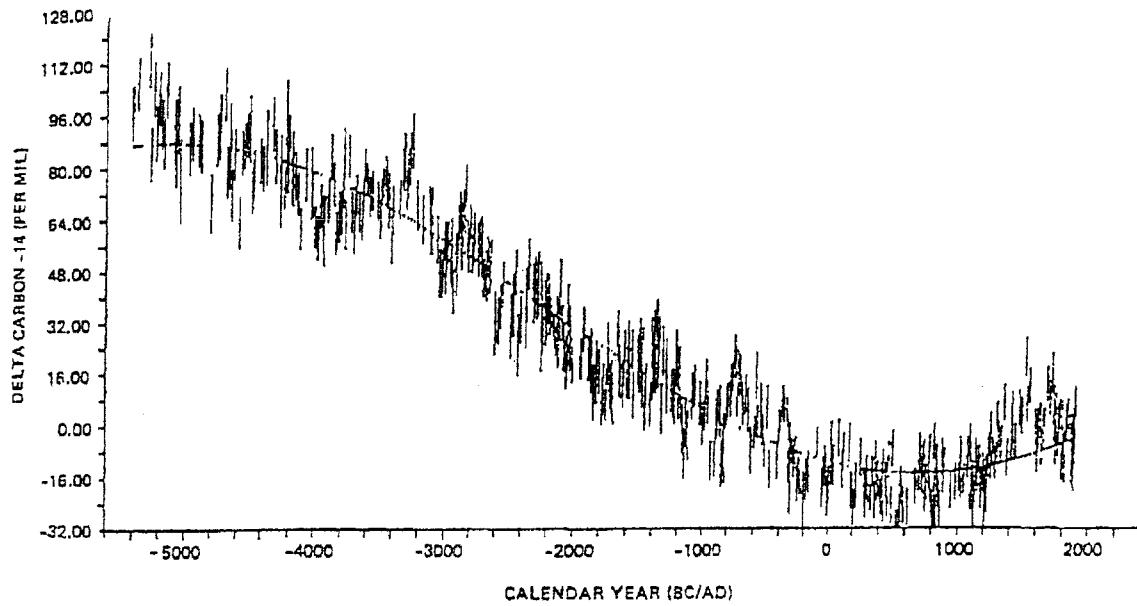
場である大気に比べて他のリザーバーでの<sup>14</sup>C濃度は低くなる(炭素リザーバー効果)。ただし、大気中の二酸化炭素を光合成で固定する陸生植物に関しては、他のリザーバーを経ずに大気中の二酸化炭素を直接取り込むことになるため光合成が行われる過程を考慮すれば<sup>14</sup>C濃度はある一定値をとるとみなすことができる。光合成により炭素が固定される過程や試料を測定に適した純粋な炭素試料に調整する過程などでは2-2-2項で述べる同位体分別効果が起こることが知られており、測定された試料の<sup>14</sup>C濃度には補正が必要である。

<sup>14</sup>C濃度の経年変化について説明する。大気圏に入射する宇宙線の強度は太陽活動や地磁気の変動により変化し、<sup>14</sup>C生成量も変動する。太陽の黒点数と<sup>14</sup>C濃度との間には負の相関があることが知られている。すなわち、太陽活動が活発な時期には<sup>14</sup>C生成量は少なく静穏時には<sup>14</sup>C生成量が多くなる。それは、太陽活動が活発な時期は太陽の周りの磁場が強くなりさらに大量の太陽プラズマが地球周辺に放出され銀河から飛来する宇宙線の大気圏侵入を妨げるためである。また、宇宙線の一部は地磁気によって跳ね返されるため、地磁気の強度の変動が大気の<sup>14</sup>C濃度に影響する。地磁気の変動が火山の溶岩や土器などに含まれる粘土成分が熱い状態から冷める時に、その時の地磁気の状態を保存する現象を利用し、年代が明らかな試料を測定することで調べられている。こうして得られた地磁気強度の長期変動から過去2000年間で地磁気強度は減少していることがわかっている。

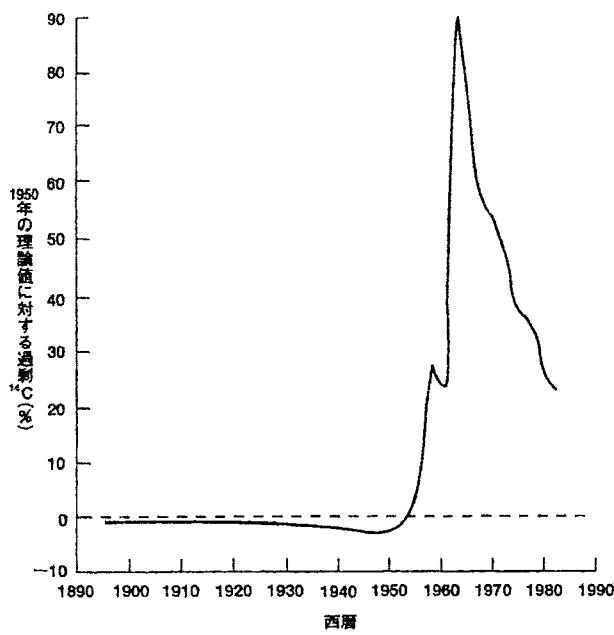
[図1]は大気の<sup>14</sup>C濃度経年変動を表している。これは年輪年代法によって年代が分かっている樹木の年輪の<sup>14</sup>C濃度を測定し、それを大気の濃度に換算して求めたものである。大気の<sup>14</sup>C濃度を、基準年であるAD1950の<sup>14</sup>C濃度に相当する<sup>14</sup>C標準濃度からのずれを千分率(‰)で示したものを縦軸に、既知の年輪の年代を横軸に表している。

<sup>14</sup>C濃度の経年変化は宇宙線強度の変化の他、次に述べるような人為的な影響を考慮して決められる。19世紀後半以降の化石燃料の消費増加は<sup>14</sup>Cをほとんど含まない二酸化炭素を大気中に供給し<sup>14</sup>C濃度を希釈したこと(化石燃料効果)、及び、1945年以降の核実験により宇宙線由来でない多量の<sup>14</sup>Cを発生させたこと(爆弾効果)である。[図2]

<sup>14</sup>C濃度の経年変化が他の年代測定法を用いて調べられることを利用して、BP年代を曆年代に変換する方法が開発されている。(2-2-3項)



[図 1] 大気の $^{14}\text{C}$ 濃度経年変動 [5]



[図 2]  $^{14}\text{C}$ 濃度に対する人為的な影響 [2]

1950 年の $^{14}\text{C}$ 濃度理論値を基準に、縦軸に基準に対する過剰 $^{14}\text{C}$ 濃度の比率を横軸に年代をとって表している。化石燃料効果の影響とは逆に、1950～1960 年代の核実験によって $^{14}\text{C}$ 濃度が過剰に高くなつたことがわかる。

## 2-2-2 同位体分別効果

環境中の炭素は(1)の組成比をとるが、厳密には、個々の物質中の $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  比は物質中により大きく異なることが知られている。[図 3]

生物における同位体組成は、その物質が合成される前の原料物質の化学反応・生物反応過程に依存している（同位体分別効果）。様々な理由から同位体組成が変化することを同位体分別と呼ぶ。同位体分別が起こる理由としては、重力の効果や拡散、化学平衡などがあるが、いずれも同位体の質量差に因る。

炭素同位体である $^{12}\text{C}$ 、 $^{13}\text{C}$ 、 $^{14}\text{C}$ においても、化学的には区別されないが、生物活動では質量数の小さい炭素の方が優先的に取り込まれる傾向がある。同位体分別効果は質量効果で効いてくるため、 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比の場合は $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  比の 2 乗倍であると考えられる。一般にこの仮定のもと、 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比に対する補正を行う。

PDB 標準試料(*Blemnella americana*)の $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  比を基準に、様々な物質の $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  比を以下のように定義する。

$$\delta^{13}\text{C} (\%) = \left[ \frac{(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{sample}}{(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{PDB}} - 1 \right] \times 1000 \quad \dots(6)$$

$(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{PDB}$  が PDB 標準試料、 $(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{sample}$  が未知試料の $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  比である。

植物は、大気中の二酸化炭素を光合成により固定する際、異なった化学反応プロセスを利用するため同位体分別の違いが生じる。カルビン・ベンソン回路の C3 植物、ハッチスラック回路の C4 植物、両者の中間の CAM 植物などがある。従って、植物の  $\delta^{13}\text{C}$  値は植物の種類に依存して異なる。

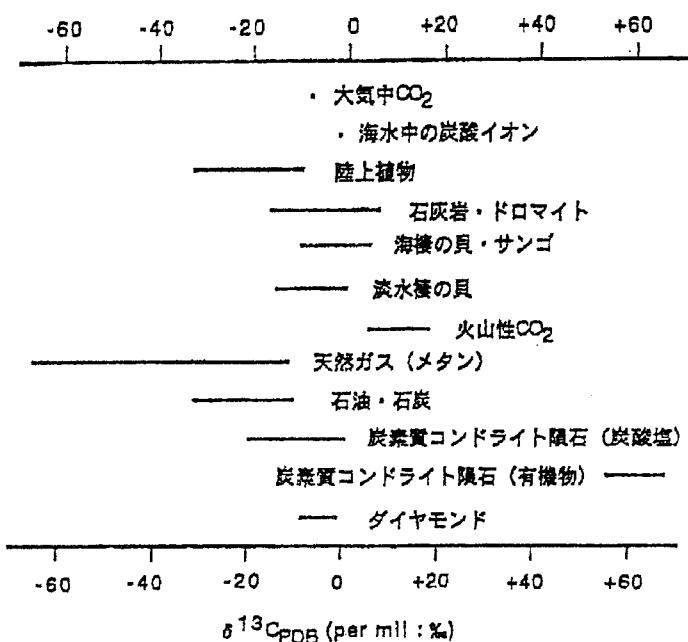
同位体分別は試料となる物質が自然界において合成される過程で起こる他、試料調整過程や質量分析計を用いての $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比測定過程でも起こる可能性がある。(第 4 章)

試料調整過程で炭素の反応収率が 100% に近い場合には、同位体分別効果はほとんど見られないが、反応収率が 70~80% である場合、2~3% の同位体分別効果が起こることが知られている。[図 4]

同位体分別の補正は、試料の  $\delta^{13}\text{C}$  値が本来は -25‰ であったとし、それを基準として、各実験で測定された  $\delta^{13}\text{C}$  値との差を用いて補正する。-25‰ は、陸生植物の  $\delta^{13}\text{C}$  平均値である。[表 1] 測定の際は標準試料の $^{14}\text{C}$  濃度に対しても、 $^{14}\text{C}$  標準濃度に対する測定された $^{14}\text{C}$  濃度の割合として計算されるので、同様に補正が必要である。

試料の $^{13}\text{C}$  濃度は、 $^{14}\text{C}$  濃度と同様に、加速器により測定された試料の $^{13}\text{C}$  濃度と  $\delta^{13}\text{C}$  値が既知の標準試料 OX2 に対する比 $(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{sample}/(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{OX2}$  で決定される。そのため、加

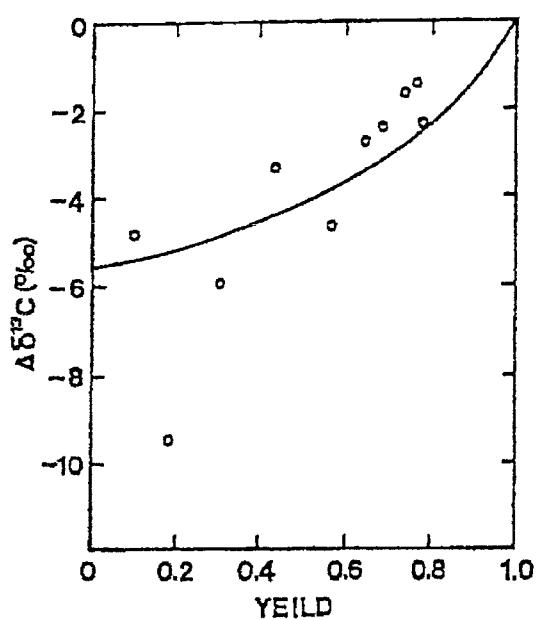
速器を用いた測定で起こる同位体分別効果が試料と標準試料とで同じ割合で生じ、互いに打ち消しあうことを期待して、標準試料を含む全ての試料について同一の試料調整法を用いて性質の揃った標的を準備することが重要である。



試料	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)
樹木・泥炭・C3型植物	-25
淡水植物	-16
乾燥地域の草	-13
海洋性植物	-12
トウモロコシ	-10
大気の二酸化炭素	-8
海洋性の炭酸塩	0

[図 3] 天然の炭素に含まれる  $\delta^{13}\text{C}$  [6]

[表 1]  $\delta^{13}\text{C}$  平均値 [2]



[図 4] 反応收率と同位体分別効果 [7]

### 2-2-3 BP 年代から暦年代への較正

2-1 項で述べた通り、BP 年代は 0 BP=AD1950 と定義されるが、単純な引き算で直接暦年代に置き換えることはできない。それは循環中の  $^{14}\text{C}$  濃度が常に一定であることを前提としているためである。

実際の年代を知る手掛かりを得るために、年代が分かっているものを試料として測定することで BP 年代を暦年代に対応させる手法が採られている。こうして得たデータから BP 年代-暦年代較正曲線(calibration curve)と呼ばれる曲線が作成される。この結果から  $^{14}\text{C}$  濃度の経年変化を調べることができる。

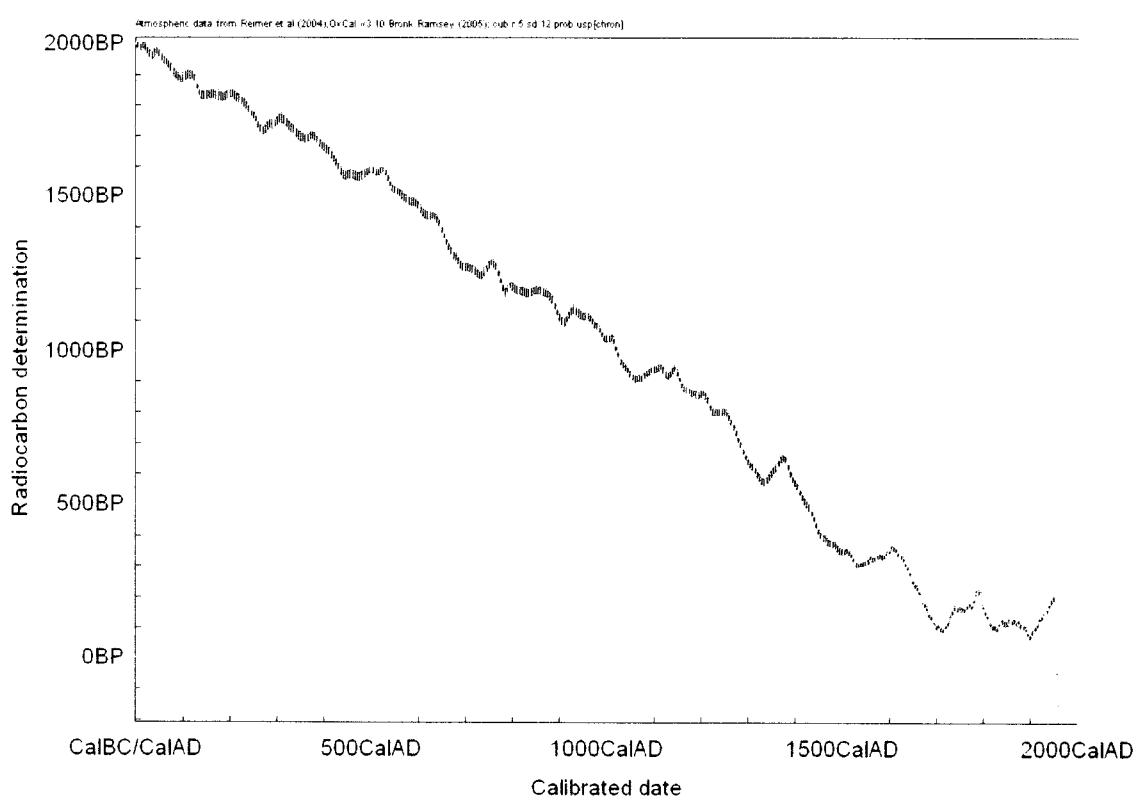
日本での経年変動の研究としては、屋久杉を用いた研究などがある。年輪年代法の利用の他、湖沼や海洋の年縞堆積物を  $^{14}\text{C}$  年代測定法で測定し、較正曲線を得る方法もある。年縞は、季節によって堆積物が変化するためにある特定の性質を持った堆積物の層が周期的(1 年毎)に現れているもので、年輪と同様、この層を数えることで堆積年代を求めることができる。堆積層に搅乱があると編年は不可能であり、年縞は限られた場所で形成される。日本では水月湖が知られており、37400 年前(暦年代)の  $^{14}\text{C}$  濃度経年変動が得られている。

暦年代を求める際、現在一般的に利用される較正曲線は、欧米の巨木を年輪年代学の手法を用いて年輪を繋げ  $^{14}\text{C}$  濃度を測定したデータと、サンゴ年輪をウラン・トリウム年代測定法及び  $^{14}\text{C}$  年代測定法で測定したデータを用いて作成された、BP 年代-暦年代較正曲線である。樹木年輪を用いて 11850 年前(暦年代)まで、海洋底の縞状堆積物・サンゴ化石等を用いて 11850-15585 年前、サンゴ化石のみを用いて 15585-40000 年前の間のデータがとられている。

#### [図 5]

現在でも更に信頼できる較正曲線を構築するために、異なる方法を用いて較正曲線及びそこから導き出される  $^{14}\text{C}$  濃度の経年変動を求める研究が進んでいる。

文献【8,9】のデータをもとに作成された較正プログラム【10】は広く公開されており、BP 年代から暦年代への変換は容易に実行できるようになっている。



〔図5〕 BP 年代・曆年代較正曲線【10】

## 2-3 測定方法 【2-4】

$^{14}\text{C}$  濃度測定において、現在では、2-3-1 項で述べる  $\beta$  線計数法より 2-3-2 項で述べる加速器質量分析法が主流である。しかし、量が豊富で比較的若い年代の試料であれば、 $\beta$  線計数法の方が加速器質量分析法より統計誤差を小さくできる場合があるため、試料の条件によって測定方法を選ぶ必要がある。

### 2-3-1 $\beta$ 線計数法

$^{14}\text{C}$  は、放射崩壊して  $^{14}\text{N}$  になると  $\beta$  線を放出する。試料の放射能は  $^{14}\text{C}$  濃度に比例するため、放射崩壊する際に放出する  $\beta$  線を計数することにより、試料の  $^{14}\text{C}$  濃度を測定することが可能である。

Libby によって 1950 年に開発された  $^{14}\text{C}$  濃度測定では、Screen-wall counter と呼ばれる GM 計数管が用いられた。Libby は GM 計数管のカソードシリンダー内部に試料から調整したアモルファス炭素を塗り、アルゴン-エチレン混合気体を増幅ガスとして封入し、 $\beta$  線計数測定を行なった。

この方法は、試料調整や固体炭素を塗る際に放射性降下物による汚染の可能性や、試料が  $\beta$  線を自己吸収するため計数効率が低下するなどの欠点がある。そこで、試料をメタン、エチレン、エタン、二酸化炭素などの気体にしての測定（気体比例計数管法）や、ベンゼン、メタノール等の液体にしての測定（液体シンチレーション計数法）が行なわれるようになった。

(1) からも分かるように  $^{14}\text{C}$  は極微量であり現代の炭素 1g でも 4~5 秒に 1 個しか壊れないため、多量のサンプル (g 単位) を長時間 (数十時間) かけて  $\beta$  線計測しなければならない。

また、測定限界は 3~4 万年前までである。

### 2-3-2 加速器質量分析法

加速器質量分析法(Accelerator Mass Spectrometry:AMS)では、測定試料をイオン化して電場で加速し、磁場によって質量を分析する方法が一般に採られている。

炭素同位体の質量分析を考えた場合、 $^{14}\text{C}$  は  $^{12}\text{CH}_2^-$ 、 $^{13}\text{CH}^-$ 、 $^{14}\text{N}$  等同重分子イオンとの

分離が困難であるため定量測定ができず、単純な質量分析法では測定は不可能である。

タンデム型加速器を用いた AMS 法では、まず測定試料から目的元素が負イオン化され、ターミナルの高電圧に向かって前段加速される。この時点で、 $^{14}\text{N}$  の分離が容易に行なえる。窒素原子の負イオンは非常に不安定なため $^{14}\text{N}$  の負イオンは加速できないからである。ターミナル部分に設置した荷電変換過程で正イオンへ変換され、更に加速される。 $^{12}\text{CH}_2^-$ 、 $^{13}\text{CH}^-$  等 $^{14}\text{C}$  の同重分子イオンはこの荷電変換過程で分解され、 $^{14}\text{C}$  と同様に加速される。しかし、加速部を通過した正イオンは設置された磁場による運動量分析を受け、質量によって分別される。

この段階で $^{14}\text{C}$ だけを選別できているはずだが、分別が不十分な場合は、更に、静電場による分析、半導体検出器によるエネルギー分別を受ける。

AMS 法は、 $\beta$ 線計数法よりバックグラウンドが少なく検出感度が良い。しかし、ビーム透過効率の安定化などによってシステムの測定精度・再現性の向上が必要である。

$\beta$ 崩壊を待つのではなく $^{14}\text{C}$ の量（実際の測定では $^{14}\text{C}$ 濃度）を測定することから、炭素試料の量は（mg程度）で良く、一試料の測定時間も30分～数時間程度である。

また、測定限界が6～6.5万年前までであり、自然放射能の影響を受けないため、3万年以上前の試料に関しての正確さは、 $\beta$ 線計数法より高い。

## 第3章 試料

### 3-1 本実験の目的

湿原形成の要因のひとつである、降水量（特に冬季）に着目する。泥炭層の堆積速度（堆積年代）が明らかになることで、周辺地域の気候及び気候変動を検討することができる。

そこで、日本各地の湿原の泥炭土に含まれている植物遺体に対して加速器質量分析法による放射性炭素年代測定を行い、試料を採取した各湿原測定地点の形成開始時期や形成速度を確認する。また、他の年代報告のある層との比較を行う。

### 3-2 試料採取地点 【11-13】

今回、3地域の4湿原の試料について測定実験を行った。

#### 3-2-1 羅臼木隠湿原

北海道 羅臼木隠湿原は、知床横断道路沿いに位置し、幅が広い三日月状の平面形を示す。南西—北東にのび、長軸方向の長さは約250m、幅は最も広い部分で150m弱である。

知床半島の脊梁部を走る第四期火山群のほぼ中央部に位置する遠音別岳北東の天頂山（高度約1046m）から流出した溶岩流堆積面上の小凹地、それによるせき止め湖岸に形成された湿原である。多雪地帯の傾斜が緩やかな地形に形成するケルミーシュレンケ複合体などが発達した高層湿原である。

知床半島は、ポーラーフロントの北限付近にあたる。降水量、降雪量は、宇登呂側より羅臼側の方が大きく、特に知床横断道路沿いにおいて、夏（7月1日～10月1日）の降水量は知床岬付近が最大である。相対的な降水、降雪量が多いため、降水量変化を捉えるのに適している。

K-N-50 地点は、大小数多くの固定浮島を抱えた池塘の上を通るように設けた、北測線上にある。K-65 地点は、南西端から湿原中央部へ向かって設けた測線上にある。両地点とも池縁またはその周辺であるが、K-65 地点の方が高位にあり、地下水位は池の水位に大きく影響を受け

るのに比べて、K-N-50 地点は湧水地点の近くである。

ヒラー型ボーラーによるボーリングを行って、試料採取されている。

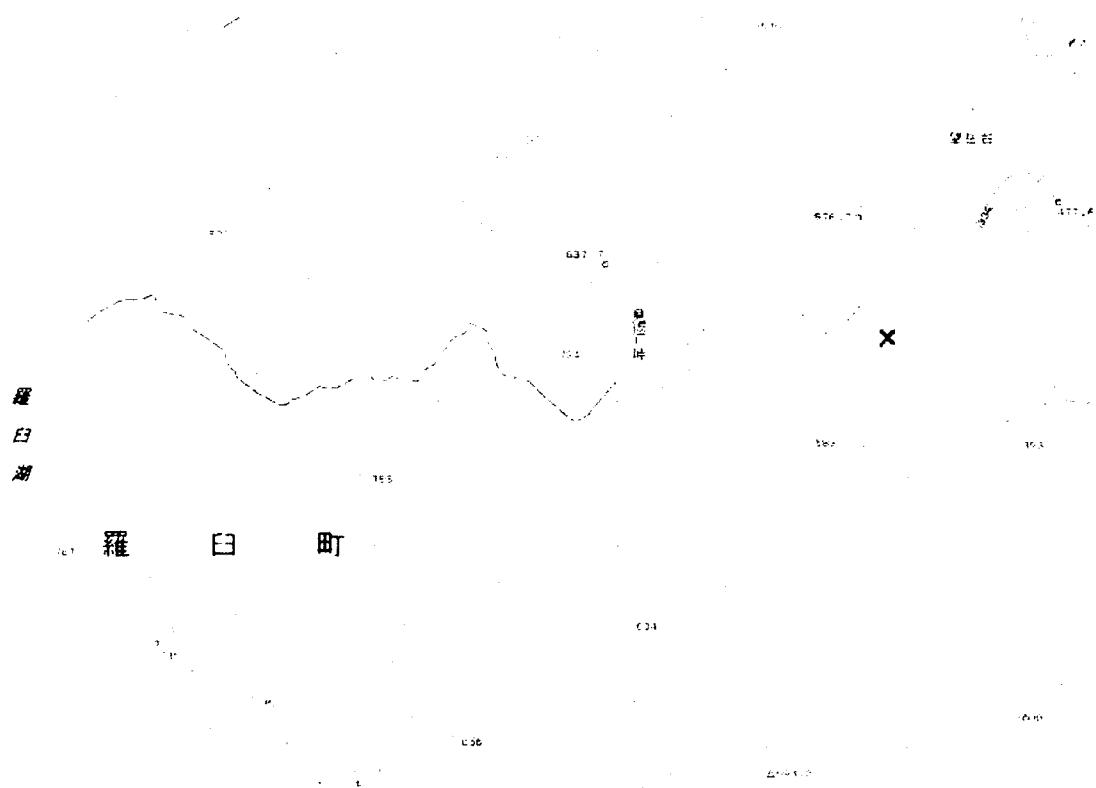
試料を採取した層のボーリング地点名と、地表からの距離を示す。

北側線 50m 地点 (K-N-50)

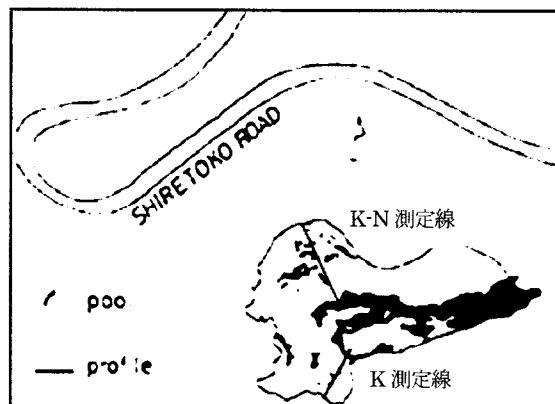
- 55-60cm
- 75-80cm
- 95-100cm
- 115-120cm
- 135-140cm
- 155-160cm
- 175-180cm
- 190-195cm
- 200-205cm (基底付近層)

65m 地点 (K-65)

- 90-95cm
- 105-110cm



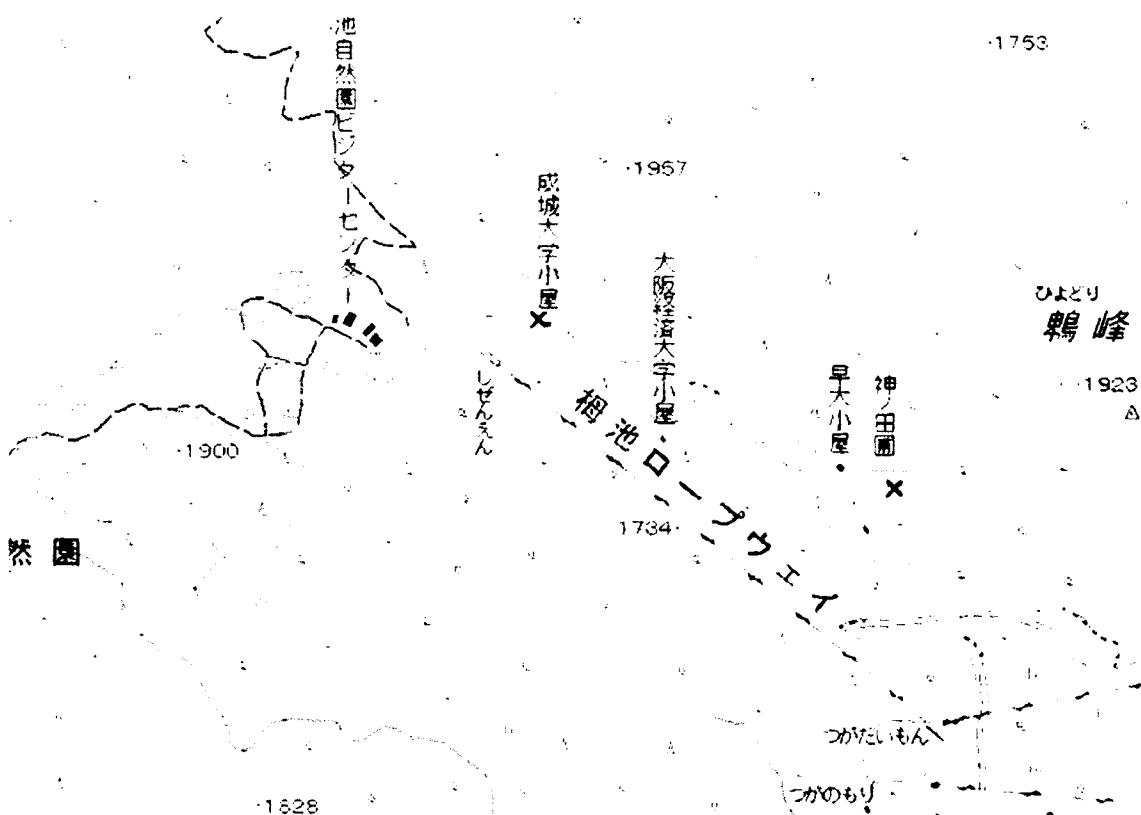
[図 6] 羅臼木隠湿原 (赤色×)



[図 7] 羅臼木隠湿原における測定線 (北側: K-N 測定線 南側: K 測定線) 【11】

### 3-2-2 白馬岳

長野県 白馬岳山頂付近（白馬山荘、標高約 2840m）では、夏季（7、8月）の半旬降水量が 100mm を超えることがあり、8月には台風、低気圧などにより強い雨に見舞われやすい。ヒラー型ボーラーまたはボーリングステッキによるボーリングを行っている。



[図 8] 白馬岳 神ノ田園と成城小屋湿原

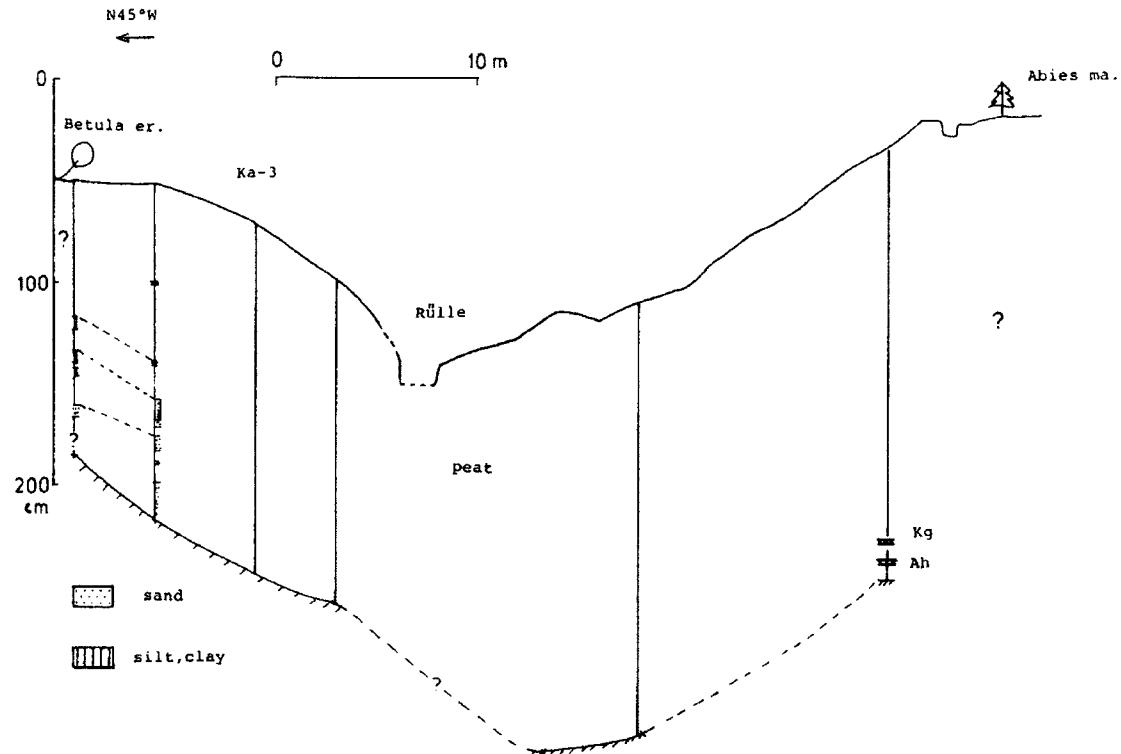
### 3-2-2-1 神ノ田圃

鶴峰（標高約 1907m）の南西側に発達した平滑急斜面直下の小さな平坦地に分布する。東西約 150m、南北約 50m の菱形に近い平面形を示す。湿原の標高は約 1710m の高層湿原で、谷となっている南側には比高 10 数 m のなだらかな高まりがある。湿原の北側背後の急斜面を浅く刻むガリーが北西端から水路となって流入し、途中湿地溝に変化、湿原の低所を緩やかに蛇行しながら横断して東端から排水する。湿地溝を境とし、南北で微地形が異なる。

試料を採取した層のボーリング地点名と、地表からの距離を示す。

#### Ka-15 地点

- 95-100cm
- 166-170cm



[図 9] 白馬岳神ノ田圃地形断面図【12】

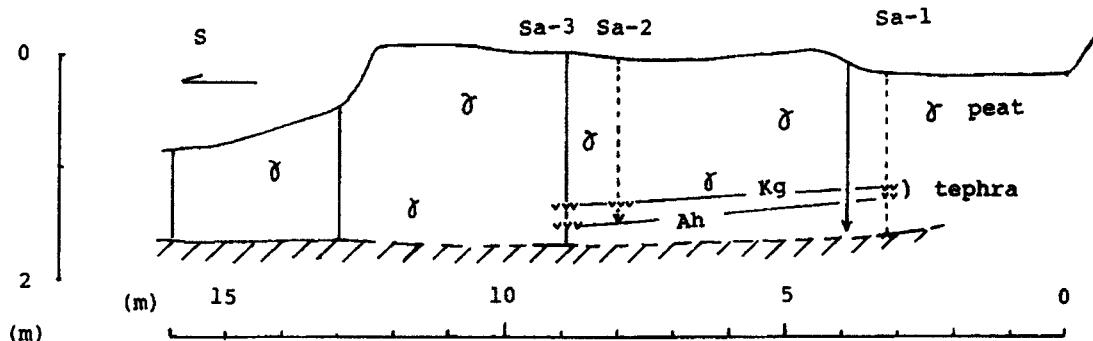
### 3-2-2-2 成城小屋湿原

神ノ田圃の北西約700mに位置し、白馬大池火山の最高点である乗鞍岳（標高約2437m）の南東側中腹に位置する成城大学小屋（標高約1820m）のすぐ北側背面に分布する。東西約40m、南北約20mの小さな湿原で、中央付近にはケルミーシュレンケ複合体が発達している。消雪時期は5月下旬～6月上旬で、湿原への土砂供給域となるのは北側に連なる平滑斜面である。

試料を採取した層のボーリング地点名と、地表からの距離を示す。

#### Sa-1 地点

- 70-80cm
- 110-115cm



〔図10〕 白馬岳成城小屋湿原地形断面図【12】

### 3-2-3 曽爾高原お亀池湿原

お亀池湿原（約 700m）は、室生火山岩類から構成され、奈良・三重県境に広がる俱留尊山（標高約 1038 m）の南南西麓に分布する。地滑り起源と推測される凹地の底部に発達した約 200×100m の魚型の平面形を示す。

年降水量は、約 1800mm、暖かさの指数は約 86°C・月、温暖帯と冷温帯の境界に位置する。曾爾高原一帯の降雪は、冬型の気圧配置でなく南岸低気圧によってもたらされる。

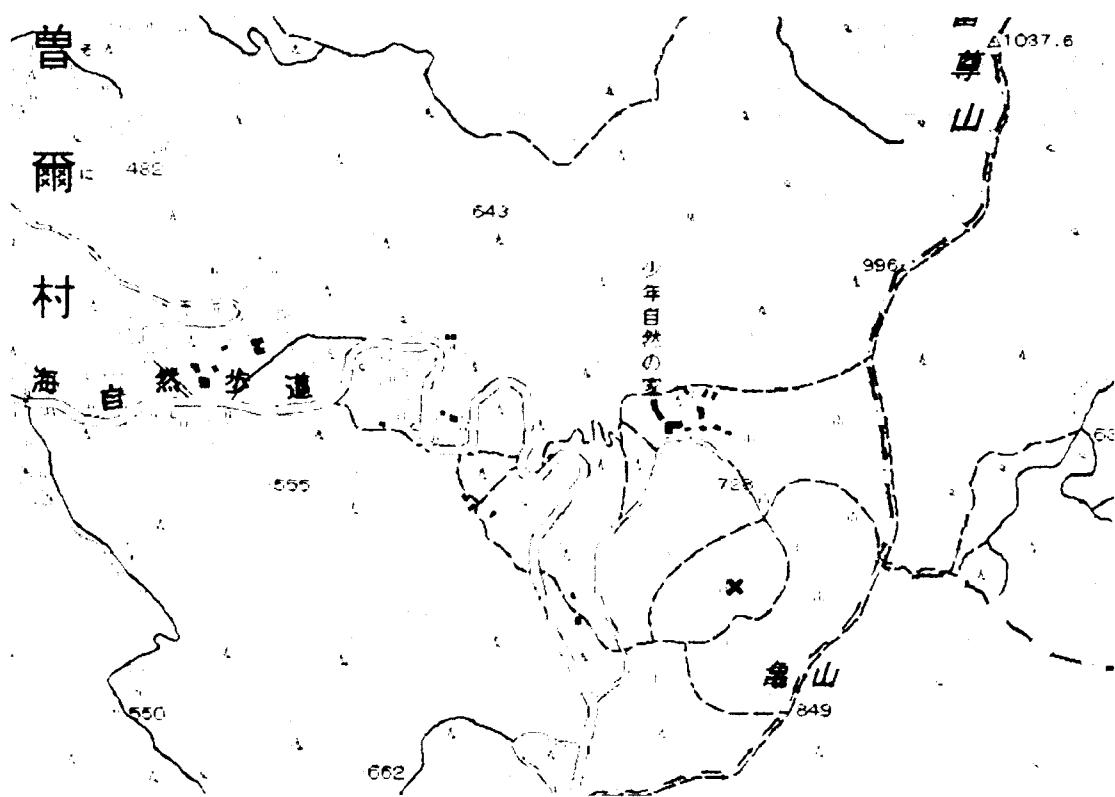
ヒラー型ボーラーによるボーリングを行っている。

Ok-40 地点は、お亀池湿原の中でも池のほぼ中央部にあたる。同地点の堆積物は、上部層、中部層、下部層に大分される。上部層は、未分解の植物遺体が多い非常にルーズな泥炭で、ほとんど試料採取ができない。

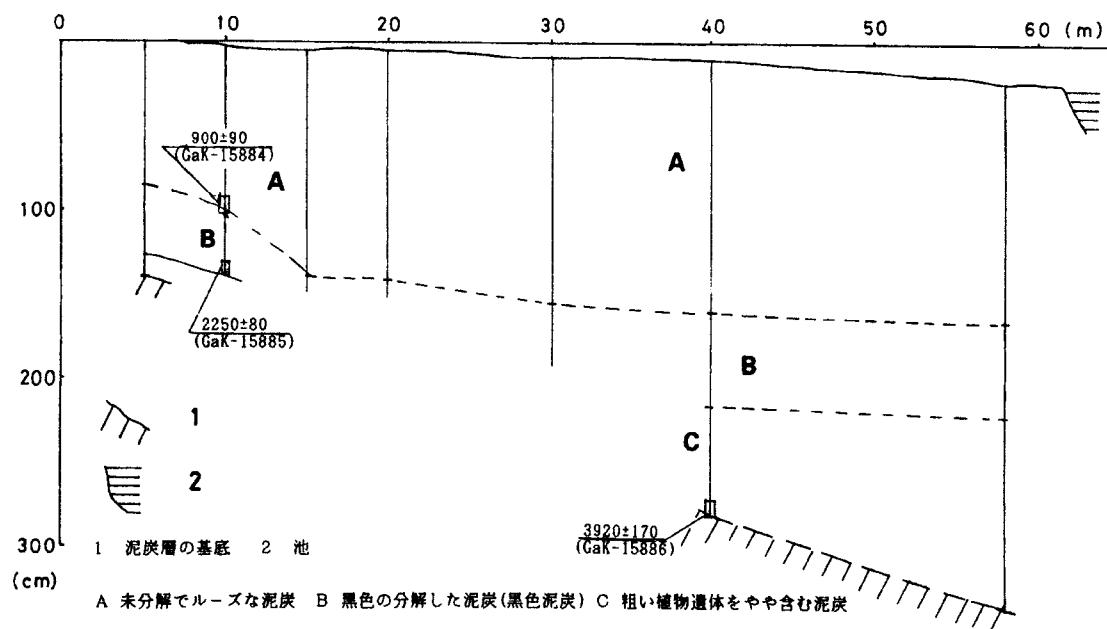
試料を採取した層のボーリング地点名と、地表からの距離を示す。

#### 40m地点 (Ok-40)

- 155-160cm (上部層)
- 205-220cm (中部層)
- 255-260cm (下部層、基底直上層)



[図 11] 曾爾高原お亀池湿原（赤色×）



[図 12] 曾爾高原お亀池湿原地形断面図および堆積物【13】

## 第4章 実験

### 4・1 試料調整方法 【3,4,8,15】

加速器質量分析法を用いた<sup>14</sup>C測定の場合、イオン源に装填される試料ターゲットは元素状態である必要がある。

その際、グラファイトターゲットの方がビーム強度や純度の面で、他の無定形炭素に比べて優れていることが知られている。

以下、試料調整方法を作業の流れに沿って説明する。

#### 前処理

木材・木炭・骨・貝・泥炭等、試料によって処理が異なる。

ここでは、本実験で行った試料の調整方法について述べる。

採取した試料は、純水を用いて表面の汚染を除去する。

酸-アルカリ-酸処理(Acid-Alkali-Acid:AAA)を行い、セルロースを抽出する。セルロースは非常に安定な物質であるので、分解はほとんどない。

処理	試薬	役割
酸処理	塩酸 (1.2N)	環境汚染(炭酸塩)の除去 細胞壁に含まれる一部の成分の除去
アルカリ処理	水酸化ナトリウム 水溶液 (1.2N)	環境汚染(フルボ酸・フミン酸)の除去 セルロースの繊維間を埋める成分(ヘミセルロース)の除去
酸処理	塩酸 (1.2N)	アルカリ処理中に生成した炭酸塩の除去

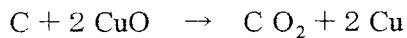
酸からアルカリ処理、アルカリから酸処理へ移る際、そして AAA 処理の終了時は、薬品が試料中に残らないようによく洗浄する必要がある。

AAA 処理が終了するとよく乾燥させる。

本実験の試料の多くは草の纖維が多くたが、一部に木片があった。木材試料に関して、セルロースのみの抽出を行うと、多くの有機物が除去され多量の試料を必要とする。また、次亜塩素酸ナトリウムを使用した危険な化学処理を行うために、本実験では、木片試料に関しても AAA 処理のみ行っている。

### ガス化

乾燥させた試料は、線状酸化銅とともにバイコール管に真空封入する。450°Cで1時間、850°Cで1.5時間と2段階加熱を行い、ガス化する。



### 精製

二酸化炭素の精製系の概略を示す。[図 13]

バイコール管中でガス化された試料は、ベローズ付の継ぎ手で精製系の入口端に挿入される。ベローズ部を折り曲げることでガラス管を真空下で割り、ガスは真空部分に開口される。バルブの開閉で、各トラップと排気を行う。

[図 13]での A 部分を液体窒素で覆うと、二酸化炭素および他のガスがここにトラップされる。この際トラップされなかったガスは主に窒素と考えられるので排気する。

次に液体窒素トラップを外して、トラップされ固形化したガスを気化させる。A 部分を液体窒素で-80°C程度に冷却したエタノールで、C 部分を液体窒素で覆うと、A 部分では水分が、C 部分では二酸化炭素がトラップされる。

硫黄を含んだ試料の場合、ここで二酸化硫黄の除去を行う。C 部分を再度常温にし、トラップされていたガスを気化する。B 部をペンタンを入れた容器で覆い、その容器を液体窒素で冷却すると、ペンタンは凝固し、全てのガスが B でトラップされる。ペンタンはそのままに液体窒素を外すとペンタンの温度は徐々に上昇する。凝固点の差によって、二酸化炭素が二酸化硫

黄よりも先に気化する。C部を液体窒素で覆い、二酸化炭素のみをトラップする。

このように、二酸化炭素を精製する。

## グラファイト化

精製された二酸化炭素は、触媒として鉄粉を入れたグラファイト化反応管に導入される。[図14] 鉄粉は、反応管に入れた状態で、あらかじめ水素ガスで再還元処理したものを用いる。

反応管には導入される二酸化炭素に加え、二酸化炭素量の2倍以上の水素ガスを導入する。650°Cで3時間以上加熱する。



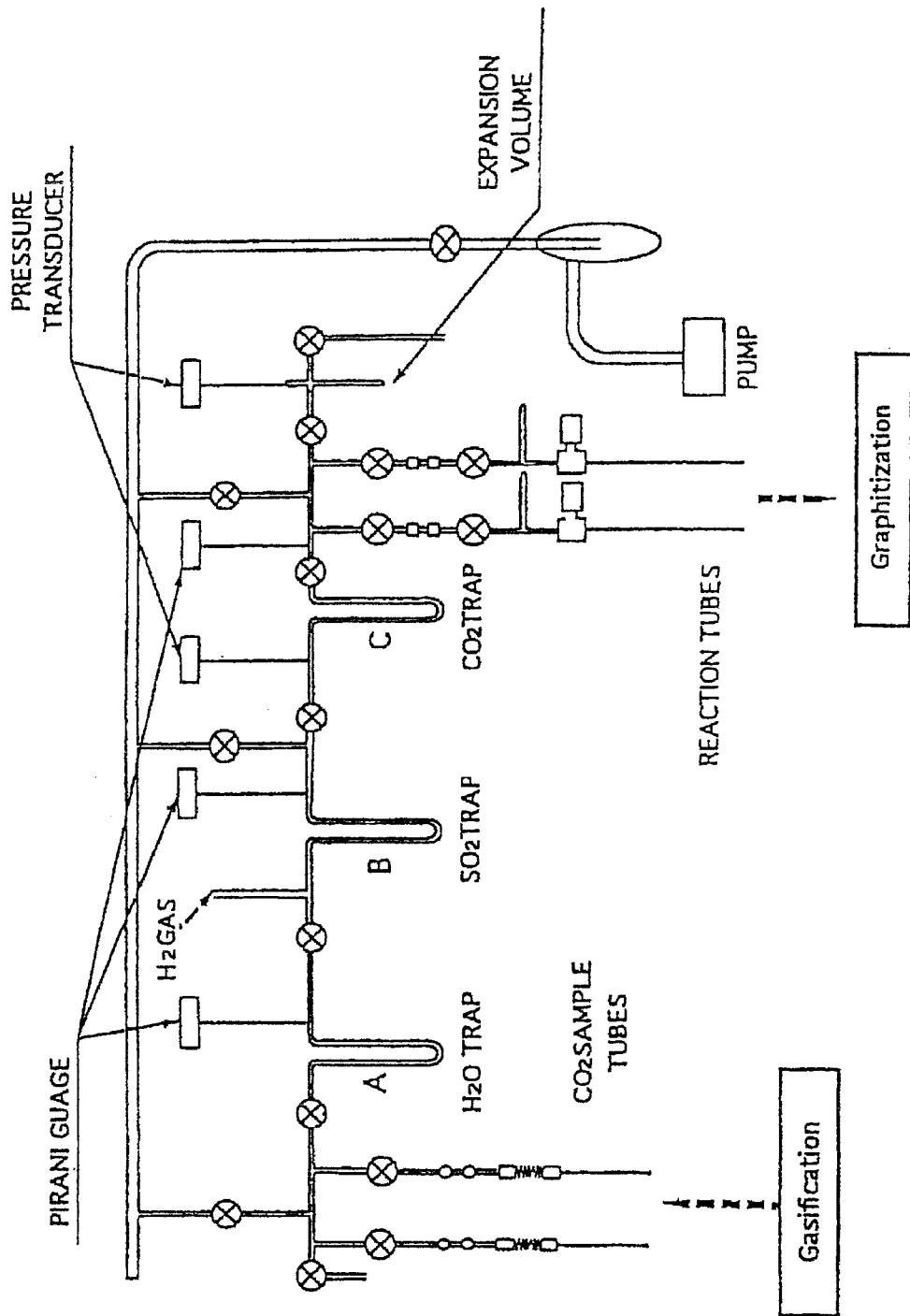
上の化学反応式からも分かるように、水が生成される。水蒸気の存在により反応の進行が妨げられないよう、反応管の一部を冷却する。反応管にはトランステューサーが取り付けられており、反応の進行のモニターを行う。

## プレス

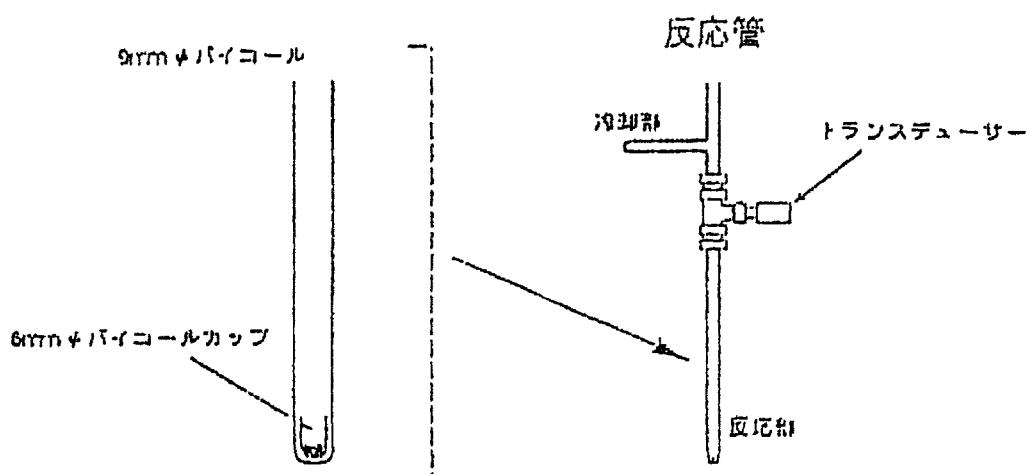
得られたグラファイト試料は真空乾燥を行って水分を除去する。触媒である鉄とともにアルミニウム製カソードの穴にプレスされる。[図15]

グラファイト炭素量と鉄量の比はビーム強度に影響することが知られている。C/Fe比が1以下よりも、1又はそれ以上でビーム強度は高くなる。【7】

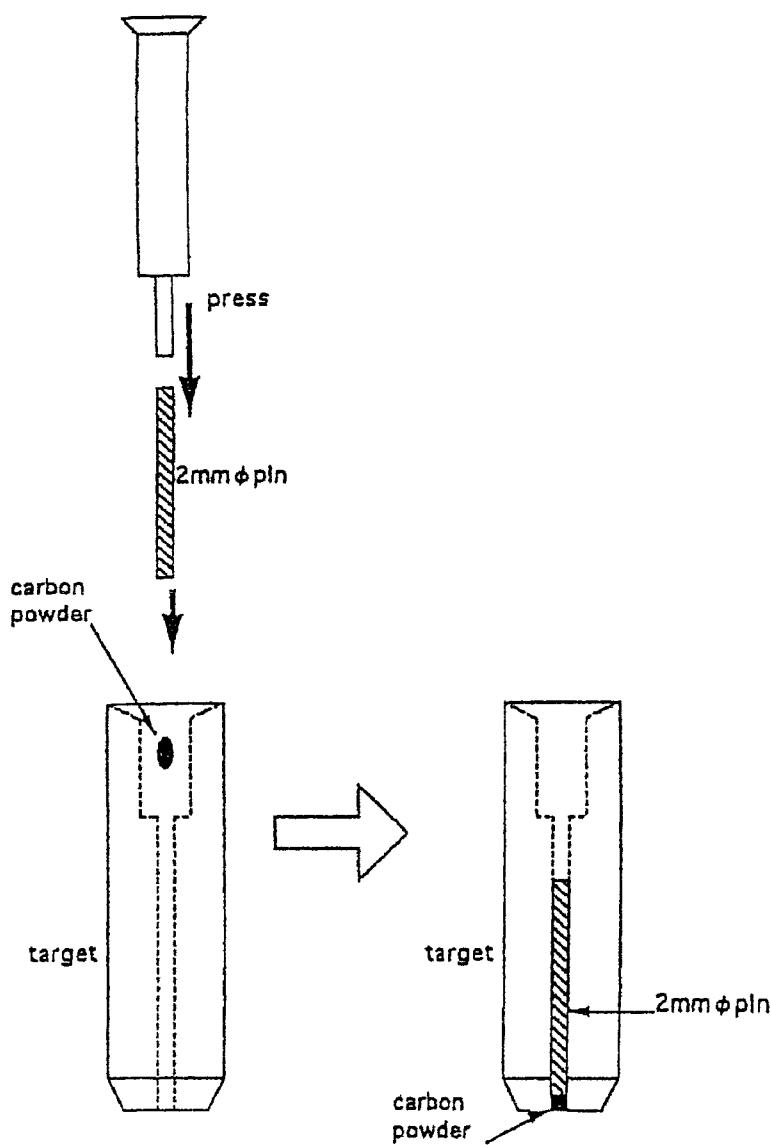
Schematic Of Gas Preparation Line



[図 13] ガス精製系 [14]



[図 14] グラファイト化反応管【4】



[図 15]  
試料の  
ターゲットへの  
プレス【4】

## 4・2 京都大学タンデム加速器質量分析システム 【4.14-16】

### 4・2・1 測定方法

京都大学理学部タンデム加速器質量分析システムの概略を示す。[図 16]

測定試料は化学的処理により炭素（グラファイト）化され、グラファイトターゲットとしてイオン源に装着される。セシウムスパッターイオン源において負イオン化した<sup>12</sup>C<sup>-</sup>、<sup>13</sup>C<sup>-</sup>、<sup>14</sup>C<sup>-</sup>のうち、負イオン分析電磁石（BM）により<sup>14</sup>C<sup>-</sup>を選別し入射する。

それと同時に BM によって曲げられた<sup>12</sup>C<sup>-</sup>は BM 下流のファラデーカップで電流として測定し、<sup>14</sup>C<sup>-</sup>は荷電変換時に<sup>14</sup>C<sup>-</sup>と同時に入射された同重分子イオンが解離・排除され、分析磁石による分析などを経て最終的に Si 半導体検出器（SSD）により計数される。これらの値を用いて<sup>14</sup>C/<sup>12</sup>C 比を決定する。

実際は入射された<sup>14</sup>C 全てが検出器まで到達できないため、イオン透過効率を知り、補正を行う必要がある。しかし加速器に入射される前の<sup>14</sup>C<sup>-</sup>は、同重分子イオンからの分離ができず、入射<sup>14</sup>C<sup>-</sup>量の測定が不可能であるため<sup>14</sup>C 透過効率を直接的に知ることができない。従って、本システムにおいては<sup>12</sup>C の透過効率の測定により<sup>14</sup>C 透過効率を算出している。また、同位体分別効果の補正のため<sup>13</sup>C の測定を行う。<sup>12</sup>C<sup>-</sup>、<sup>13</sup>C<sup>-</sup>、<sup>14</sup>C<sup>-</sup>の入射切り替えは、コンピュータ制御により BM の磁場の強さを変更することによって行う。

イオン源においてセシウムが試料中の原子・分子をスパッターすることにより発生する<sup>12</sup>C<sup>-</sup>、<sup>13</sup>C<sup>-</sup>、<sup>14</sup>C<sup>-</sup>イオンの比は試料中の<sup>12</sup>C、<sup>13</sup>C、<sup>14</sup>C 原子の存在比に等しいと仮定する。

$$\frac{\text{<sup>14</sup>C}}{\text{<sup>12</sup>C}} = \frac{\text{<sup>14</sup>C}^-}{\text{<sup>12</sup>C}^-}$$

<sup>12</sup>C<sup>-</sup>は、<sup>14</sup>C<sup>-</sup>入射時に BM により大きく偏向し、ファラデーカップ FD02-2 に入射する。ファラデーカップで観測された電流値の積分量を電気素量で割ることにより、<sup>12</sup>C<sup>-</sup>の入射粒子数を算出することができる。こうして得られた<sup>12</sup>C<sup>-</sup>粒子数を<sup>12</sup>C<sup>-</sup>(FD02-2)と表記することとする。

この時<sup>14</sup>C<sup>-</sup>は負イオンとして加速器に入射される。加速管に入射された<sup>14</sup>C<sup>-</sup>は、ターミナル部にある炭素薄膜により荷電変換を起こし正イオンとなる。生成された正イオンのうち、4 倍の正イオンのみを分析電磁石（AM）に通過させ、下流に設置した炭素薄膜で 6 倍の正イオンに変換する。そして、最終的にシステム最下流に設置した SSD により計数される。

<sup>14</sup>C<sup>-</sup>はターミナル部において全てが<sup>14</sup>C<sup>4+</sup>へ変換される訳でない。またビーム軌道を進行

する中でいくらかの損失を受ける。入射 $^{14}\text{C}^-$ イオンが最終的に $^{14}\text{C}^{6+}$ イオンとなって SSD で観測されるまでの透過効率 Transmission- $^{14}\text{C}$  を

Transmission- $^{14}\text{C}$

$$= (\text{SSD で観測される } ^{14}\text{C}^{6+} \text{ イオンの個数}) / (\text{入射 } ^{14}\text{C}^- \text{ イオンの個数}) \\ = ^{14}\text{C}^{6+} (\text{SSD}) / ^{14}\text{C}^-$$

と定義すると、試料中の $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比は $^{12}\text{C}^-$ (FD02-2)を用いて、

$$\frac{^{14}\text{C}}{^{12}\text{C}} = \frac{^{14}\text{C}^+ (\text{SSD})}{^{12}\text{C}^- (\text{FD02-2})} \times \frac{1}{\text{Transmission-}^{14}\text{C}}$$

で与えられる。

しかし Transmission- $^{14}\text{C}$  は、前述のように $^{14}\text{C}^-$ イオンの正確な量を測定することが不可能であるため直接には決定できない。従って本システムにおいては、Transmission- $^{12}\text{C}$  を測定し、補正を加えることで Transmission- $^{14}\text{C}$ を得ることにしている。ビームの透過効率を決定しているのは、ターミナル部の炭素薄膜での軌道電子のストリッピング効率及び入射負イオンが加速器を通過する過程におけるイオン光学的な透過効率であると考えられているから

全体の透過効率 = (ストリッピングの効率) × (イオン光学的な透過効率)

によって算出する。

$^{12}\text{C}$ 、 $^{13}\text{C}$ 、 $^{14}\text{C}$  の光学的透過効率がほぼ等しいとすると、透過効率の違いは、各粒子のストリッピング効率の違いに帰着する。ストリッピング効率は炭素薄膜に入射するイオンの速度に依存する。ここで  $\varepsilon$  を

$$\varepsilon = (^{12}\text{C} \text{ のストリッピング効率}) / (^{14}\text{C} \text{ のストリッピング効率})$$

と定義すると、Transmission- $^{14}\text{C}$  は

$$\text{Transmission-}^{14}\text{C} = \text{Transmission-}^{12}\text{C} / \varepsilon$$

で与えられる。

従って、試料の $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比は加速器実験における観測量を用いて

$$\begin{aligned}\frac{{}^{14}C}{{}^{12}C} &= \frac{{}^{14}C^-}{{}^{12}C^-} \\ &= \frac{{}^{14}C^+(\text{SSD})}{{}^{12}C^-(\text{FC02 - 2})} \times \frac{1}{\text{Transmission-}{}^{12}C} \times \varepsilon\end{aligned}$$

と表わされる。

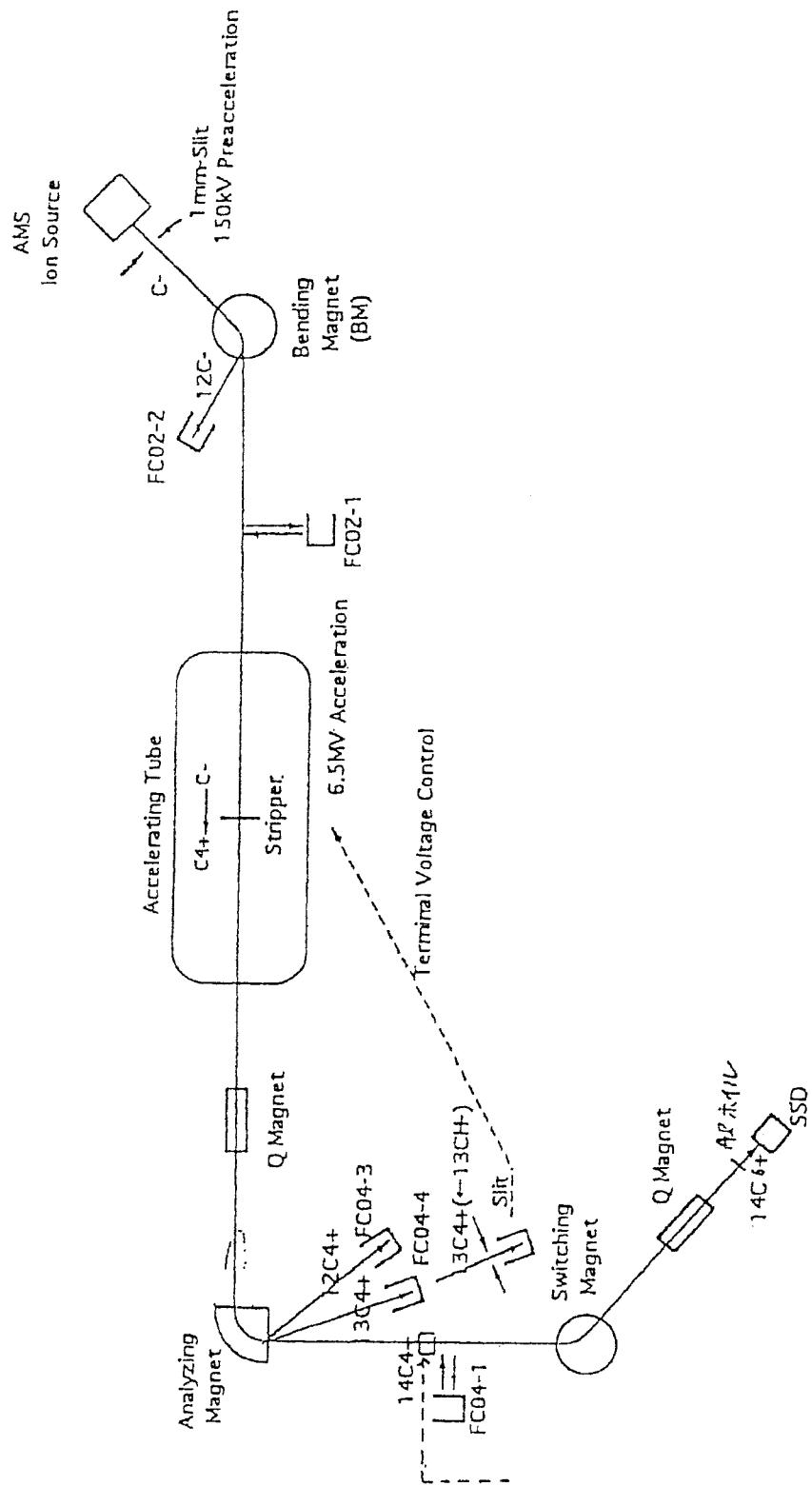


図 16] 京都大学理学部タンデム加速器質量分析システム [4]

#### 4.2.2 装置

##### イオン源

加速器質量分析法専用のイオン源として、WVEE 社の 846A イオン源 [図 17] が用いられている。このイオン源は、一度に 59 個のカソードターゲットの装着ができ、高電圧、高真空中を保持したままターゲット交換を行うことが可能である。

ターゲットは、回転可能な円盤体（カルーセル）に装着される。ターゲットの選択はカルーセルの回転によって行われ、ビーム機動方向に移動可能なアームによってセシウムスパッターされる定位置に運ばれる。定位置では試料装着台を  $\pm 5\text{mm}$  の範囲で三次元的に定位置を微調整することが可能である。測定し終わったターゲットは、アームによってカルーセルの元の位置に戻される。このような、高電圧・高真空中でのターゲット交換は、ポテンショメータとテレビカメラによって位置を確認しながら、手動でのモータ制御によって行われる。

なお、ターゲット表面には吸着ガスが付着している恐れがあるため、交換後ビームが出始めてからの数分間は測定を開始しない。

846A イオン源は、セシウムスパッタ型負イオン源である。セシウムオーブンにより発生したセシウム蒸気がフィラメントに接触しイオン化し、ターゲット方向に加速され衝突する。セシウムイオンの衝撃を受けたターゲット表面からは種々のイオン及び中性原子がスパッタリング現象によりスパッターされるが、この時、セシウムがアルカリ金属元素であることから多くのターゲット元素の負イオンが発生する。

イオン源からの負イオンビームは  $150\sim200\text{keV}$  のエネルギーでタンデム型静電加速器に入射される。この  $200\text{keV}$  デッキ上には、AINツェルレンズ及びビームエミッタス制御用スリットが設置されており、ビーム収束の調節を行う。スリット幅は 2 種から選択可能で、このスリットはイオン源の多少の状態変動に対して加速器のビーム透過率を安定させるのに有効である。このスリット以外に、加速器のビーム軌道上にはスリットがいくつか設置されており、全てが全開になっている。

また、ビーム透過率を確認するため  $^{12}\text{C}$  を入射して行う測定の場合、加速器のローディングを避けるためにビーム強度を抑えなければならない。このため、ビームライン上に出し入れ可能なメッシュが備えられており、メッシュを入れることにより瞬時にビーム量を減少させることができる。

## 負イオン分析

イオン源で生成された負イオンは、 $\sim 150\text{keV}$  に加速され、静電偏向板によりビーム方向が調節された後、負イオン分析電磁石(Bending Magnet:BM)に入射し、質量の異なる粒子の分析が行われる。BM は、質量エネルギー積  $35\text{MeV}\cdot\text{amu}$  の偏向能力があり、質量分解能  $M/\Delta M$  は $\sim 45$  である。

負イオンとして生成されるバックグラウンドの中には、 $^{16}\text{O}$  や  $^{14}\text{C}$  の同重分子イオンである  $^{12}\text{CH}_2^-$ 、 $^{13}\text{CH}^-$ 、 $^7\text{Li}_2^-$  等がある。これらの同重分子イオンは、 $^{14}\text{C}$  の加速に際しても分離せず、ともに BM を通り抜けて加速管に入射されるので、その一部が最下流に設置された検出器でも観測されることになる。これは、試料中に極微量しか存在しない  $^{14}\text{C}$  の観測にとって大変深刻な問題点である。

BM に入射した粒子の質量  $M$  と偏向軌道半径  $\rho$  の間には、BM の磁場が一定の場合、イオンのエネルギーを  $E$ 、電荷を  $q$  とおくと

$$M/E/q^2 = \text{const.}$$

であるから

$$\rho \propto \sqrt{M}$$

の関係がある。従って、 $^{12}\text{C}$  の方が  $^{14}\text{C}$  よりも小さな軌道半径を描くことになる。このことを利用して、BM 下流のダクト内にファラデーカップ(FC02-2)を設置し、 $^{14}\text{C}$  加速時に、BM で分析されて中心軌道を外れた  $^{12}\text{C}^-$  を同時に測定できるようにしている。また BM 下流には出し入れ可能なファラデーカップ(FC02-1)が設置されており、 $^{12}\text{C}$  ビームによる透過効率測定時にビーム軌道上に挿入され、 $^{12}\text{C}^-$  ビームの電流値を読み込むのに利用される。

## 加速

加速器は 8UHD ペレトロン加速器 [図 18] である。ターミナル電圧は最大 8MV だが、加速器の安定稼動を考慮して 6.5MV にて  $^{14}\text{C}$  加速が行われている。高電圧を発生するためペレットチェーン式電荷搬送システムが用いられている。正の電荷を絶縁した金属性のペレットに乗

せアース端からターミナル部に運搬し、逆に負の電荷をターミナル部で乗せてアース端に運ぶことにより、ターミナル部に正の高電圧を発生させる方法である。金属に静電誘導で電化を乗せるので安定度が増し、ターミナル電圧の変動が小さく、また放電の原因となるゴミなどの発生も少ないと特長を持つ。

加速管に入射した負イオンは加速器中央の高電圧ターミナル部まで加速され、中央部に設置された  $10 \mu\text{g/cm}^2$  炭素薄膜の荷電ストリッパーを通過、電子ストリッピングによる荷電変換が行われる。

炭素薄膜で生成した正イオンは再びアース端まで加速される。正イオンの荷電を  $ze$  ( $e$  : 電気素量)、ターミナル電圧を  $V_t$  (MV)、入射系デッキの電圧を  $-V_1$  (MV) とすると、正イオンの最終加速エネルギー  $E$  は次式で与えられる。

$$E = e \cdot \{(z+1) \times V_t + V_1\} \quad (\text{MeV})$$

加速器の高電圧の補正はターミナル部に面してタンク壁から突き出したコロナプロープに流れる微小電流を検出して行う。この高電圧の制御には、Generating volt meter(GVM)と capacitive pick-off(CPO)が用いられるが、このスリットによる制御は困難である。そこで、同重分子を利用した制御を行う。

BM では質量による粒子の選別が行われるので、一種の粒子だけでなく同重体・同重分子も加速される。 $^{14}\text{C}$  測定の場合、 $^{14}\text{C}$  だけでなく負イオンの状態で比較的安定な同重分子イオンである  $^{12}\text{CH}_2^-$ 、 $^{13}\text{CH}^-$  なども加速される。しかし、同重分子イオンはストリッパーを通過する際に解離し、解離後の電荷  $qe$  イオンの最終的なエネルギー  $E'$  は下のように表される。

$$E' = e \cdot [V_t \times \{(M_1/M_2) + q\} + \{(M_1/M_2) \times V_1\}] \quad (\text{MeV})$$

ただし解離後の原子の質量  $M_1$ 、解離前の分子の質量  $M_2$ 、解離後の原子の荷電数  $q$  とする。

これによって、分析電磁石(Analyzing Magnet:AM)を通過する際、解離して生成されたイオンはエネルギー差及び質量差により分析されるため、同重分子の分離が可能となる。

このことを利用して、 $^{13}\text{CH}^-$  がターミナル中央の炭素薄膜で分離して生成された  $^{13}\text{C}^{4+}$  を AM 下流の中心軌道から外れた位置に設置してあるスリットで検出し、 $^{14}\text{C}$  加速時のターミナル電圧の安定度の制御に利用している。

## 正イオン分析

加速器で 32.5MeV のエネルギーを得た粒子は AM によって質量分析を受ける。AM は、偏角 90° 、曲率半径 800mm、最大磁場 13000 ガウスである。磁場の精密測定には核磁気共鳴(Nuclear Magnetic Resonance:NMR)が用いられている。

$^{14}\text{C}$  加速時の加速電圧制御は先に述べた。 $^{12}\text{C}$  及び $^{13}\text{C}$  加速時は、AM 下流の中心軌道を外れた位置にファラデーカップを挿入することにより、各イオン種の電流値を読み込むことを可能にしている。AM ポール幅が狭く中心を外れた軌道を通るビームに対して磁場漏洩の影響が大きいため、ポール出口端に純鉄片を付加することで磁場のゆがみを抑えている。

また、FC04-1 の上流に炭素薄膜ストリッパーを設置し、粒子がここを通過する際に $^{14}\text{C}^{4+}$  から $^{14}\text{C}^{6+}$  へ変換させることによりバックグラウンドイオンの低減を図っている。

## 検出

AM を出た  $^{14}\text{C}^{4+}$  ビームは、炭素薄膜により  $^{14}\text{C}^{6+}$  に変換され振分電磁石(Switching Magnet:SM)で振り分けられた後、最終的に SSD でエネルギースペクトル分析される。

通常、このシステムでのスペクトルには  $^{14}\text{C}^{4+}$  の他、 $^{16}\text{O}$ 、 $^{13}\text{C}$ 、 $^{12}\text{C}$  のそれぞれ 5 荷、6 荷の正イオン、 $(^7\text{Li}^{3+})_2$  イオンのピークが現れる。

これらは、下に示す磁場による分析条件を満たしたものである。

$$\frac{M}{q} \times \frac{E}{q} = \frac{(B\rho)^2}{2}$$

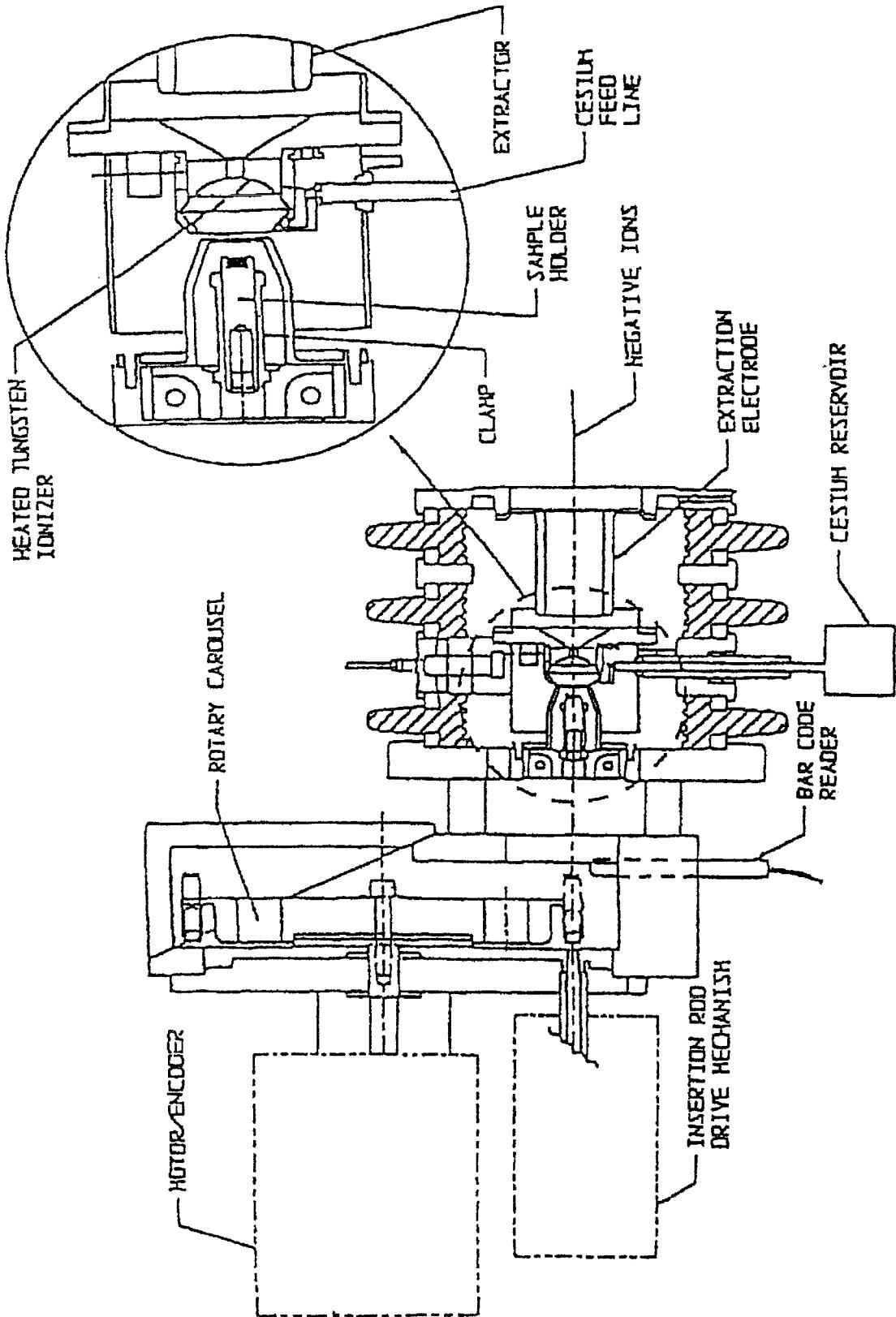
ただし、イオンの質量を  $M$ 、イオンのエネルギーを  $E$ 、イオンの電荷を  $q$ 、磁場を  $B$ 、軌道半径を  $\rho$  とする。

$^{14}\text{C}$  と同重粒子のピークを分離するのに、SSD の直前に  $3\mu\text{m}$  アルミホイルを設置し、ここでエネルギー損失させている。

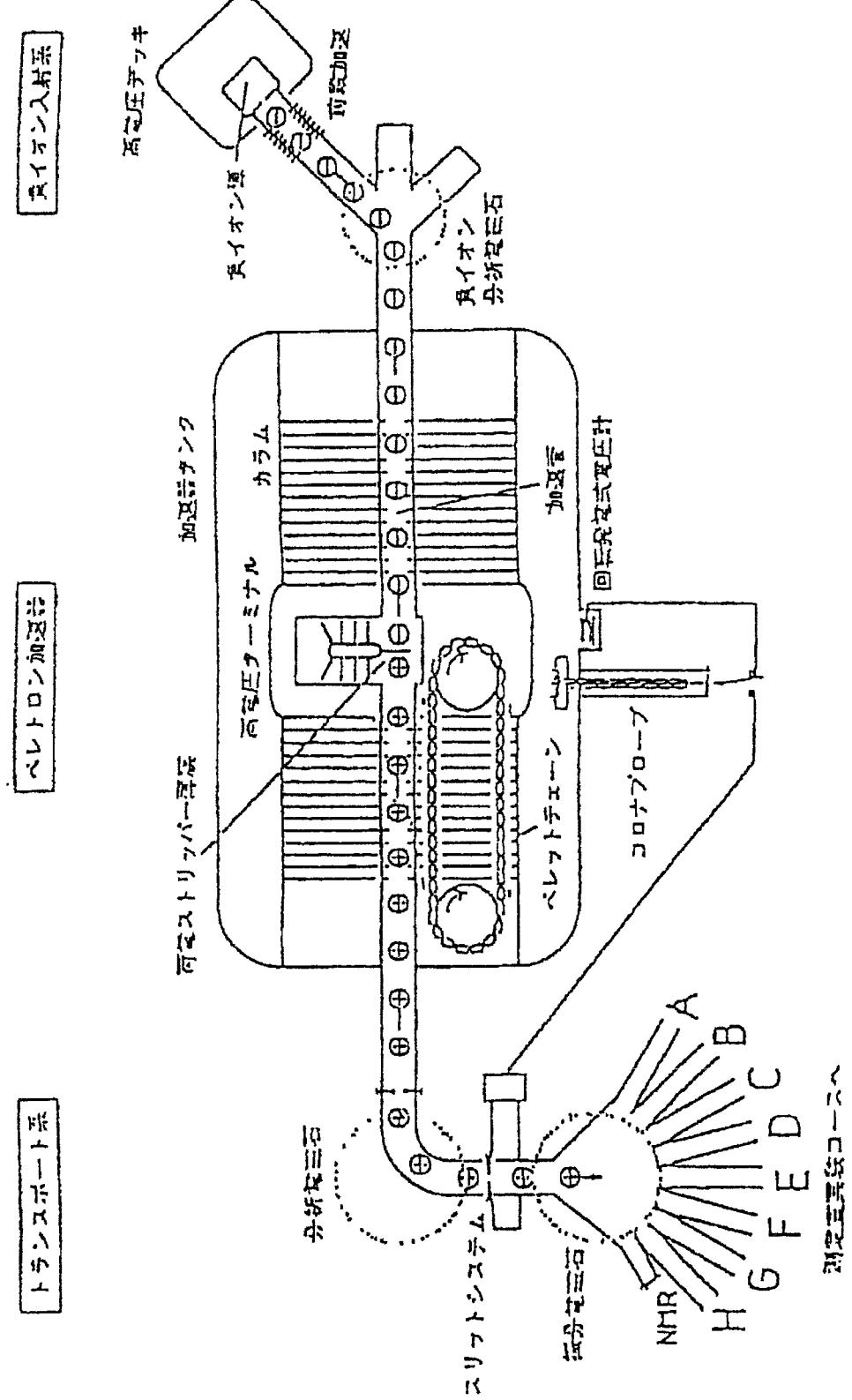
## 入射切り替えシステム

SSD で  $^{14}\text{C}^{6+}$  を測定すると同時に FC02-2 で  $^{12}\text{C}^-$  の電流値を測定する。 $^{14}\text{C}$  透過効率を求めるために  $^{12}\text{C}^-$  を加速して  $^{12}\text{C}$  透過効率を測定し、透過効率の変動を追う。これには短時間で加速ビーム  $^{12}\text{C}^-$ 、 $^{13}\text{C}^-$ 、 $^{14}\text{C}^-$  を切り替えることが必要である。加速ビームの切り替えは BM 磁場を切り替えることによって行われ、必要な時間は数秒である。

これに対して AM 磁場の切り替えには数分を要するため、AM 磁場は常に  $^{14}\text{C}^{4+}$  に合わせて いる。 $^{12}\text{C}^-$  の加速時は、ファラデーカップを軌道から外れた位置に設置し  $^{12}\text{C}^{4+}$  を測定する。また実験開始時に、AM からビーム下流端の透過効率を測定することで  $^{12}\text{C}^{4+}$  を SSD の位置まで通して測定する必要性をなくしているため、AM までの透過効率だけの測定で全透過率を 求めることができる。なお  $^{12}\text{C}^-$  加速時は、ビーム強度を抑えるため軌道上にメッシュを挿入 している。



[図 17] WVEE 社 846A イオン源【4】



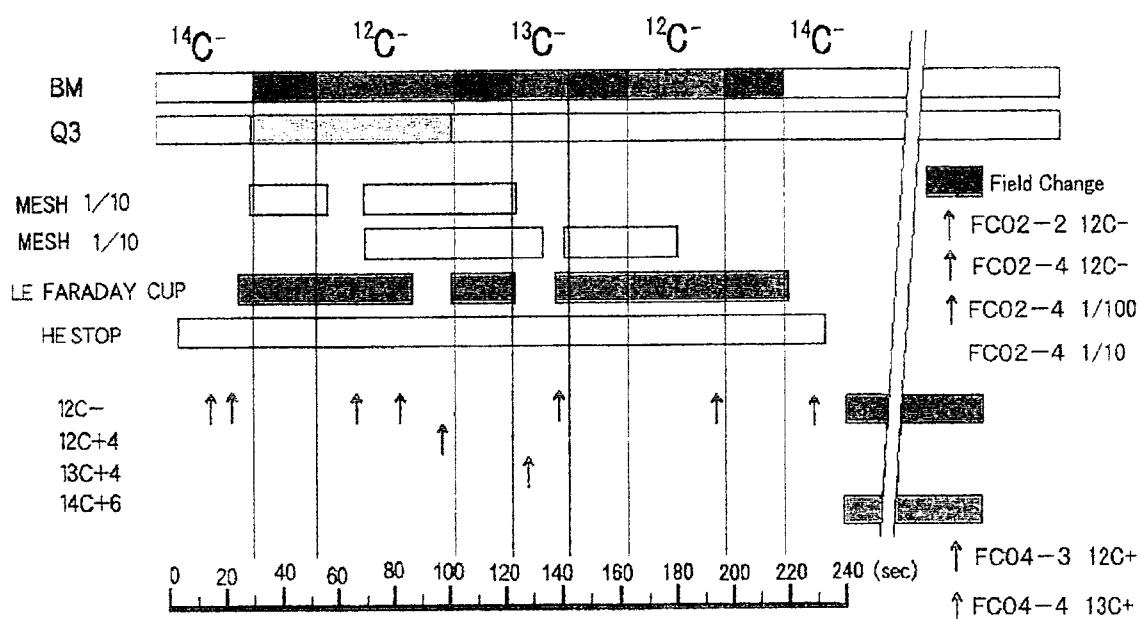
[図 18] 8UHD ペレトロン加速器 [4]

#### 4・2・3 測定ユニット

1 ユニットの測定の流れを下に示す。[図 19]

BM 磁場の切り替えはコンピュータによる自動制御である。

測定実験では、1 ランにつき数ユニット（今回の実験試料は、4～8 ユニット）行う。



[図 19] 測定ユニット【15】

## 第5章 測定実験結果

### 5-1 実験データ整理 【4】

コンピュータにより制御され測定される値を用いて、 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比、 $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  比を決定する。以下に実験時に得られたデータのうち、実験結果に関わるもの及び同位体比計算に用いる値を示す。

計算式で用いる記号	測定しているもの	測定を行う時間 (time lag としての記録)	time lag の計算式での記号
fc22	$^{12}\text{C}^-$ の電流値を FC02-2 で検出 ( $^{14}\text{C}^-$ 入射時)	約 0 秒後 (開始時)	
fc24	$^{12}\text{C}^-$ の電流値を FC02-1 で検出 ( $^{12}\text{C}^-$ 入射時)	約 35 秒後	t1
fc24/100	1/100 メッシュを入れた際の $^{12}\text{C}^-$ の電流値を FC02-1 で検出 ( $^{12}\text{C}^-$ 入射時)	約 60 秒後	t2
fc43/100	1/100 メッシュを入れた際の $^{12}\text{C}^{4+}$ の電流値を FC04-3 で検出 ( $^{12}\text{C}^-$ 入射時)	約 75 秒後	t3
fc44/10	1/10 メッシュを入れた際の $^{13}\text{C}^{4+}$ の電流値を FC04-4 で検出 ( $^{13}\text{C}^-$ 入射時)	約 110 秒後	t4
fc24/10	1/10 メッシュを入れた際の $^{12}\text{C}^-$ の電流値を FC02-1 で検出 ( $^{12}\text{C}^-$ 入射時)	約 160 秒後	t5
fc24end	$^{12}\text{C}^-$ の電流値を FC02-1 で検出 ( $^{12}\text{C}^-$ 入射時)	約 180 秒後	t6
fc22end	$^{12}\text{C}^-$ の電流値を FC02-1 で検出 ( $^{14}\text{C}^-$ 入射時)	約 210 秒後 (終了時)	
12-counts	fc22 で計測した $^{12}\text{C}^-$ の電流積分値を個数に換算したもの ( $^{14}\text{C}^-$ 入射時)		
14-counts	$^{14}\text{C}$ の個数を SSD で計数 ( $^{14}\text{C}^-$ 入射時)		

## ① fc24 値の時間効果の補正（メッシュなし）

透過効率はイオン源などの状態の変化に対して敏感に変動するので、同位対比を求めるために<sup>12</sup>C、<sup>13</sup>C の測定は短時間で終了させる必要がある。しかし、短時間で測定したとはいえた効果を無視することはできない。そこで、ファラデーカップでそれを測定した時間を time lag として記録し、時間によって変動する値を補正する。

<sup>12</sup>C<sup>4+</sup> を 1/100 メッシュを入れて fc43 で測定した時点の fc24 で測定される <sup>12</sup>C<sup>-</sup> (cal24,43/100) を fc24 から fc24end までの <sup>12</sup>C<sup>-</sup> 値の変動を用いて求めると

$$\text{cal24,43/100} = \{(fc24end - fc24) \times (t3 - t1) / (t6 - t1)\} + fc24 \quad \cdots(5\cdot1)$$

と補正される。ただしこれは fc24 から fc24end までの <sup>12</sup>C<sup>-</sup> 値の変動を time lag を用いて比例配分したものである。

全く同様にして、cal24,24/100、cal24,44/10、cal24,24/10 はそれぞれ

$$\text{cal24,24/100} = \{(fc24end - fc24) \times (t2 - t1) / (t6 - t1)\} + fc24 \quad \cdots(5\cdot2)$$

$$\text{cal24,44/10} = \{(fc24end - fc24) \times (t4 - t1) / (t6 - t1)\} + fc24 \quad \cdots(5\cdot3)$$

$$\text{cal24,24/10} = \{(fc24end - fc24) \times (t5 - t1) / (t6 - t1)\} + fc24 \quad \cdots(5\cdot4)$$

と補正される。

## ② fc24 値の補正（メッシュあり）

①で計算した時間補正（メッシュなし）の結果を利用して、メッシュを入れた際の fc24 値を算出する。

1/100 メッシュを入れて、fc43 で測定した時点の fc24 の値 (cal24/100,43/100) は

$$\text{cal24/100,43/100} = fc24/100 \times (cal24,43/100) / (cal24,24/100) \quad \cdots(5\cdot5)$$

と補正される。

同様に、1/10 メッシュを入れて、fc44 で測定した時点の fc24 の値 (cal24/10,44/10) は

$$\text{cal24/10,44/10} = \text{fc24/10} \times (\text{cal24,44/10}) / (\text{cal24,24/10}) \quad \cdots(5-6)$$

と補正される。

### ③ 同位体比の計算

①、②で補正した値を用いて同位体比の計算を行う。

はじめに、透過率  $^{12}\text{C}^+ / ^{12}\text{C}^-$  比を算出する。FC02-1 で計測された負イオンと SW を通過する正イオンの比から求める。

fc24 で計測された負イオンが fc43 で正イオンとして計測される値と、予め測定していた fc43 を通過したイオンが下流の fc41 に到達する割合を用いた透過率は

$$^{12}\text{C}^+ / ^{12}\text{C}^- = \frac{\text{fc43/100}}{\text{cal24/100,43/100}} \frac{\text{fc43/1}}{\text{fc41/4}} \quad \cdots(5-7)$$

で表される。 $^{12}\text{C}^-$  入射時 1/100 メッシュを入れて FC04-3 で  $^{12}\text{C}^{4+}$  を測定している時の  $^{12}\text{C}^{4+}$  の測定値、(4-5)で補正した  $^{12}\text{C}^-$  値、予め計測していた FC04-3 で  $^{12}\text{C}^{4+}$  を測定している際に FC04-1 に到達している粒子との比 fc43/fc41 を利用して導かれる。1/4 倍したのは電流値に電荷の比が影響するからである。

次に、透過率  $^{13}\text{C}^+ / ^{12}\text{C}^-$  比を算出する。 $^{12}\text{C}^+ / ^{12}\text{C}^-$  比と同様に、

$$^{13}\text{C}^+ / ^{12}\text{C}^- = \frac{\text{fc44/10}}{\text{cal24/10,44/10}} \frac{\text{fc44/1}}{\text{fc41/4}} \quad \cdots(5-8)$$

と表される。

透過率  $^{14}\text{C}^+ / ^{12}\text{C}^-$  比を算出する。 $^{14}\text{C}^-$  入射時に fc22 で測定された  $^{12}\text{C}^-$  電流の積分値 (12-counts) と SSD で計数した  $^{14}\text{C}$  の個数 (14-counts)、そして予め測定していた SSD で計数している際に FC04-1 に到達している粒子 fc41 と SSD で検出される粒子 fc5 との比、fc22 と fc24 の比 fc22/fc24 を用いて

$$^{14}\text{C}^+ / ^{12}\text{C}^- = 14\text{-counts} \frac{\text{fc5}}{\text{fc41}} / 12\text{-counts} \frac{\text{fc24}}{\text{fc22}} \quad \cdots(5\cdot9)$$

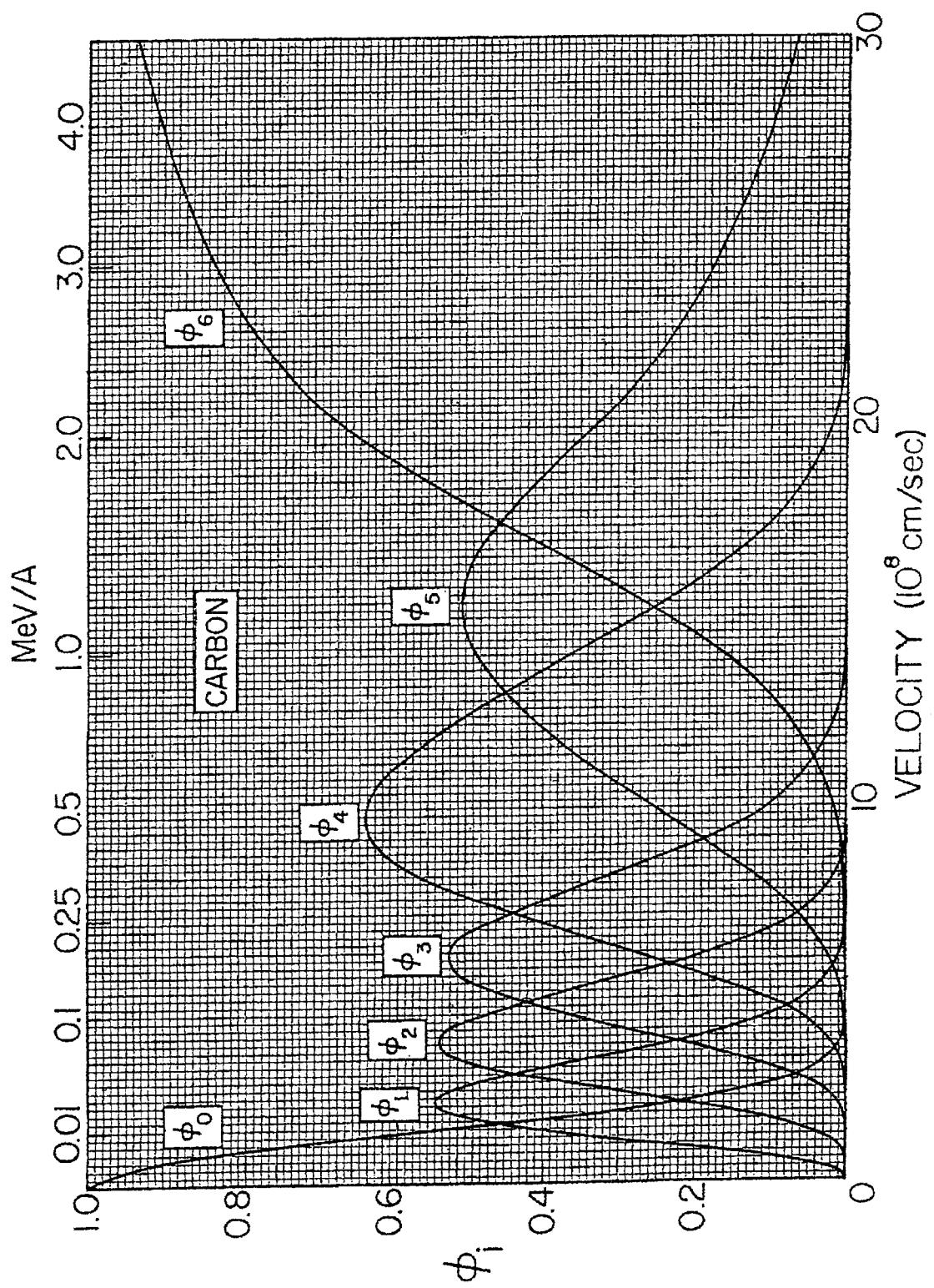
と与えられる。

最後に、 $^{12}\text{C}^+ / ^{12}\text{C}^-$  比、 $^{13}\text{C}^+ / ^{12}\text{C}^-$  比、 $^{14}\text{C}^+ / ^{12}\text{C}^-$  比から  $^{13}\text{C} / ^{12}\text{C}$  比、 $^{14}\text{C} / ^{12}\text{C}$  比を算出する。加速器のターミナル部における炭素薄膜によるストリッピング効果はイオンチャージフラクション [図 20] の値を用いる。 $^{12-14}\text{C}^-$  の  $^{12-14}\text{C}^{4+}$  への各ストリッピング効率をそれぞれ  $\varepsilon_{12}$ 、 $\varepsilon_{13}$ 、 $\varepsilon_{14}$  とおくと、

$$^{13}\text{C} / ^{12}\text{C} = (^{13}\text{C}^+ / ^{12}\text{C}^-) / (^{12}\text{C}^+ / ^{12}\text{C}^-) \times (\varepsilon_{12} / \varepsilon_{13}) \quad \cdots(5\cdot10)$$

$$^{14}\text{C} / ^{12}\text{C} = (^{14}\text{C}^+ / ^{12}\text{C}^-) / (^{12}\text{C}^+ / ^{12}\text{C}^-) \times (\varepsilon_{12} / \varepsilon_{14}) \quad \cdots(5\cdot11)$$

と表される。



[図 20] イオンのチャージフラクション [17]

## 5-2 BP 年代の算出 【17-19】

5-1 項で得られた試料、標準試料の各  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比、 $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  比を用いて年代を算出する。実際の測定実験では、標準試料の測定・試料 2~4 個の測定・標準試料の測定…という順で測定した。また、 $^{14}\text{C}$  を含まない蔥酸の試料 (dead) を試料調整過程で作成し、測定した  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  比をバックグラウンドとして差し引いている。

一般の年代を求める際の計算手順を以下に示す。

炭素 1g 中に含まれる  $^{14}\text{C}$  の 1 分当たりの放射能（崩壊定数）を  $^{14}A$  (in dpm/g C) とおく。2-1 項で述べた通り、AD1950 の  $^{14}\text{C}$  標準濃度は、実際の標準試料(今回の実験においては OX2)濃度の 0.7459 倍として定義されている。

年代算出のための  $^{14}\text{C}$  標準濃度は規格化された放射能  $^{14}A_{RN}$  で決定され、計算式は

$$^{14}A_{RN} = ^{14}A \left( \frac{1 + ^{13}\delta_N}{1 + ^{13}\delta} \right)^2 \quad \cdots(5-12)$$

である。これを同位体分別効果の補正のため規格化するという。

標準試料との相対濃度で試料の  $^{14}\text{C}$  濃度を決定するので、標準試料も規格化を行う必要がある。

$$^{13}\delta = \left[ \left( \frac{^{13}\text{C}}{^{12}\text{C}} \right) - \left( \frac{^{13}\text{C}}{^{12}\text{C}} \right)_{PDB} \right] \Big/ \left( \frac{^{13}\text{C}}{^{12}\text{C}} \right)_{PDB} \quad \cdots(5-13)$$

とすると

$$\frac{^{14}A_{OX2N}}{^{14}A_{OX2}} = \left( \frac{1 + ^{13}\delta_N}{1 + ^{13}\delta} \right)^2 = \left( \frac{1 - 0.025}{1 - 0.0176} \right)^2 = 0.9850 \quad \cdots(5-14)$$

となる。

従って、規格化された標準試料を用いた AD1950 の放射能は

$$^{14}A^0_{RN} = 0.7459 \times 0.9850 \times ^{14}A^0_{OX2} = 0.7347 \times ^{14}A^0_{OX2} \quad \cdots(5-15)$$

で表される。右上付「0」は、AD1950 であることを示すとする。

AMS 法の場合、放射能の代わりに測定した濃度を用いて考える。

標準試料 (AD1950 の<sup>14</sup>C 濃度) に対する試料の<sup>14</sup>C 濃度の比は

$$\begin{aligned}
 {}^{14}\alpha &= \frac{{}^{14}A_{sam}}{{}^{14}A_{ref}} = \frac{\left(\frac{{}^{14}C}{C}\right)}{\left(\frac{{}^{14}C}{C}\right)_{ref}} \\
 &= \frac{\left(\frac{{}^{14}C}{{}^{12}C}\right)}{\left(\frac{{}^{14}C}{{}^{12}C}\right)_{ref}} \frac{\left(\frac{{}^{12}C}{{}^{12}C+{}^{13}C}\right)}{\left(\frac{{}^{12}C}{{}^{12}C+{}^{13}C}\right)_{ref}} \\
 &= \frac{eff_{14} \times \left(\frac{{}^{14}C}{{}^{12}C}\right)^{AMS}}{eff_{14} \times \left(\frac{{}^{14}C}{{}^{12}C}\right)_{ref}^{AMS}} \frac{\frac{1}{1 + \left(\frac{{}^{13}C}{{}^{12}C}\right)}}{\frac{1}{1 + \left(\frac{{}^{13}C}{{}^{12}C}\right)_{ref}}} \\
 &= \frac{\left(\frac{{}^{14}C}{{}^{12}C}\right)^{AMS}}{\left(\frac{{}^{14}C}{{}^{12}C}\right)_{ref}^{AMS}} \frac{1 + (1 + {}^{13}\delta_{ref}) \left(\frac{{}^{13}C}{{}^{12}C}\right)_{PDB}}{1 + (1 + {}^{13}\delta) \left(\frac{{}^{13}C}{{}^{12}C}\right)_{PDB}}
 \end{aligned} \tag{5-16}$$

で表される。ここで

$$\frac{1 + {}^{13}\delta}{1 + {}^{13}\delta_{ref}} = \frac{\left(\frac{{}^{13}C}{{}^{12}C}\right)}{\left(\frac{{}^{13}C}{{}^{12}C}\right)_{ref}} = \frac{eff_{13} \times \left(\frac{{}^{13}C}{{}^{12}C}\right)^{AMS}}{eff_{13} \times \left(\frac{{}^{13}C}{{}^{12}C}\right)_{ref}^{AMS}} = \frac{\left(\frac{{}^{13}C}{{}^{12}C}\right)^{AMS}}{\left(\frac{{}^{13}C}{{}^{12}C}\right)_{ref}^{AMS}} \tag{5-17}$$

である。

OX2 を基準用いると

$${}^{14}\alpha = \frac{\left(\frac{{}^{14}C}{{}^{12}C}\right)^{AMS}}{0.7347 \times \left(\frac{{}^{14}C}{{}^{12}C}\right)_{OX2}^{AMS}} \frac{1 + 0.0112 \times (1 + {}^{13}\delta_{ref})}{1 + 0.0112 \times (1 + {}^{13}\delta)} \tag{5-18}$$

と表される。ここで

$$\frac{1+^{13}\delta}{1+^{13}\delta_{OX2}} = \frac{\left(\frac{^{13}C}{^{12}C}\right)^{AMS}}{\left(\frac{^{13}C}{^{12}C}\right)_{OX2}^{AMS}} \quad \cdots(5-19)$$

である。

よって最終的に求める値は

$$^{14}a_N = ^{14}a \left( \frac{1+^{13}\delta_N}{1+^{13}\delta} \right)^2 \quad \cdots(5-20)$$

である。

誤差は

$$d^{14}a = ^{14}a \times \sqrt{\left( \frac{d\left(\frac{^{14}C}{^{12}C}\right)^{AMS}}{\left(\frac{^{14}C}{^{12}C}\right)^{AMS}} \right)^2 + \left( \frac{d\left(\frac{^{14}C}{^{12}C}\right)_{OX2}^{AMS}}{\left(\frac{^{14}C}{^{12}C}\right)_{OX2}^{AMS}} \right)^2 + \left( \frac{d^{13}\delta}{1+0.0112 \times (1+^{13}\delta)} \right)^2} \quad \cdots(5-21)$$

ここで

$$d^{13}\delta = (1+^{13}\delta) \times \sqrt{\left( \frac{d\left(\frac{^{13}C}{^{12}C}\right)^{AMS}}{\left(\frac{^{13}C}{^{12}C}\right)^{AMS}} \right)^2 + \left( \frac{d\left(\frac{^{13}C}{^{12}C}\right)_{OX2}^{AMS}}{\left(\frac{^{13}C}{^{12}C}\right)_{OX2}^{AMS}} \right)^2} \quad \cdots(5-22)$$

である。

ただし、

$$d^{13}\delta_{OX2} = -17.6\%$$

$$d^{13}\delta_N = -25.0\%$$

である。

## 5・3 結果

### 5・3・1 BP 年代

解析結果を下に示す。

各湿原のボーリング地点ごとに、試料を採取した深さ、各試料の BP 年代 $\pm 2\sigma$ ・ $\delta 13$ ・測定実験を行った日にちについてまとめている。

BP 年代は、 $1\sigma$  の誤差が 50 年より大きい場合、年代値と誤差を四捨五入して 10 年単位で表示し、誤差が 50 年より小さい場合、5 年単位で表示する。

$\delta 13$  値は、試料が自然に存在していた時の値を示しているのではなく、試料調整過程や加速器実験における同位体分別効果を経験したとの試料の値である。

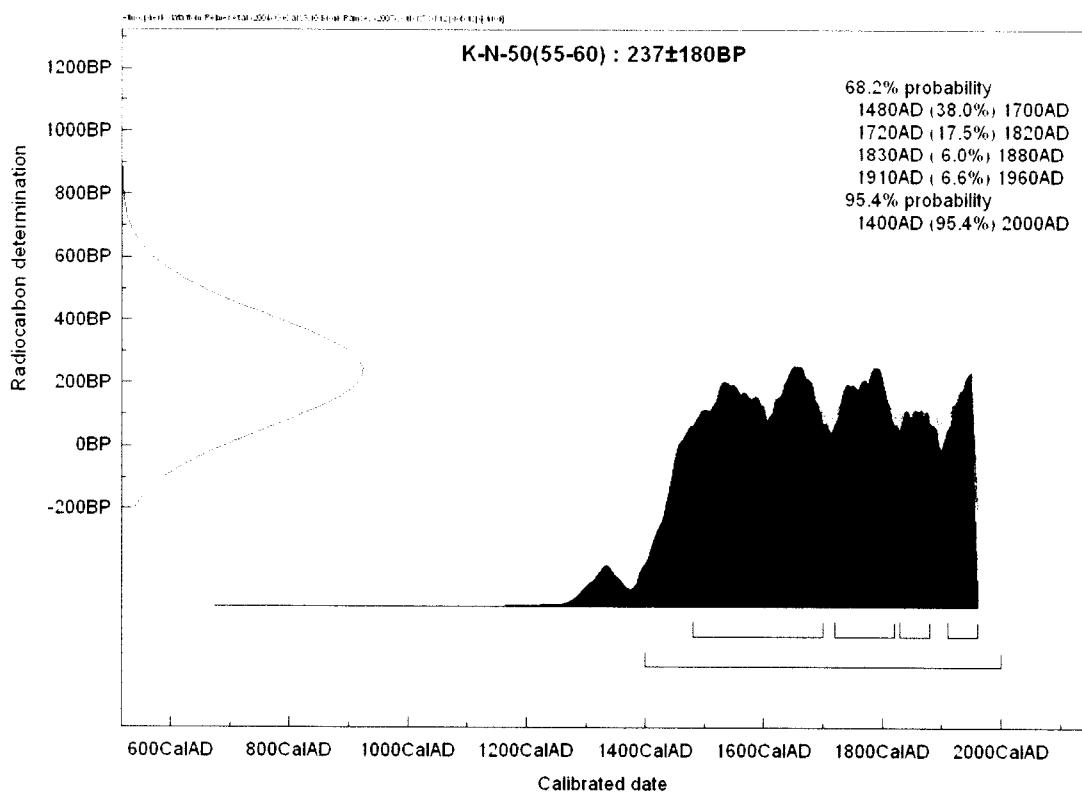
湿原名	地点	深さ (cm)	BP 年代 $\pm 2\sigma$	$\delta 13$ (‰)	測定期間
羅臼 木隠湿原	K-N-50	55-60	240 $\pm$ 180 BP	27 $\pm$ 8	2007.2.13-16
		75-80	460 $\pm$ 230 BP	24 $\pm$ 8	2006.6.21-23・28-29
		95-100	730 $\pm$ 190 BP	31 $\pm$ 7	2007.2.13-16
		115-120	1220 $\pm$ 240 BP	27 $\pm$ 5	2004.10.26-27
		135-140	1220 $\pm$ 90 BP	24 $\pm$ 7	2007.2.13-16
		155-160	1540 $\pm$ 150 BP	25 $\pm$ 3	2006.6.21-23・28-29
		175-180	2020 $\pm$ 270 BP	38 $\pm$ 4	2006.6.21-23・28-29
		190-195	2400 $\pm$ 270 BP	35 $\pm$ 9	2004.10.26-27
		200-205	3250 $\pm$ 240 BP	36 $\pm$ 6	2006.6.21-23・28-29
	K-65	90-95	1280 $\pm$ 300 BP	30 $\pm$ 5	2006.6.21-23・28-29
		105-110	1680 $\pm$ 250 BP	28 $\pm$ 5	
白馬岳 神ノ田園	Ka-15	95-100	2800 $\pm$ 140 BP	14 $\pm$ 4	2005.6.28-30
		166-170	4680 $\pm$ 170 BP	20 $\pm$ 6	
白馬岳 成城小屋湿原	Sa-1	70-80	2310 $\pm$ 220 BP	25 $\pm$ 9	2006.6.21-23・28-29
		110-115	7040 $\pm$ 230 BP	27 $\pm$ 7	
曾爾高原 お亀池湿原	Ok-40	155-160	470 $\pm$ 180 BP	25 $\pm$ 5	2005.6.28-30
		205-220	2100 $\pm$ 110 BP	19 $\pm$ 4	
		255-260	3940 $\pm$ 240 BP	26 $\pm$ 5	

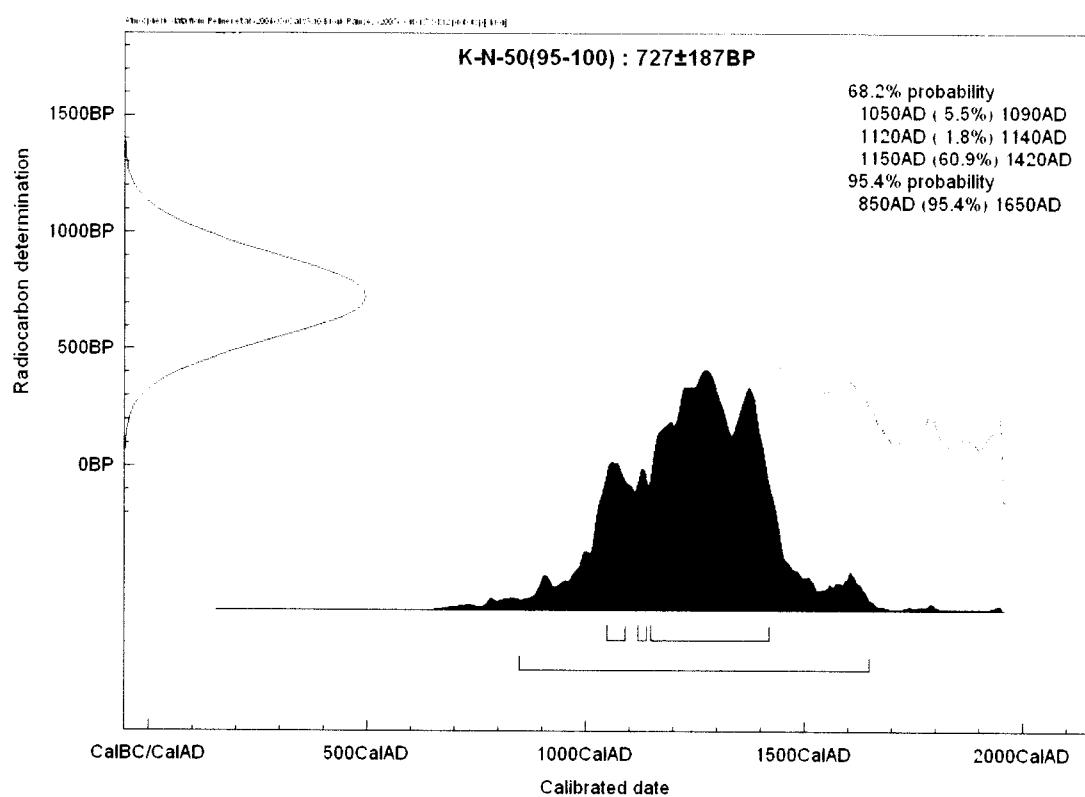
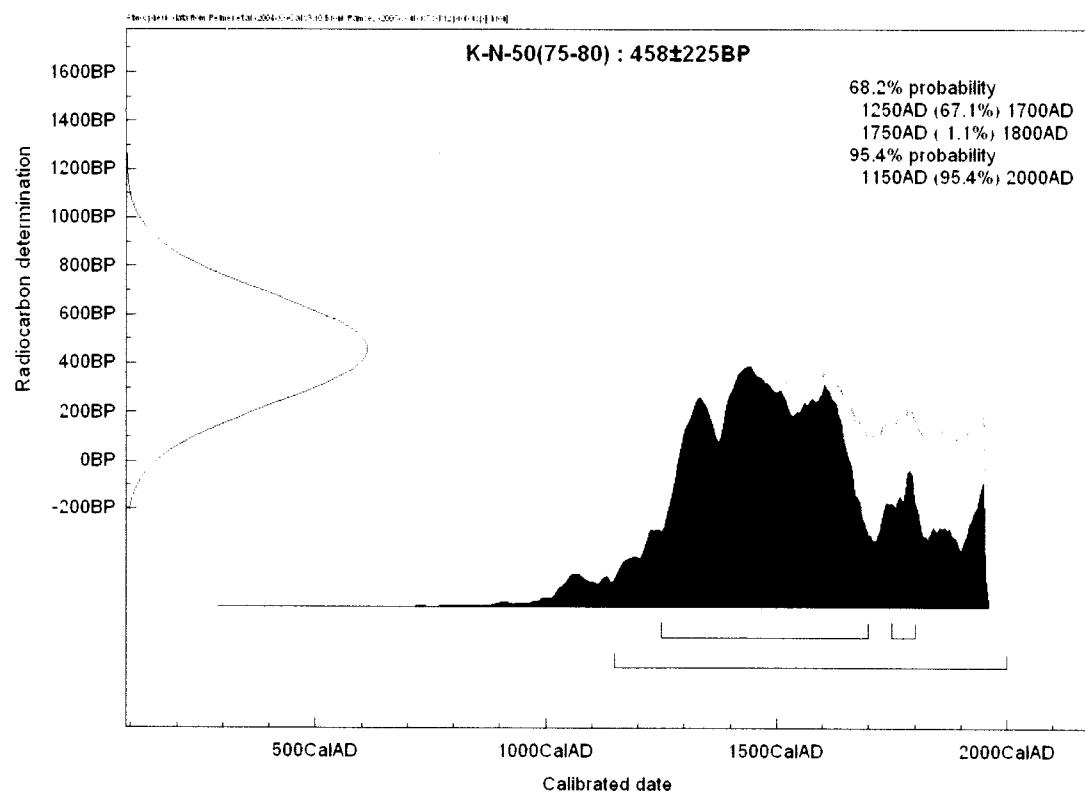
### 5-3-2 各試料の結果

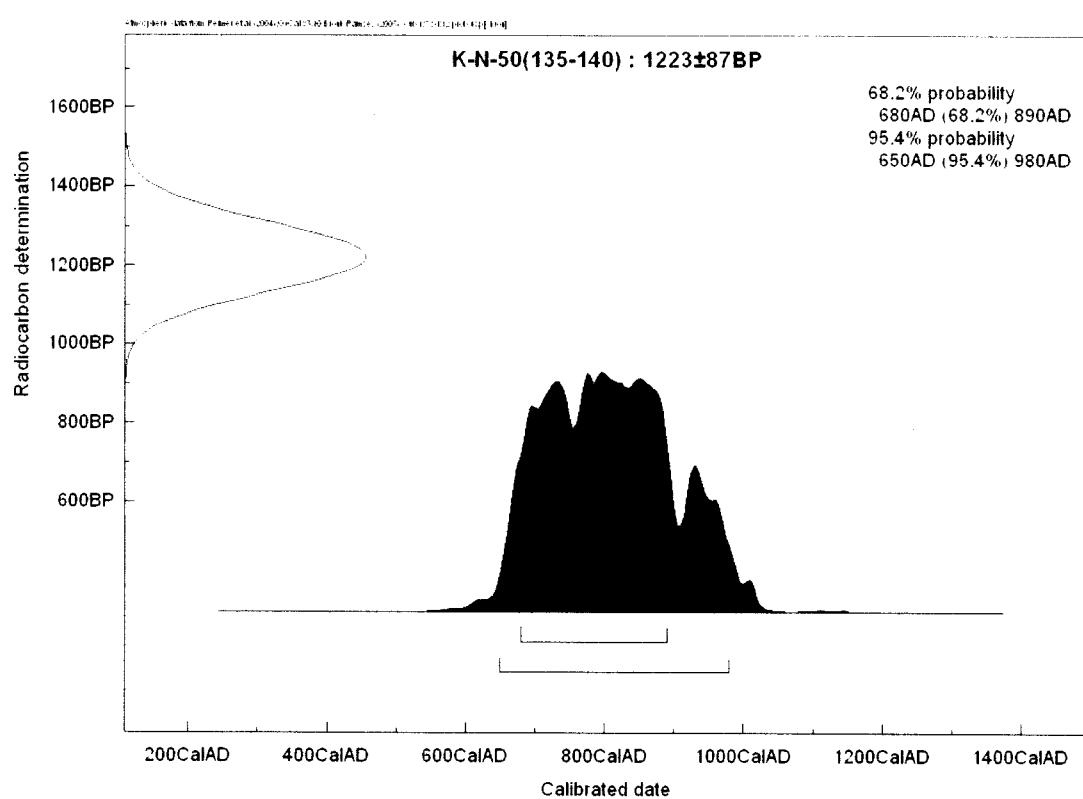
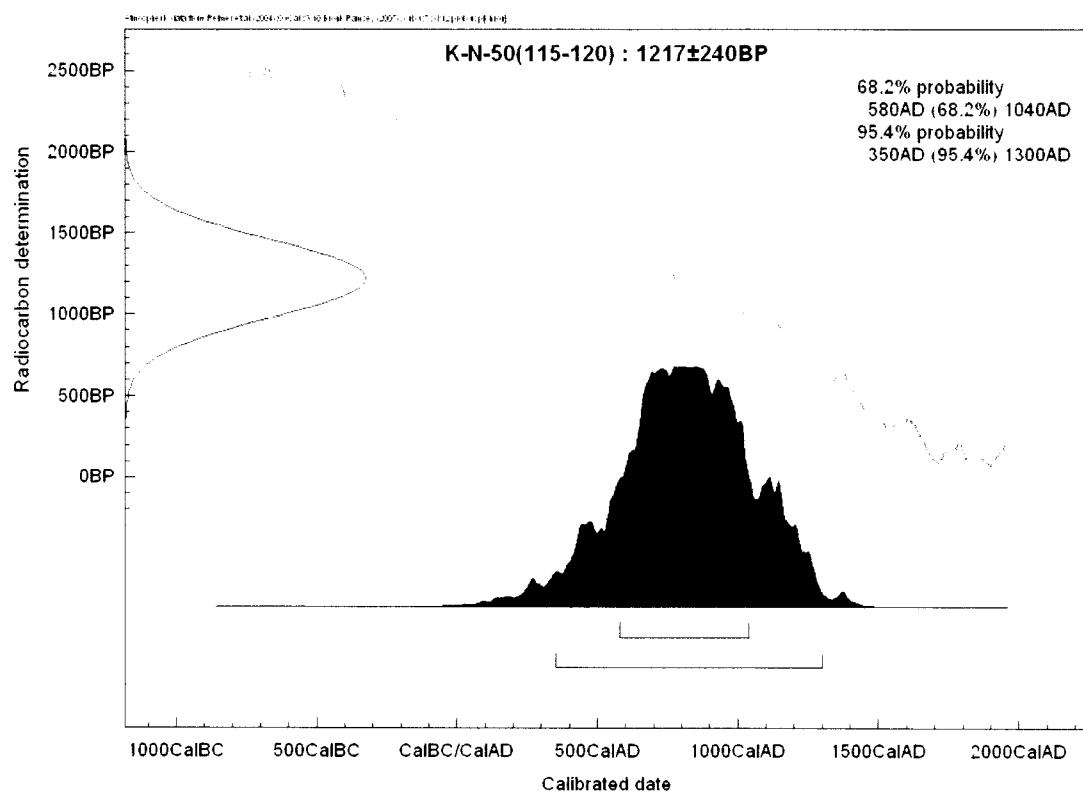
各試料の、BP 年代から暦年代に変換した結果を個別に示す。

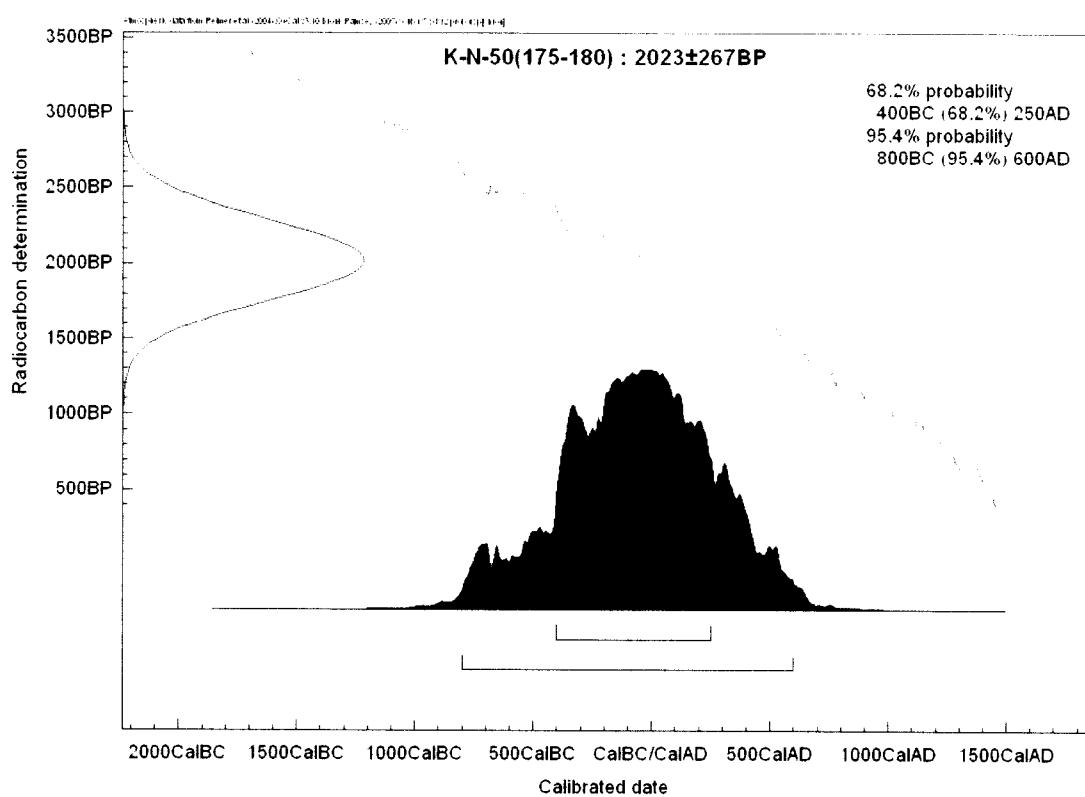
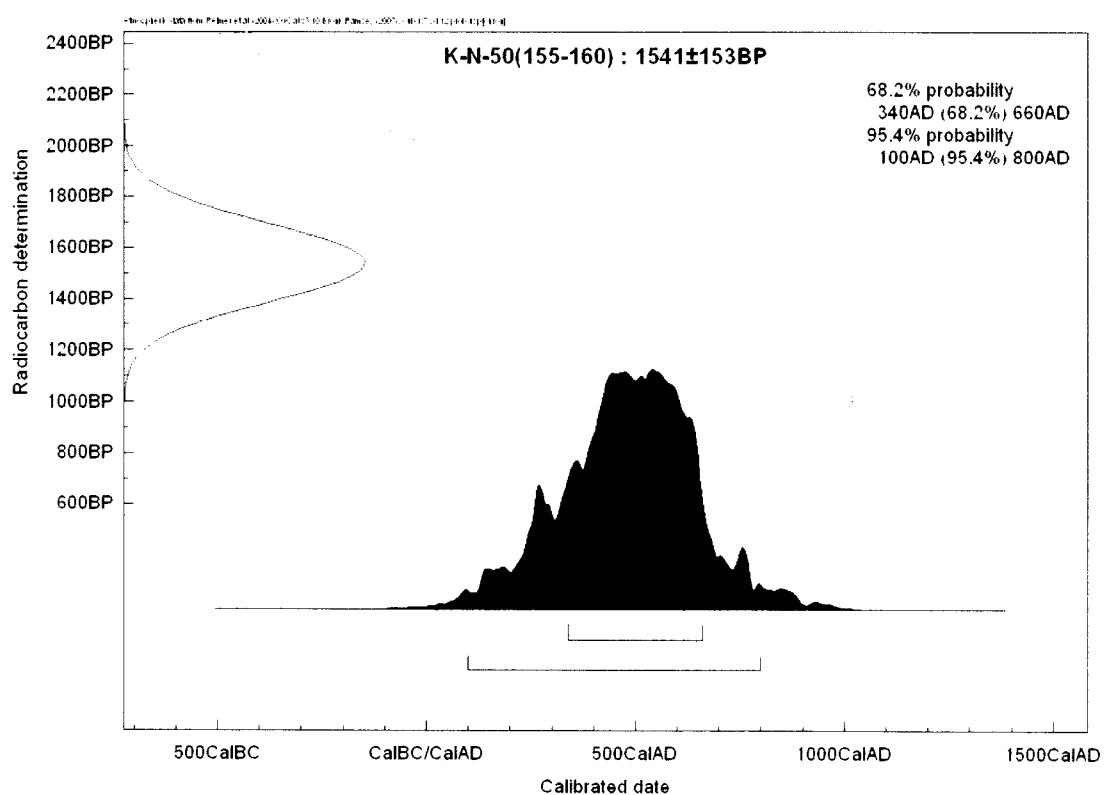
図の、上部中央に表示されている数字… 地点（深さ）：BP 年代  
縦軸… BP 年代の確率分布を赤色の曲線で表示  
青色の曲線… 較正曲線  
横軸… BP 年代を較正曲線にかけ、暦年代の確率分布に直したものと黒塗で表示  
上部右に表示されている数値…  $\sigma$ 、 $2\sigma$  の幅の暦年代  
である。

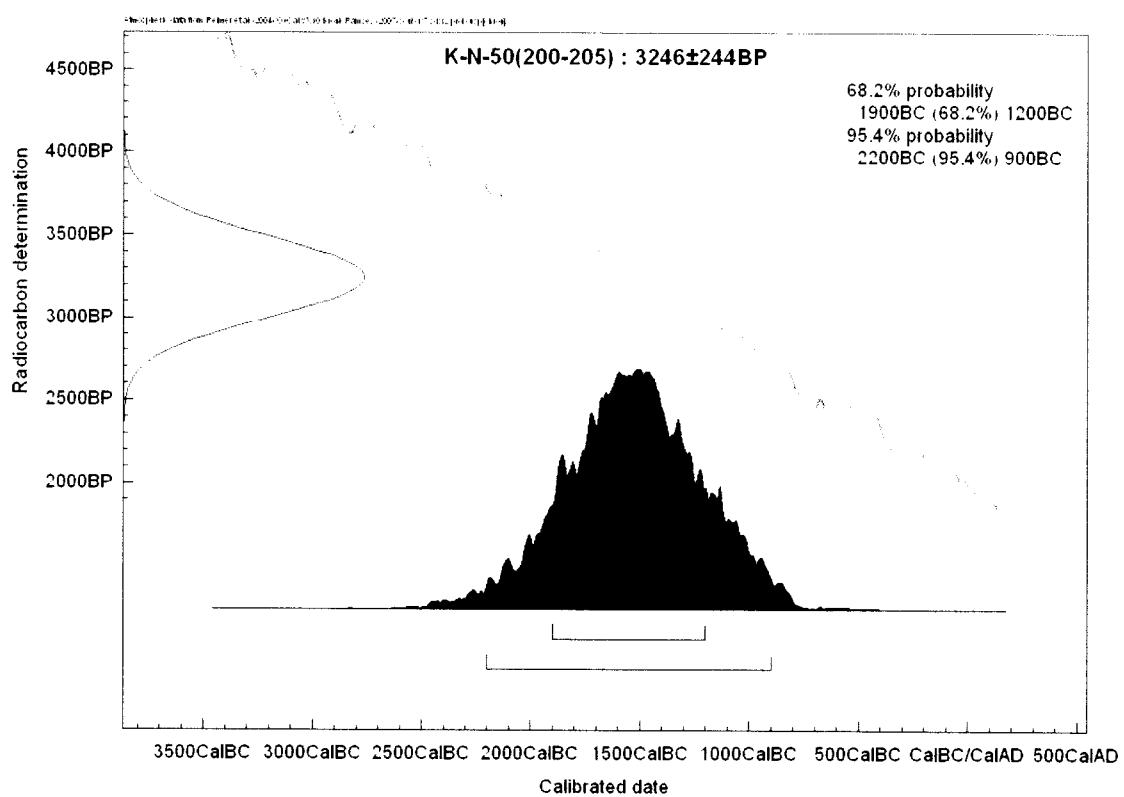
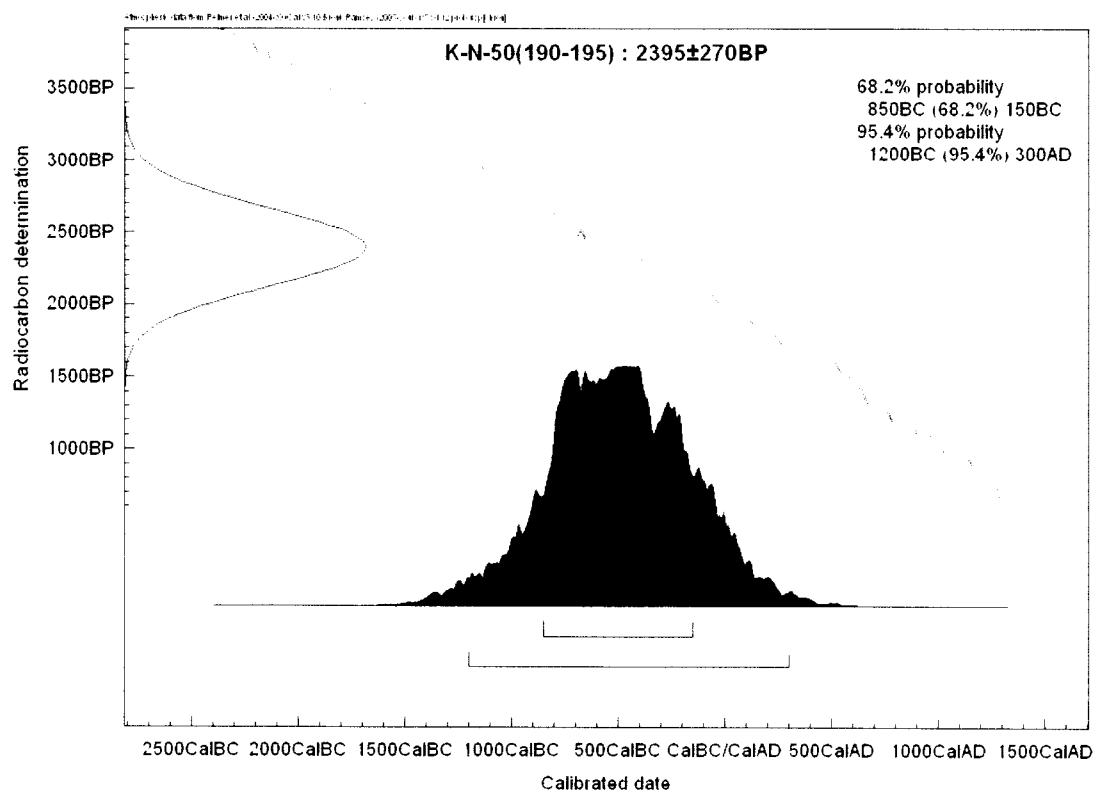
#### 羅臼木隠湿原 K-N-50 地点



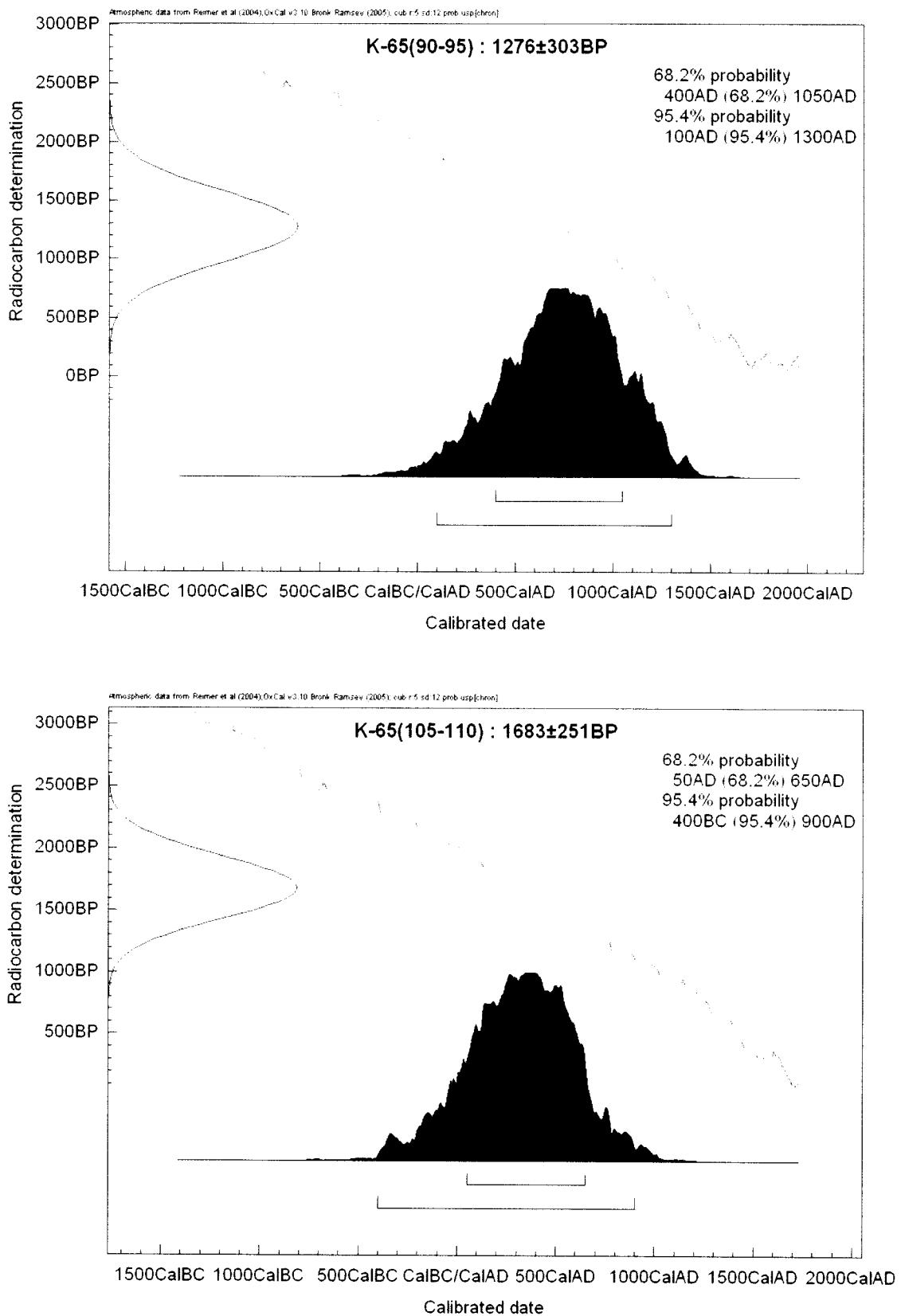




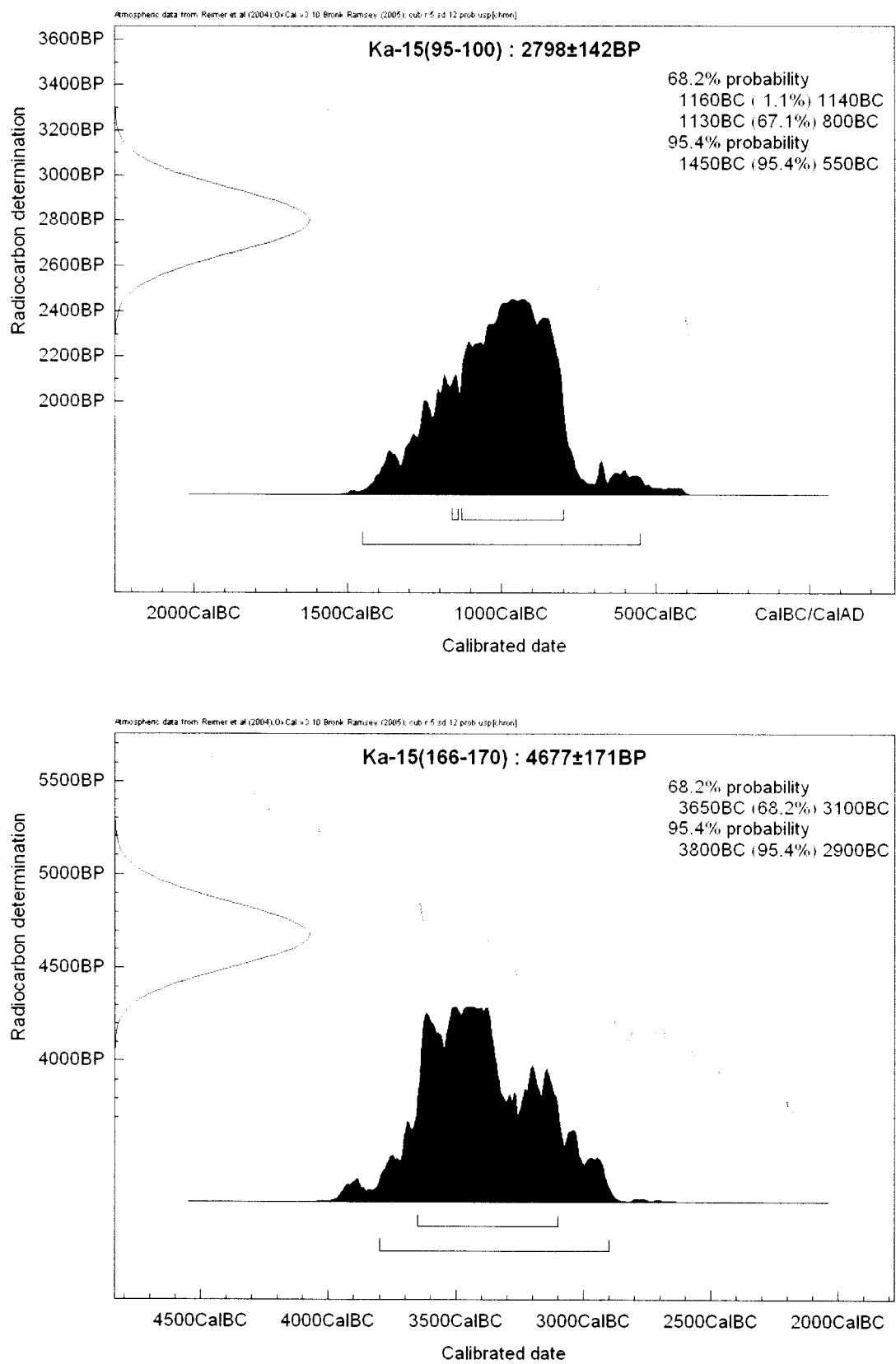




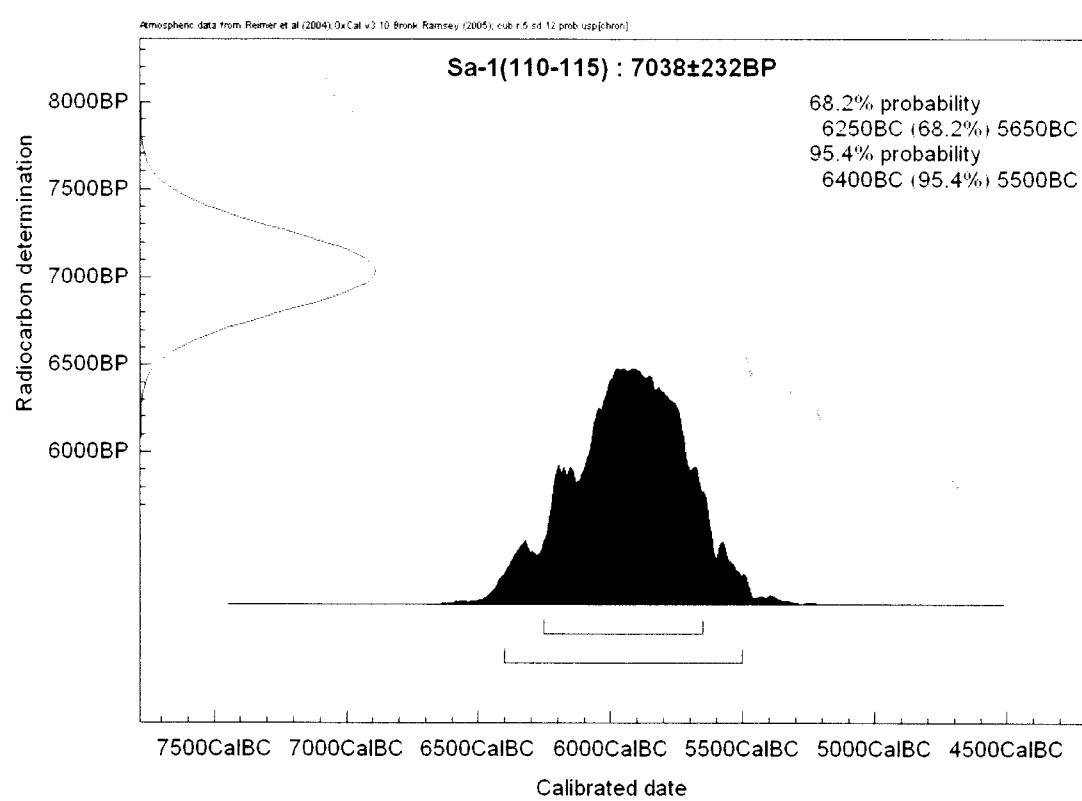
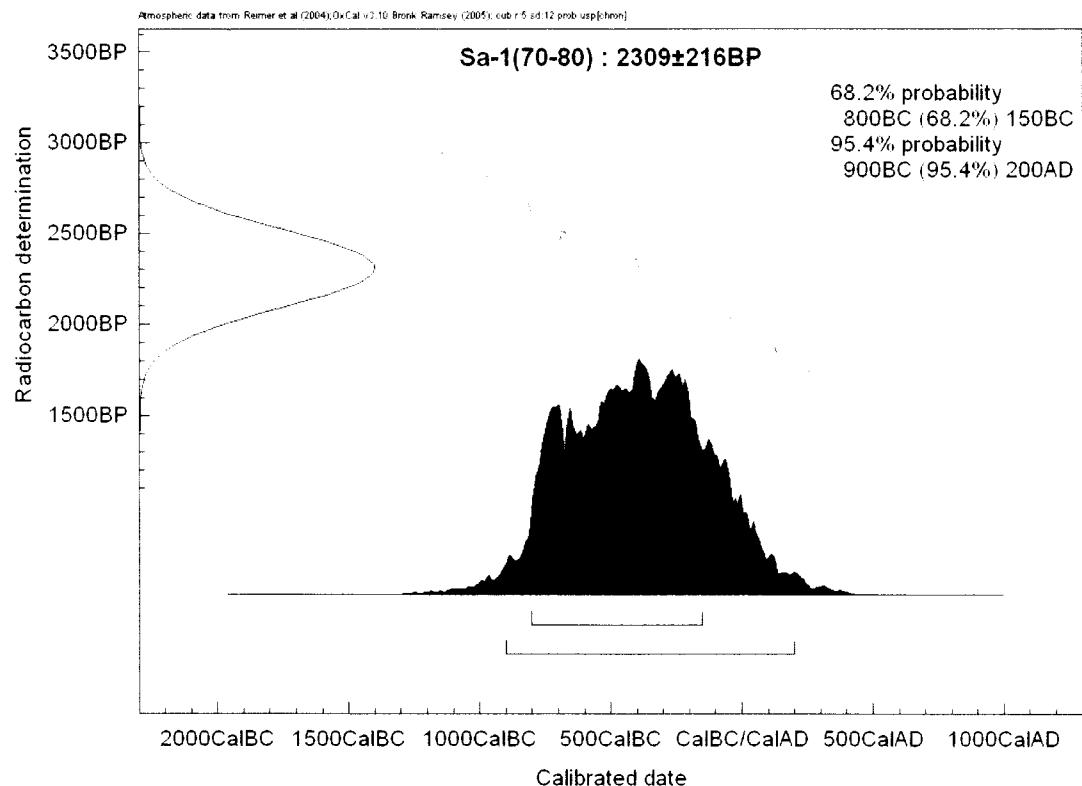
### K-65 地点



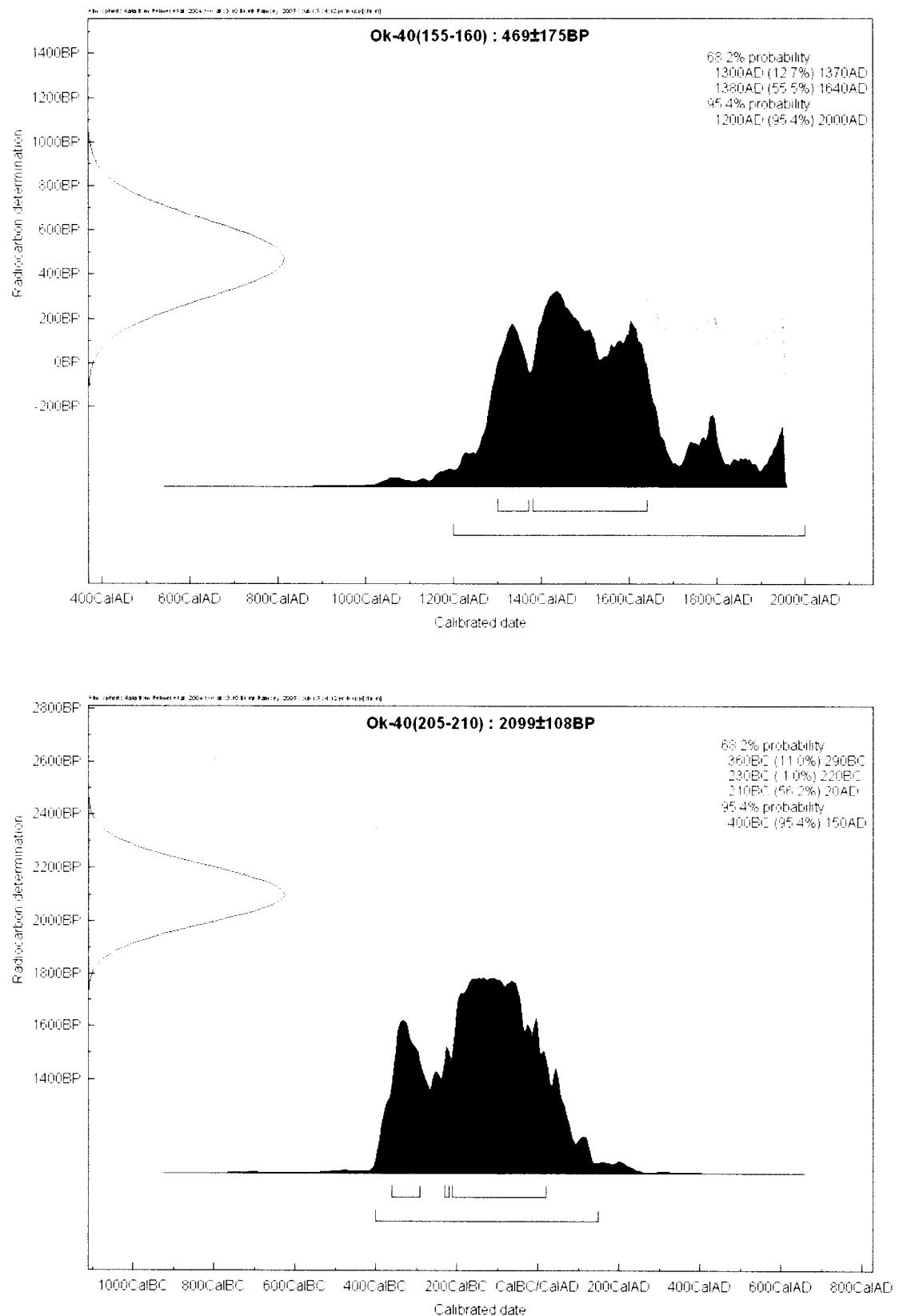
## 白馬岳神ノ田圃 Ka-15 地点

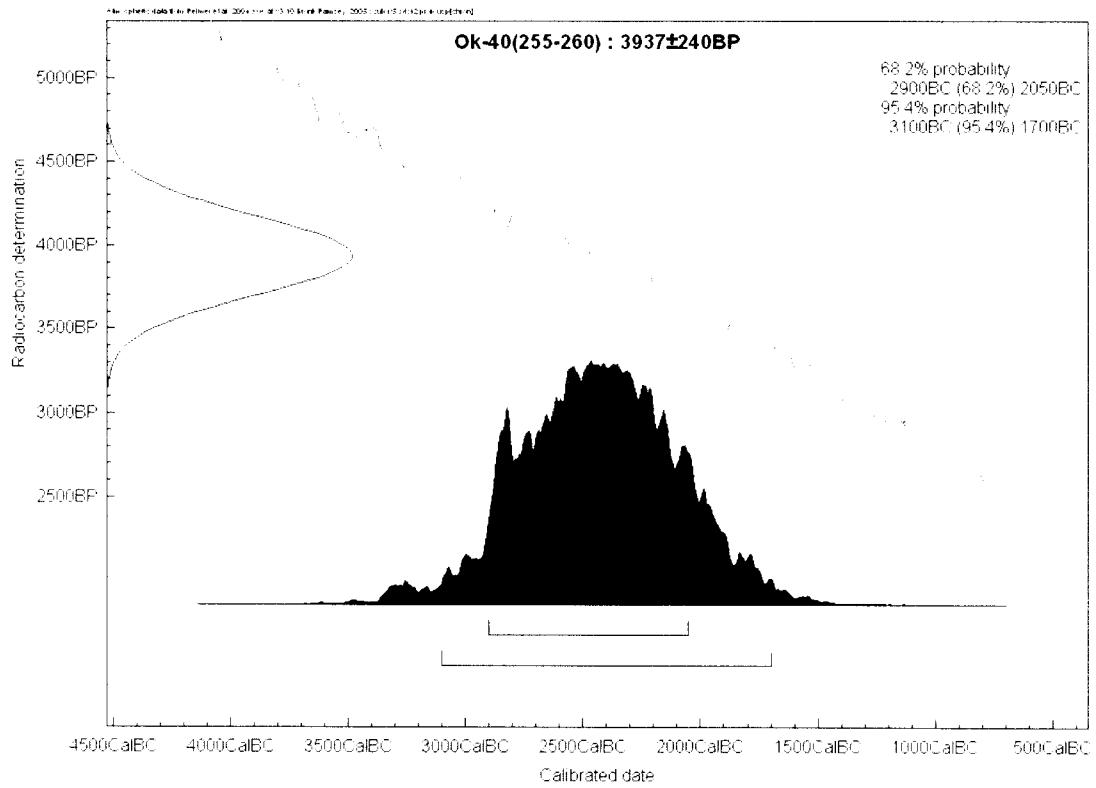


## 白馬岳成城小屋湿原 Sa-1 地点



曾爾高原お亀池湿原 Ok-40 地点





### 5・3・3 各地点ごとの結果

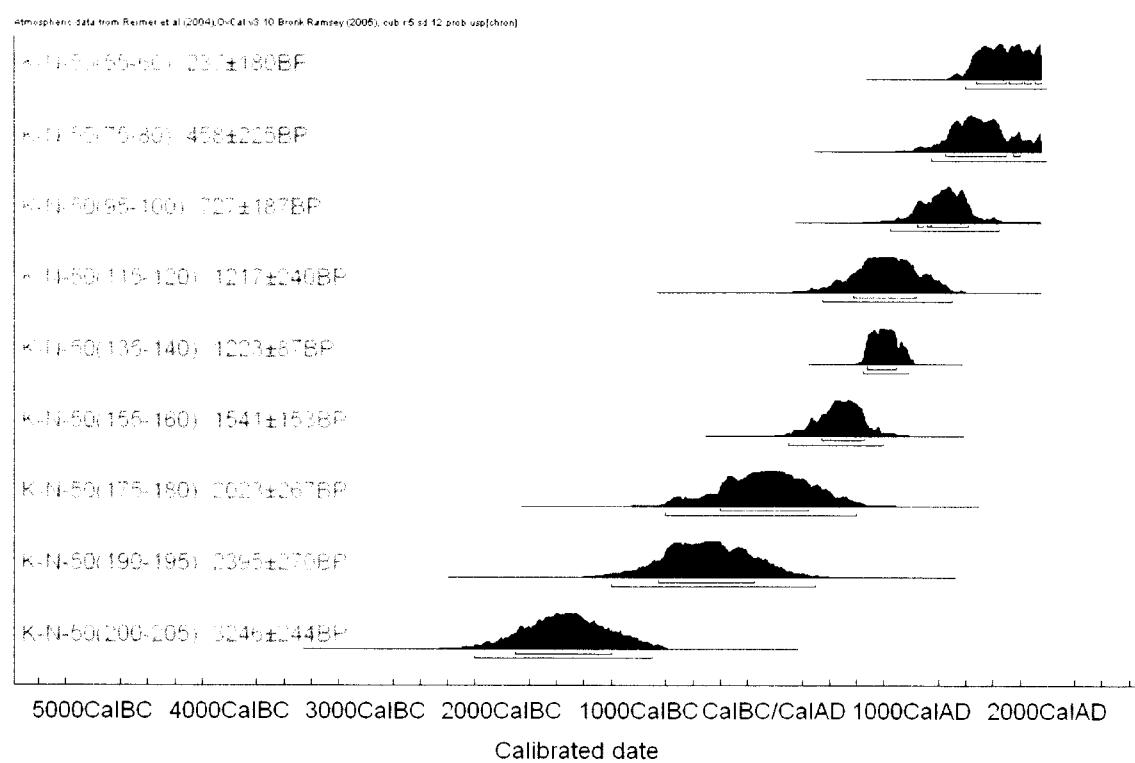
先に示した結果を各地点ごとにまとめて示す。

図の、左に表示されている数字… 地点（深さ） BP 年代

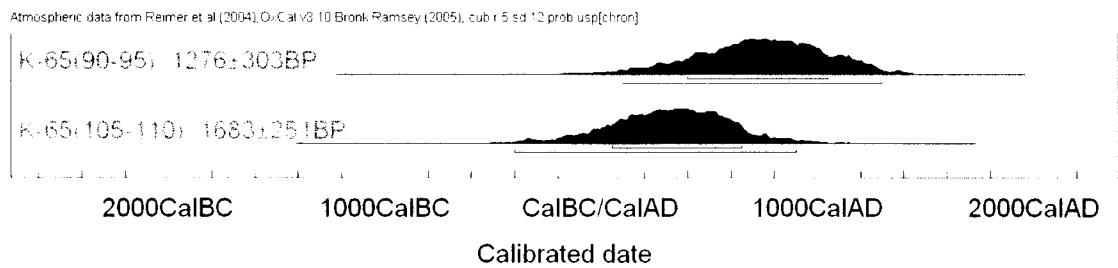
横軸… 曆年代の確率分布

#### 羅臼木陰湿原

##### K-N-50 地点

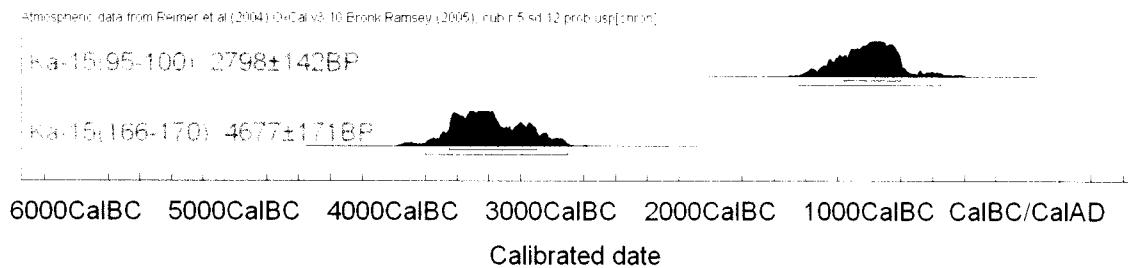


### K-65 地点



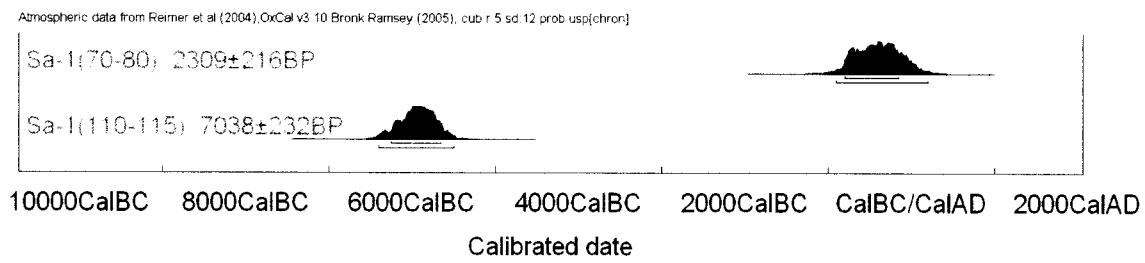
### 白馬岳神ノ田園

### Ka-15 地点



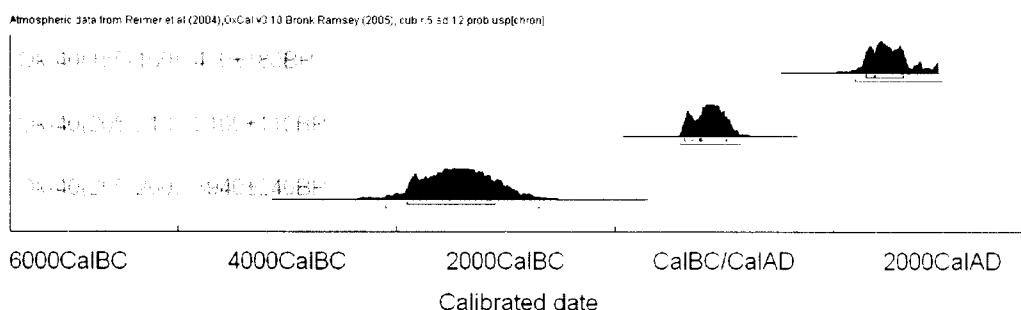
### 白馬岳成城小屋湿原

### Sa-1 地点



## 曾爾高原お亀池湿原

### Ok-40 地点



## 第6章 考察

得られた各湿原各層の測定結果から考察する。【11-13,20】

### 羅臼木隠湿原

K-N-50 地点の泥炭最下層付近の実験結果から、湿原形成はおよそ 3000 年前から開始されたと考えられる。

日本での湿原形成はおよそ 7000 年前から、北海道においては 5000 年前から開始されていることが指摘されている。知床半島は北海道北東端に位置していることが、北海道の中でも特に湿原形成時期が遅い大因だと考えられる。

K-65 地点は K-N-50 地点に比べて比較的ゆるやかな湿原発達をみることができる。測定層の間に火山灰層があるが、これは植物の分解が進む条件の一つである。

また、K-N-50 地点と K-65 地点を比較すると、ほぼ同年代に堆積した層の厚みに比較的大きな差があることが分かる。これは、地形的に K-N-50 地点の方が K-65 地点よりも湿原の発達し易い環境であることも大きく関与していると考えられる。このような同湿原内の異なる地点における形成速度の違いは、火山灰での年代解析結果によって指摘されており【11】、今回 AMS 法でも同結果を得たことは、意味が大きいと考える。

### 白馬岳神ノ田圃

火山灰による年代同定の基準のひとつである Ah 火山灰層（約 6500 年前）が、地表から約 2m 点にあることから、妥当な結果を得られたと考える。【12】

### 白馬岳成城小屋湿原

Ah 火山灰層が 110-115m 層の直上にあり、110-115m 層に関して比較的妥当な結果を得られ

たと考える。

大変緩やかな速度で湿原発達をしていることが分かった。途中に、堆積停止時期または極度に堆積の遅い時期があったのではないかと推察される。この発達速度のギャップの存在は、日本の氷河期末期以降の他湿原の形成発達とも調和的である。【4】

本測定実験での測定点が少ないため、深さ方向に測定点を増やすことで、より詳細に湿原発達速度の考察が可能である。

### 曾爾高原お亀池湿原

255-260cm（下部層、基底直上層）の結果から、湿原形成はおよそ4000年前から開始されたと考えられる。これは、既に報告されている年代と比較的よく一致している。【13】

お亀池湿原の泥炭層年代測定はどの年代測定法でも困難で測定例が少ないとことから、中間層に年代軸が入ったことで、今後の研究発展が期待される。

本実験では多雪地域に分布する湿原を主に扱っており、測定結果が氷河期末期以降の日本の環境変化を考える上でデータになることを期待するものである。しかし木隠湿原・神ノ田圃・成城小屋湿原とは異なり、お亀池湿原は池が乾燥してできた湿原なので、扱いに注意が必要である。

バックグラウンドについて、通常、連続した同測定期間のdeadを用いる。しかし都合上2006年6月の測定を2回に分けて行ったために、試料は前半、deadのみ後半で測定している。

また泥炭層の<sup>14</sup>C測定に関して、泥炭の堆積速度が異なるという報告【20】もあり、δ<sup>13</sup>C値については、各湿原についての詳細なデータと検討が必要である。

## まとめ

泥炭土に含まれる植物遺体の年代測定を通じて、ある程度学ぶことによって、初心者でも試料調整・測定実験が行なえることが分かった。ただし、よいコンディションを保った試料作成過程が重要であり、それにはより深い試料調整法及びシステムへの理解が必要である。

試料としては、年代の同定が難しいとされる湿原に関する植物遺体について取り組んだ。各湿原について堆積速度を検討することができた。各湿原について以下にまとめる。

### 羅臼木隠湿原

- ・ およそ 3000 年前から湿原形成が開始
- ・ 同湿原内での地形による形成速度の違い

### 白馬岳神ノ田圃

- ・ Ah 火山灰層の深さから相対的に考えて妥当な結果

### 白馬岳成城小屋湿原

- ・ 堆積停止時期または極度に堆積の遅い時期の存在

### 曾爾高原お亀池湿原

- ・ およそ 4000 年前から湿原形成が開始

今度は、より多くの試料について年代測定を行う必要がある。

同湿原について（特に白馬岳成城小屋湿原）、深さ方向への年代軸を加えることで、特に堆積速度について詳細を知ることができる。

また、日本は南北に細長く、太平洋側・日本海側で気候環境が異なる。今回測定した以外の日本の各泥炭土についても年代測定を行うことで、更なる氷河期末以降の気候変化についての検討が可能である。

## 参考文献

- 【1】 中村俊夫(1997):名古屋大学加速器質量分析業績報告書,VIII,p5-16
- 【2】 小林鉱一(2000):イオンビームによる物質分析・物質改,1.7 節 AMS,p145-168
- 【3】 シエリダン・ボウマン(1998):大英博物館双盾書 3 古代文明を解き明かす『年代測定』, 學藝書林
- 【4】 深澤優子(2004):加速器質量分析法による放射性炭素年代測定,奈良女子大学人間文化研究科 修士学位論文
- 【5】 A.Neftel,H.Oeschger,H.E.(1981):Earth and Planetary Sci.Lett.,56,p127-147
- 【6】 木越邦彦(1981):『核化学と放射科学』基礎科学選書,15,裳華房,250p
- 【7】 北川弘之,増澤敏行,松本英二,山口和典,中村俊夫(1991):名古屋大学加速器質量分析業績報告書,II,p113-122
- 【8】 M.Stuiver,A.Long,R.S.Kra and J.M.Devin(1993):Radiocarbon,35(1),224p
- 【9】 M.Stuiver,P.J.Reimer,E.Bard,J.Warrenbeck,G.S.Burr,K.A.Hughen,B.Kromer,G.McCormac,J.V.D.Plicht and M.Spurk(1998):Radiocarbon,40(3),p1041-1083
- 【10】 B.Ramsey(2005):OxCal program v3.10,Oxford University Radiocarbon Accelerator Unit
- 【11】 相馬秀廣(1985),遠音別岳原生自然環境保全地域調査報告書,p91-112
- 【12】 相馬秀廣(1988):奈良女子大学地理学研究報告III,p73-103
- 【13】 相馬秀廣(1992),泥炭層の物理的分析からみた氷河期における山地斜面の安定性の変遷,p46-54
- 【14】 M.Nakamura,Y.Tazawa,H.Matsumoto,M.Hirose,K.Ogino,M.Kohono and J.Funaba (1997):Nucl.Instr.and Meth.B123,p43-46
- 【15】 M.Nakamura,Y.Tazawa,H.Matsumoto,M.Hirose and K.Ogino(2000):Nucl.Instr. and Meth.B172,p124-128
- 【16】 M.Nakamura,Y.Tazawa,H.Matsumoto,M.Hirose K.Ogino,T.Nakanishi(2004): Nucl.Instr.and Meth.B223-224,p62-66
- 【17】 J.B.Marion,F.C.Young(1968):Nuclear Reaction Analysis,North-Holland Publishing Company
- 【18】 W.G.Mook,J.v.d.Plicht(1999):Radiocarbon,41(3),p227-239
- 【19】 中村正信(2002):?,?
- 【20】 蓑毛康太郎,赤木右,米村祥央,楊宗興,鶴田治雄,中村俊夫(1997):名古屋大学加速器質量分析業績報告書,VIII,p146-151

## 謝辞

放射線物理学や AMS 法に関してだけでなく多くの面でご指導下さいました坂本直樹教授に厚く御礼申し上げます。

試料提供の他、湿原に関するご助言及びご指導頂いた文学部 相馬秀廣教授に心から感謝いたします。

小川英巳教授、石井邦和助手には、ゼミや夜間測定実験などを通じて大変お世話になりました。狩俣順也技官には、実験をはじめ様々な場面でお世話になりました。ご指導及びご助言を頂き、誠にありがとうございました。

AAA 処理、データ整理、AMS 法の参考文献に関して、大阪教育大学 深澤優子様に丁寧なご指導及びご助言を頂きました。誠にありがとうございました。

その他の試料調整過程、測定実験においては、京都大学理学部 田澤雄二助手にご指導を賜りました。また、実験が行えるよう格別のご配慮を頂きました。ここに深く御礼申し上げます。

京都大学理学部 松本博技官、廣瀬昌憲技官には測定実験において、京都大学大学院工学研究科 土田秀次助手には夜間測定実験においてご協力頂きました。大変お世話になりました。皆様に深く感謝いたします。

最後に、夜間測定実験でお手伝いをしてくれた大畠珠代さん、吉村久美子さんをはじめ、研究室のみなさん、友人たち、両親に感謝いたします。