

## Be-10 および Al-26 の加速器質量分析

松崎 浩之\*

## Accelerator Mass Spectrometry for Be-10 and Al-26

Hiroyuki MATSUZAKI \*

## Abstract

In situ CRNs (Cosmogenic RadioNuclides) play a decisive role in the long term quantification of the geomorphological transformation rate, especially the rate of erosion. Among many kinds of CRNs,  $^{10}\text{Be}$  and  $^{26}\text{Al}$  are most often used for this application. Both nuclides have long half lives ( $1.36 \times 10^6$  yr,  $7.05 \times 10^5$  yr, respectively) and are extremely rarely abundant in the environment. To quantify these nuclides by mass spectrometry, isobar interferences (e.g.  $^{10}\text{B}$  against  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Mg}$  against  $^{26}\text{Al}$ ) must be effectively eliminated. Among many methods, only AMS (Accelerator Mass Spectrometry) can achieve this. The fundamental principles for isobar suppression in AMS are 1) selectivity in the negative ion generation and 2) isobar identification by the information of energy loss in media. The first characteristic derives from the basic AMS configuration, i.e., the combination of a negative ion source and a tandem type electrostatic accelerator. At the negative ion source, ion species of "negative electron affinity" cannot be ionized. For this reason,  $^{26}\text{Mg}$  ions are eliminated in the  $^{26}\text{Al}$ -AMS. The second feature can be realized by ion energies in the order of MeV/nucleon. In AMS, ions are accelerated to energies of several MeVs. In this energy range, the amount of energy loss in matter can be measured by a gas ionization chamber or a semiconductor detector. Isobars (like  $^{10}\text{Be}$  and  $^{10}\text{B}$ ) can be identified by the difference of their energy losses. The overall efficiency for  $^{10}\text{Be}$  detection in AMS is the order of  $10^{-3}$ . Considering typical production rates of  $^{10}\text{Be}$  in the quartz of the crust (3-30 atoms/g-quartz/yr) and a practical time scale of the application ( $> 1000$  yr), ca. 100 g quartz is needed for the AMS measurement within several per cent analytical error. Similarly, in the case of  $^{26}\text{Al}$ , the overall detection efficiency ( $10^{-4}$  order), typical production rates (20-200 atoms/g-quartz/yr), and practical exposure age ( $> 1000$  yr) also result in ca. 100 g quartz needed for the detection of  $^{26}\text{Al}$  within several per cent analytical error.

**Key words:** *Accelerator mass spectrometry, in situ cosmogenic radio nuclides, beryllium 10, aluminum 26*

---

2013年9月12日受付, 2014年1月28日改稿, 2014年1月29日受理

\* 東京大学大学院工学系研究科 原子力国際専攻

\* Department of Nuclear Engineering and Management, School of Engineering, The University of Tokyo, Yayoi 2-11-16, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0032, Japan

## 1. はじめに

In situ 宇宙線生成核種 (In situ Cosmogenic RadioNuclides: in situ CRNs) を利用した研究領域は、数ある加速器質量分析 (Accelerator Mass Spectrometry: AMS) の応用研究の中でも大きな広がりを見せる分野である。特に数千年～数万年というタイムスケールにおける地表面の侵食速度を定量的に評価できることから、地形変化の動的プロセスの研究に大きな役割を果たして来た (Cockburn and Summerfield, 2004)。地表面にまで到達するエネルギーの高い宇宙線 (主として、高エネルギーの二次中性子線) が鉱物中の原子と核反応を起こして生成する核種が測定対象となる。そのため、地表面の露出時間が長いほど、また侵食速度が遅い (すなわち、表面が削られてなくなっていく速度が遅い) ほど、生成核種濃度は高くなる。すなわち、比較的变化の遅い地形では、核種濃度が高くなるため、測定もしやすい。反対に、我が国のように、変化の早い地形では、濃度が低くなる傾向があるため、総合的に信頼度の高いデータを得ることが難しくなり、この手法の適用が遅れてきた。しかし、近年、AMS の性能の向上 (Matsuzaki et al., 2004)、前処理手法技術の向上 (若狭ほか, 2004)、試料採取法の工夫 (松四ほか, 2007) などによって、徐々に日本の地形への適用例が増えてきた (Matsushi et al., 2006; 若狭ほか, 2008; Matsushi and Matsuzaki, 2010)。特に、数千年～数万年のタイムスケールにおける地形表面の侵食速度は、使用済み核燃料の地層処分候補地に対して、地盤の長期安定性を評価する指標として重要視されており、In situ CRNs を利用した長期侵食速度の推定法が大きく注目されている (産業技術総合研究所深部地質環境研究コア編, 2012)。これらの応用研究によく利用される核種は、 $^{10}\text{Be}$  (半減期  $1.36 \times 10^6$  年)、 $^{26}\text{Al}$  (半減期  $7.05 \times 10^5$  年)、および  $^{36}\text{Cl}$  (半減期  $3.01 \times 10^5$  年) であるが、中でも特に  $^{10}\text{Be}$  と  $^{26}\text{Al}$  は、宇宙線による生成の代表的な標的 (宇宙線と核反応をしてこれらの核種を生成する対象物質) が O (酸素) と Si (ケイ素) であり、それらのみで構成される石英 ( $\text{SiO}_2$ ) が、地球上の多くの岩石に含まれる鉱物であることから、汎用性がある。核種の生成率は、宇宙線強度 (中性子フラックス) に依存するため、緯度や高度によって大きく変化するが、 $^{10}\text{Be}$  の場合で、3-30 atoms/g-quartz/yr、 $^{26}\text{Al}$  の場合で、20-200 atoms/g-quartz/yr 程度である (Bierman, 1994)。ごく大雑把に言えば、1000 年で、 $10^4$ - $10^5$  atoms/g の濃度となる。通常は、100 g 程度の石英を抽出・精製するので、 $10^6$ - $10^7$  atoms 程度の量が測定対象となる。本稿では、これだけ微量な核種を対象に、いかに AMS で測定するかについて、説明する。

## 2. AMS とは

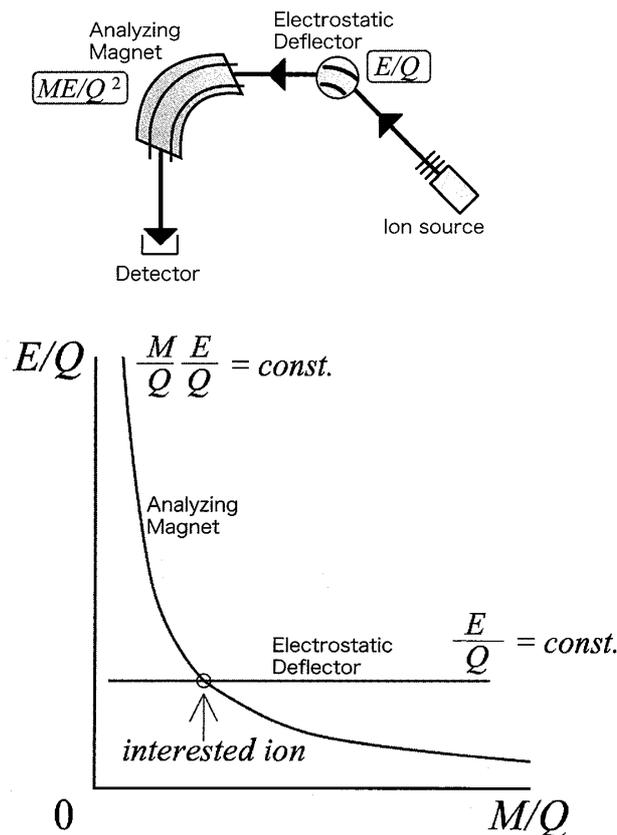
AMS システムは、加速器を組み込んだ質量分析計である。一般の質量分析同様、得られる測定データは、各同位体の絶対量ではなく、同位体比である。ただし AMS で特徴的なのは、 $^{10}\text{Be}$  や  $^{26}\text{Al}$  などの目的核種 (測定対象同位体) と、比較対象同位体 (豊富に存

在する安定同位体, ここでは  ${}^9\text{Be}$  や  ${}^{27}\text{Al}$  など) との同位体比が,  $10^{-15}$ – $10^{-11}$  という, 極めて小さい値をとることである. このような同位体比の場合, 通常の質量分析の手法では, 同重体や同重分子イオンの干渉で検出ができない. AMS では, イオンを加速し, 核子あたり MeV 程度のエネルギー (MeV/nucleon) を与えることにより, この同重体干渉を回避する.

## 2.1. 質量分析系の基本構成と限界

質量分析計では, まず分析対象試料をイオン源でイオン化し, 静電的に加速して, イオンビームとする. このイオンビームに対して, 静電場を用いたフィルター (静電ディフレクターなど) と磁場を用いたフィルター (分析電磁石など) を通して, 特定の質量数 (実際には, 電荷 ( $Q$ ) あたりの質量数 ( $M$ ):  $M/Q$ ) を分析することが, 質量分析系の基本である (Fig. 1).

加速されたイオンビームのエネルギーが十分一定であると見なされれば, 静電フィルターは省略されることもある. また, 分析電磁石の代わりに, 高周波四重極電極を用いる



**Fig. 1.** Fundamental structure of "mass spectrometry". By combination of an electrostatic deflector (selecting  $E/Q$ ) and an analyzing magnet (selecting  $ME/Q^2$ ), specific  $M/Q$  is selected. Here  $M$ ,  $E$ , and  $Q$  denote energy, mass, and charge, respectively.

場合もある（四重極型 ICP-MS など）。Fig. 1 から分かるように、質量分析計は、 $M/Q$  を分析するものであるため、同重体や、 $M/Q$  が等しい核種を分けることはできない。 $^{10}\text{Be}$  の場合は、 $^{10}\text{B}$  という安定同位体が存在する。また、 $^{26}\text{Al}$  の場合は、やはり安定同位体である  $^{26}\text{Mg}$  の存在が妨害となる。

## 2.2. 負イオン源とタンデム加速器の組み合わせによる AMS

現在の AMS は、負イオン源とタンデム加速器の組み合わせが主流である。タンデム加速器は、静電加速器の一種で、入り口と出口が接地（グラウンド）電位で、中央部（ターミナルと呼ばれる）に高電圧がかかっている。ここで入口から負イオンが入射すると、正の電位を持つターミナルに向かって引き寄せられ、加速される。ターミナル部には、薄いガス層か薄膜による荷電変換装置（ストリッパー）があり、加速された負イオンがこれを通過する際、電子を剥ぎ取られて正イオンに変換される。正イオンは、そのまま出口に向かって再度加速される（Fig. 2）。すなわち、負イオンと正イオンと二段階のステージで加速されるため、タンデムの名がついている。

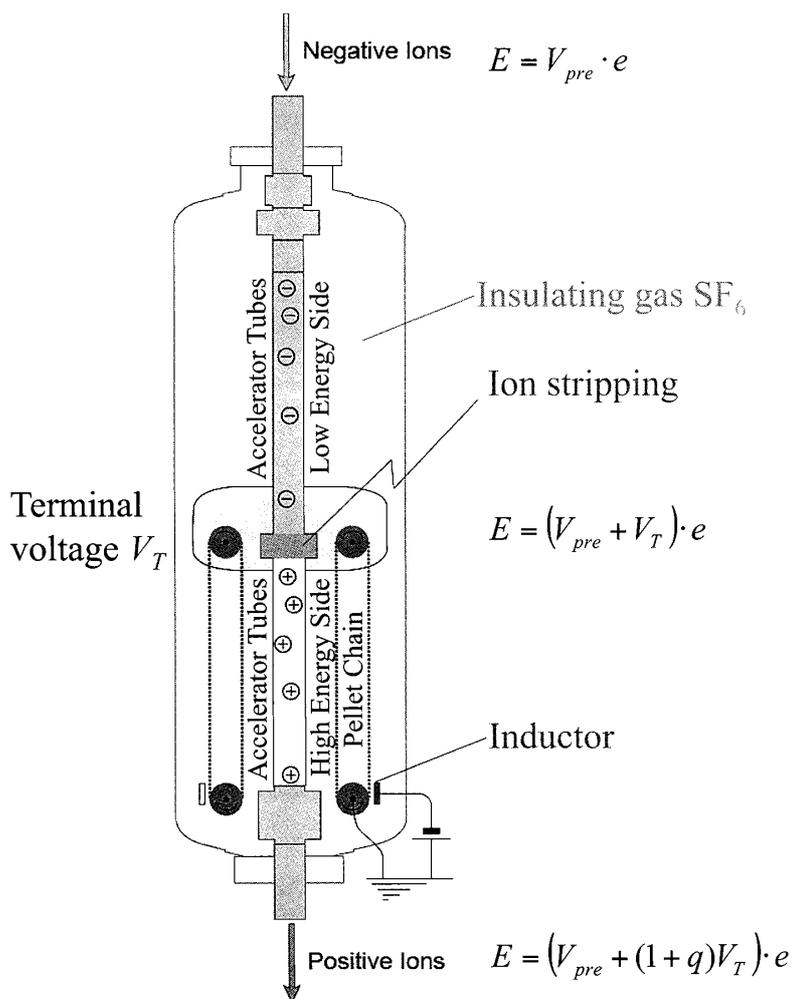


Fig. 2. Structure of Tandem electrostatic accelerator. Tandem accelerator accepts negative ions and ejects as positive ions.

荷電変換後の正イオンは、いろいろな電荷を取りえる。その電荷分布は、ストリッパを通過する際の速度やイオンの原子番号に依存する。電荷数 ( $q$ ) によって、後段の加速が変わるため、最終的な加速エネルギー ( $E$ ) は、イオン源での前段加速電圧を  $V_{\text{pre}}$ 、加速器ターミナル電圧を  $V_{\text{T}}$  とすると、

$$E = (V_{\text{pre}} + (1+q)V_{\text{T}}) \cdot e \quad (1)$$

となる ( $e$  は電気素量である)。また、後述する  $^{10}\text{Be-AMS}$  のように、加速器には分子イオン (質量  $M_i$ ) で入射するものの、ターミナルでの解離を経て目的核種 ( $M_p$ ) の原子イオンとなる場合には、

$$E = ((V_{\text{pre}} + V_{\text{T}}) \cdot (M_p/M_i) + qV_{\text{T}}) \cdot e \quad (2)$$

となる。

上記のプロセスには負イオン入射が必須なため、タンデム加速器による AMS では、イオン源は必ず負イオン源となる。イオン源としては、Cs スパッター型固体イオン源が代表的である。負イオンの生成には、原子の電子親和力 (負イオンへのなりやすさ) が大きく影響する。このことは、組み合わせによっては、同重体抑制に大きく貢献する。例えば放射性年代測定に用いられる炭素 14 の AMS ( $^{14}\text{C-AMS}$ ) では、炭素は電子親和力が  $1.26 \text{ eV/atom}$  であるのに対して、その同重体となる窒素 ( $^{14}\text{N}$ ) の電子親和力は、 $-0.07 \text{ eV/atom}$  である (Middleton, 1990)。すなわち負イオン源においては、炭素はイオン化されるが窒素はイオン化されず、この段階ですでに同重体  $^{14}\text{N}$  が効率よく取り除かれていることになる。したがって、 $^{14}\text{C-AMS}$  における妨害は、 $^{13}\text{CH}$  や  $^{12}\text{CH}$  などの同重分子イオンがメインになる。これらは、タンデム加速器の荷電変換部 (ストリッパ) でのガスとの衝突により分解され、後段の質量分析系で取り除かれる。このように、負イオン源とタンデム加速器の組み合わせは、 $^{14}\text{C-AMS}$  にとって大変有利な特徴を持っているため、AMS の主流になったといえる。

### 2.3. 最終検出器による同重体分離

同重体イオンは、イオン源から放たれさえすれば、質量分析系では目的核種イオンと同じパスを通るため、最終検出器まで到達する。しかしここで、イオンが  $\text{MeV/nucleon}$  程度のエネルギーを持っている場合には、物質とイオンとの相互作用の情報を取り出すことができる。例えば、イオンをガス中に導くと、ガス分子 (希ガスの場合は原子) をイオン化し、自らはエネルギーを失っていく (これをエネルギー損失という)。その際、失ったエネルギーに比例した数の電子が生成するので、この電子を集めて、電気信号として観測すれば、イオンのエネルギー損失を測定することができる。ガス等の媒体中でのエネルギー損失は、イオンのもつ電荷に依存する。イオンは、AMS で扱っているエネルギー領域では、すべての電子がはぎ取られたフルストリップ状態では無く、部分的に電荷を持つ状態で、かつ媒体分子との相互作用によって、その電荷数が変化する。そのため、多数の

イオンの電荷状態は「電荷分布」を持つわけであるが、その平均、すなわち平均電荷は、イオンの原子核中の陽子数（すなわち原子番号）に依存する。したがって、原子番号の異なる同重体間でエネルギー損失の様子が異なる。この差異を取り出すことによって、妨害となる同重体を測定対象同位体から分離することができる。後に示す  $^{10}\text{Be}$  に対する  $^{10}\text{B}$  のように、あからさまな同重体干渉がある場合には、ガスカウンターのように二次元以上の信号を取得できる検出器が有効である。一方で、 $^{14}\text{C}$  のように、最終検出器では同重体の妨害が無い場合には半導体検出器などによる一次元のエネルギースペクトルでも、目的核種の検出が十分可能である。

#### 2.4. 安定同位体の測定

AMS は、同位体比を測定するものであるから、目的核種だけでなく、比較対象同位体も加速器に入射し、同じ電荷数のもの同士を検出・比較することが望まれる。通常、イオン源から出たイオンは、入射電磁石によって特定の質量数が選択された後、加速器に入射する。したがって、このままでは、異なる質量数のイオンを加速器に入射することはできない。そこで、以下のような工夫がなされている。

まず、入射電磁石内のビームが通るダクトを前後のビームダクトと電氣的に絶縁し、これに独自の電圧をかける。すると、この部分を通過する際、イオンは電圧に応じて加速されることになる。一方で、入射電磁石の磁場が不変であれば、イオンがそこを正しく通過するために必要な運動量は変わらない。その結果、かける電圧次第で異なる質量数のイオンを加速器に入射することが可能となる。いま、絶縁ダクトに電圧をかけていない状態で、質量数  $M$  (イオン源での前段加速電圧を  $V_{\text{pre}}$  とする) のイオンが加速器に入射するように、入射電磁石の磁場が決まっているとしよう。このとき、質量数  $M'$  ( $< M$ ) のイオンを加速器に入射するためには、 $V = (M/M' - 1)$  の付加的電圧をかければ良いことが分かる。

実際の AMS では、ダクトに付加する電圧をサブミリ秒オーダーの周期で切り替えることによって、異なる質量数の同位体をほぼ同時とみなせる状態で加速器に入射することができる。また、安定同位体の入射時間の割合を十分小さくすれば、加速器に入射する実効電流を小さく抑えることができ、加速器への負担も小さくすることができる。この方法は、逐次入射 (Sequential injection) または、ジャンピング (Jumping) と呼ばれている。

こうして質量数の異なる目的核種と安定同位体を逐次的に加速器に入射した場合、加速後の分析電磁石では、質量数に応じて、双方は異なる軌道をとる。目的核種が中心軌道を通るように磁場を設定しておけば、安定同位体の軌道は、中心軌道からずれるため、分析電磁石後に、中心ビームコースからずらした場所にファラデーカップを設置し、これで安定同位体を捉える。安定同位体が目的核種より軽い (質量数が小さい) 場合には、ファラデーカップはビームラインの内側に設置され、そうでない場合は、外側に設置される。AMS では、さまざまな場合に対応するため、複数の“ずらした”ファラデーカップを設置することが多く、これをマルチファラデーカップと呼んでいる。

## 2.5. 標準試料

前節までの方法で測定して、得られる同位体比は、一般には、真の同位体比とは系統的にずれている。なぜなら、イオン源におけるイオン化効率や加速器の荷電変換部を通過後の荷電分布（チャージフラクション）が、同位体間で異なるからである。さらに、稀な同位体は、イオンカウンティングで、安定同位体はファラデーカップで、というように測定手段が異なるため、測定効率やゲインを完全に等しくすることはできない。しかし、AMS システムを十分安定に保つことができれば、測定される同位体比と真の同位体比とのずれ（比）は一定とみなすことができる。その場合、同位体比が既知である標準試料を測定し、測定で得られた同位体比（**measured ratio**）と既知の同位体比（**known ratio**）との比（**m/k 比**）をとって、そのシステムの規格化係数（**normalization factor**）を求めることが可能となる。未知試料の真の同位体比は、測定値をこの係数で除することによって、求められる。以上のように、AMS では標準試料の測定は極めて重要である。よって標準試料には、国際的にコンセンサスの得られている共通のものを用いることが望ましい。

## 3. $^{10}\text{Be}$ -AMS

### 3.1. ターゲットと引き出しイオン

AMS では、イオン源に装填する試料をターゲットと呼ぶ。ターゲット物質は、 $^{10}\text{Be}$ -AMS の場合は、酸化ベリリウム（ $\text{BeO}$ ）に Nb を混合したものが用意される。ベリリウム（Be）原子は、安定した負イオンを作ることができない。そのため、イオン源からは、分子イオン（ $\text{BeO}^-$ ）として引き出される。イオン源でのイオン化効率は、1%程度である（Middleton, 1990; Horiuchi, private communication）。 $\text{BeO}^-$ イオンは、タンデム加速器のターミナルで乖離し、 $\text{Be}^{q+}$ イオンと  $\text{O}^{q+}$ イオンとに分離する。

### 3.2. 内部ビームモニター法

$^{10}\text{Be}$  は、 $^{10}\text{Be}^{16}\text{O}^-$ として、質量数 26 で加速器に入射する。安定同位体  $^9\text{Be}$  に関しては、もっとも豊富なイオンは、質量数 25 の  $^9\text{Be}^{16}\text{O}^-$ ということになる。同位体比を測定するためには、質量数 25 と 26 で逐次入射を行い、加速後の  $^9\text{Be}^{q+}$  をマルチファラデーカップで測定することも考えられる。しかし、 $^{10}\text{Be}$  の場合、ターゲット物質中に自然に含まれる天然の酸素同位体（ $^{17}\text{O}$ ）を利用したもう一つの巧妙な方法が存在する。つまり質量数 26 の  $^9\text{Be}^{17}\text{O}^-$  は、同じ質量数を持つ  $^{10}\text{Be}^{16}\text{O}^-$  と同時に加速器に入射することから、ターミナルで乖離した  $^9\text{Be}^{q+}$  イオンや  $^{17}\text{O}^{q+}$  イオンを、特別な操作を経ずにマルチファラデーカップにて測定することができる。イオン源で生成した  $^{10}\text{Be}^{16}\text{O}^-$  と  $^9\text{Be}^{16}\text{O}^-$  の比はターゲット中の  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  比を反映し、同様に  $^9\text{Be}^{17}\text{O}^-$  と  $^9\text{Be}^{16}\text{O}^-$  の比は天然の酸素同位体比をするとみなすことができる。よって、観測された単位時間あたりの  $^{10}\text{Be}^{q+}$  イオンと  $^{17}\text{O}^{q+}$  イオンとの比は、以下のようにターゲットの  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  比と比例関係にあることが期待される：

$$\frac{[^{10}\text{Be}^{q+}]}{[^{17}\text{O}^{q'+}]} = \frac{[^{10}\text{Be}^{16}\text{O}^-] \times f_q^{\text{Be}}}{[^9\text{Be}^{16}\text{O}^-] \times a_{17/16} \times f_q^{\text{O}}} \quad (3)$$

ここで、 $f_q^{\text{Be}}$ は、ターミナルでの荷電変換後の  $\text{Be}^{q+}$  の荷電分率（生成した正イオンのうち  $q+$  の割合）、は同じく  $\text{O}^{q'+}$  の荷電分率、 $a_{17/16}$  は天然の  $^{17}\text{O}/^{16}\text{O}$  比である。この式からターゲットの  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  比を正確に求めるためには、比例係数  $f_q^{\text{Be}}$  と  $f_q^{\text{O}}$  および  $a_{17/16}$  を正確に知る必要がある。しかし、前述のように（ $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  比が既知の）標準試料との比をもってターゲットの  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  比を求めるのであれば、比例係数は双方に共通とみなすことができるので、これらの項はキャンセルされる。この方法は、内部ビームモニター法と呼ばれる（Kobayashi et al., 2000）。東京大学タンデム加速器研究施設 MALT では、この方法を用いており、ターミナル電圧 4.8 MV において、 $^{10}\text{Be}^{3+}$  と  $^{17}\text{O}^{5+}$  を測定している。

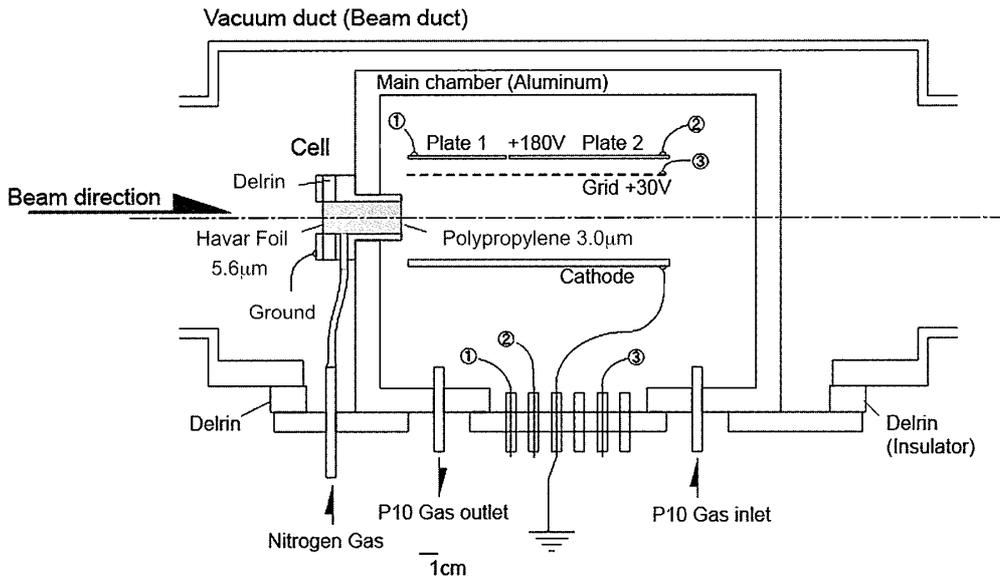
### 3.3. $^{10}\text{Be}$ の検出

$^{10}\text{Be}$  の検出には Fig. 3 のようなガスカウンターを用いる。このようなガスカウンター中では、 $^{10}\text{Be}$  とその同重体  $^{10}\text{B}$  のエネルギー損失の様子は、Fig. 4 のように異なる。つまり、同重体  $^{10}\text{B}$  は  $^{10}\text{Be}$  より原子番号が大きく、媒体中でのエネルギー損失がより大きい（媒体中で止まりやすい）。よって、ガスカウンター本体の入り口に特別なセルを設け、そこで  $^{10}\text{B}$  のエネルギーを可能な限り損失させた後で、ガスカウンターにて  $^{10}\text{Be}$  のシグナルを取っている（Matsuzaki et al., 2004）。ただし、Fig. 4 に示したエネルギー変化は、平均的なものであり、実際には、エネルギーストラッグリングという現象により、エネルギー損失をするに従って、エネルギー分布に広がりが生じる。 $^{10}\text{B}$  の一部のイオンは、エネルギーをあまり失わずにカウンターの主要部まで入り込む。そのため、実際に得られるスペクトルでは、Fig. 5 のように、 $^{10}\text{B}$  の高エネルギー側にテイルが見られる場合がある（前処理で十分 B を少なくすればこのテイルはほとんど見られない）。

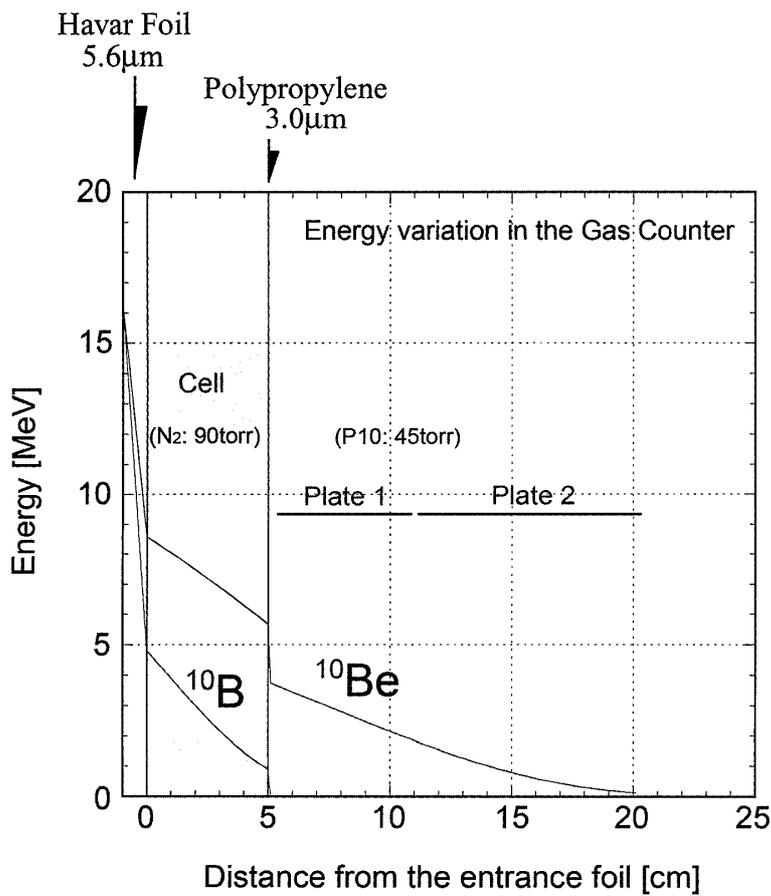
Fig. 5 において、 $^{10}\text{Be}$  の左上に見えているシグナルは、ガスカウンター入り口の膜（ハーバーフォイル）表面において、 $^{10}\text{B}(\text{p}, \alpha)^7\text{Be}$  反応で生じた  $^7\text{Be}$  である。また、この反応に付随して生成した  $\alpha$  粒子によるシグナルが、スペクトルの左下に現れていると考えられる。 $^7\text{Be}$  や  $\alpha$  粒子のシグナルは、前処理で Be を十分精製することができればスペクトル上に現れることはない。しかし、試料によっては、精製が不十分なために、B の混入を許してしまう場合がある。その場合  $^7\text{Be}$  は、スペクトル上で広域に連続的に出現し、その一部が  $^{10}\text{Be}$  の領域に入ることによって測定のバックグラウンドを上昇（悪化）させてしまう。その際に、 $^7\text{Be}$  の領域や  $\alpha$  粒子の領域中のシグナルを数え、それに基づいて  $^{10}\text{Be}$  の領域に混入した  $^7\text{Be}$  の量（すなわちバックグラウンドの量）を推定する方法もある（Matsushi, private communication）が、測定結果の信頼性は下がらざるを得ない。

### 3.4. $^{10}\text{Be}$ 標準試料

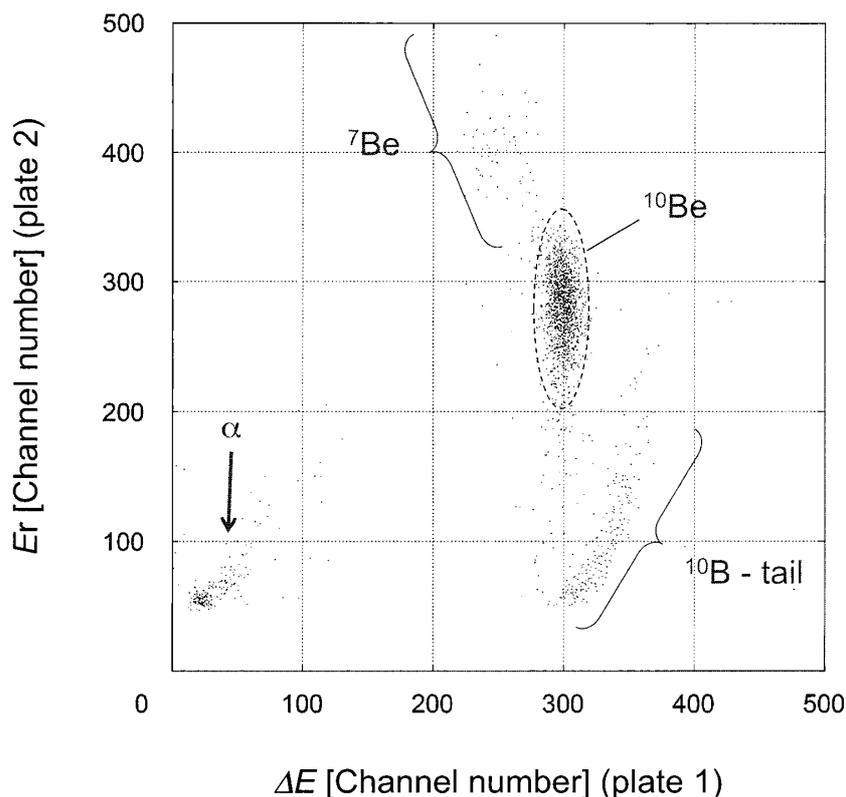
$^{10}\text{Be}$ -AMS においては、米国 NIST が提供している標準試料（SRM4325）と、カリフォルニア大学バークレー校の K. Nishiizumi が 2001 年に作成・配布している標準試料（以



**Fig. 3.** A gas ionization detector for  $^{10}\text{Be}$ -AMS. An entrance cell is set prior to the main gas chamber to eliminate the isobar  $^{10}\text{B}$ . This is currently used at MALT, The University of Tokyo.



**Fig. 4.** Energy profiles of  $^{10}\text{Be}$  and  $^{10}\text{B}$  ion along with the ion passage. The distance indicated in the figure is corresponding to the geometry of the gas ionization detector presented in Fig. 3.



**Fig. 5.** An example of 2-dimensional spectrum obtained by the gas ionization detector for  $^{10}\text{Be}$ -AMS. In this spectrum  $^{10}\text{B}$  tail and other signals are also appeared. They should be vanished if the sample pre-treatment is complete.

後、KN-standard と称する) を用いる研究施設が多い。後者は、ICN (ICN Chemical & Radioisotope Division, Irvine, California, USA) の提供した  $^{10}\text{Be}$  の標準溶液を安定同位体の  $^9\text{Be}$  を加えることによって希釈したものである。(元の ICN 溶液の  $^{10}\text{Be}$  濃度は、放射能値で決められており、統計誤差が 5% あるとのことである (今村, 2003)。K. Nishiizumi は、放射能を同位体比に直すときに、当初  $^{10}\text{Be}$  の半減期として、当時用いられていた  $1.5 \times 10^6$  年という値を用いたと述べている (Nishiizumi, 2003)。その後、同位体比の絶対測定を高精度 ( $\pm 1.1\%$ ) で行い、公称値を改定している (Nishiizumi, 2007)。また改定した値に基づけば、 $^{10}\text{Be}$  の半減期は  $(1.36 \pm 0.07) \times 10^6$  年と計算される。実は以前から、NIST-SRM4325 と KN-standard との間には値のずれが存在するとの認識があった (Nishiizumi, 2003; Horiuchi et al., 2004)。しかし、KN-standard の公称値の改定後には、双方はほぼ整合することになった。

#### 4. $^{26}\text{Al}$ -AMS

##### 4.1. ターゲットと引き出しイオン

ターゲットには、アルミの酸化物 ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) を銀粉末に混合してプレスしたものをを用い

る。このターゲットから生成する負イオンとしては、通常は  $\text{Al}^-$  を用いる。アルミニウムの電子親和力は 0.441 eV と、正ではあるが、大きくない。そのため、Cs スパッターのイオン化効率は、0.1%程度にとどまる (Middleton, 1990, Horiuchi, private communication)。しかしながら、電子親和力が負であるマグネシウムイオンの生成を抑制することができるため、 $^{26}\text{Mg}$  の干渉を避ける事ができる。実際には、酸化物ターゲットから引き出されるイオン電流は、 $\text{AlO}^-$  の方が数十倍大きなものとして得られるが、 $^{26}\text{MgO}^-$  の混入を許してしまうと、最終検出器で、重大な同重体干渉が起きる。

#### 4.2. 逐次入射法

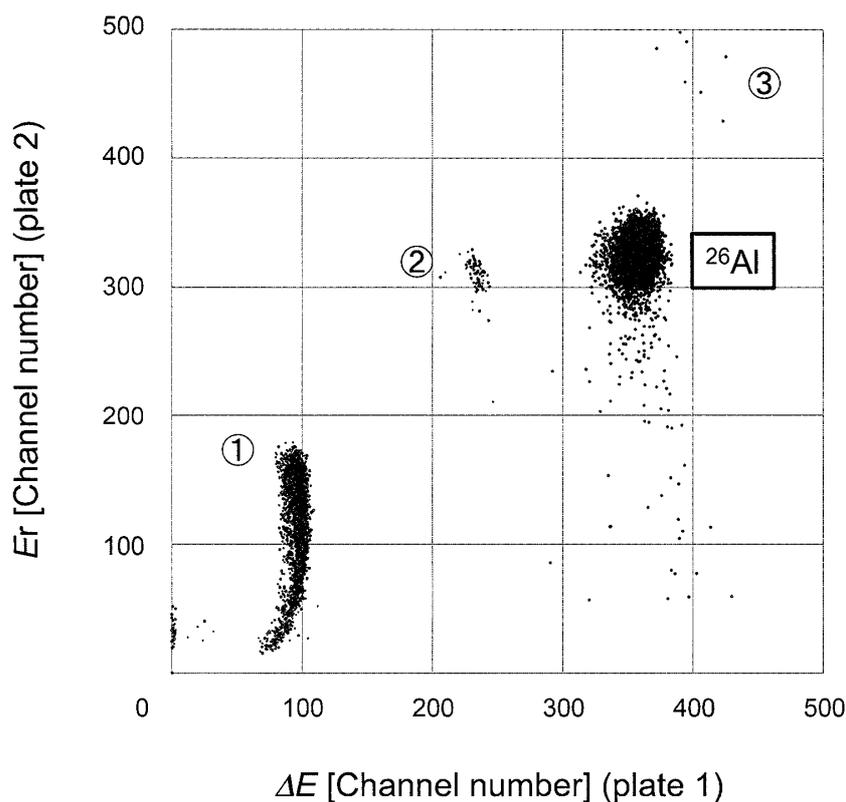
質量数 26 ( $^{26}\text{Al}^-$ ) と 27 ( $^{27}\text{Al}^-$ ) でジャンピングを行う。タンデム加速器での加速後、 $^{27}\text{Al}^{q+}$  は、分析電磁石後のマルチファラデーカップで、 $^{26}\text{Al}^{q+}$  は最終検出器で測定する。なお、東京大学 MALT では、加速器のターミナル電圧は  $V_T = 4.3 \text{ MV}$ 、電荷は  $q = 3$  を選んでいる。

#### 4.3. $^{26}\text{Al}$ の検出

ガスカウンターを用いる。イオン源での引き出しイオンとして  $^{26}\text{Al}^-$  を選択する場合には、 $^{26}\text{Mg}$  による同重体干渉は無視出来る。しかし、最終検出器には、 $^{26}\text{Al}$  以外の成分が観測されることがあり、長時間の測定においては、バックグラウンドに影響する可能性が指摘されている (Horiuchi et al., 2007)。Fig. 6 は、そのようなスペクトルの一例である。

最終検出器へ紛れ込む核種としては、分子イオンのフラグメントが考えられる。いま、質量数  $M$  の目的核種イオンが、加速器入射から検出器へ向かい、 $M^- \rightarrow M^{Q+}$  となる場合を考える。一方で、ターミナルの荷電変換により、質量数  $M$  の分子イオン ( $M_1X$ ) が、質量数  $M_1$  に変化し、 $M_1X^- \rightarrow M_1^{Q_1+}$  となったとする。ここでもし  $M_1/Q_1$  が  $M/Q$  に近い値をとれば、分子イオンフラグメント  $M_1^{Q_1+}$  は加速後の質量分析系を通り抜けて最終検出器に至ることになる。このような可能性を検討するために、MALT にて実際の定量に用いられている  $^{26}\text{Al}^{3+}$  を中心に、 $M/Q$ - $E/Q$  平面上に分子イオンフラグメント候補を図示したものが、Fig. 7 である。

中心にプロットされている  $^{26}\text{Al}^{3+}$  の ( $M/Q = 8.7$ ) 直近に、酸化ベリリウム ( $\text{BeO}$ ) 分子を構成する  $^{17}\text{O}^{2+}$  ( $M/Q = 8.5$ ) と  $^9\text{Be}^{1+}$  ( $M/Q = 9.0$ ) が存在することが分かる。また、この場合の酸化ベリリウム分子 ( $^9\text{Be}^{17}\text{O}$ ) の質量数は  $^{26}\text{Al}$  と等しい 26 になることから、加速器前後の両質量分析系を潜り抜ける可能性を持つことが示唆される。すなわち、Fig. 6 の①と②は、それぞれ、 $^9\text{Be}^{1+}$  および  $^{17}\text{O}^{2+}$  である可能性が高い。なお、 $^{26}\text{Al}$  の分析では、同一の試料にて  $^{10}\text{Be}$  も同時に分析されることが多く、精製前のもとの試料には Be のキャリアが加えられている。よって、 $^{26}\text{Al}$  分析用のターゲット中にも、ごく微量の  $\text{BeO}$  が混入することは、十分予想され得る。また、 $^{17}\text{O}^{2+}$  については、仮にエネルギーの分散により分析電磁石を通り抜けたとすると、 $^{26}\text{Al}^{3+}$  に比して 2% ほど高い  $E/Q$  を持つことになる (Fig. 7)。これは、最終検出器の直前に設置されている静電ディフレクターの値を変化させた際に得られる観測結果と整合する (Matsuzaki et al., 2000)。こうした分子イオンのフ

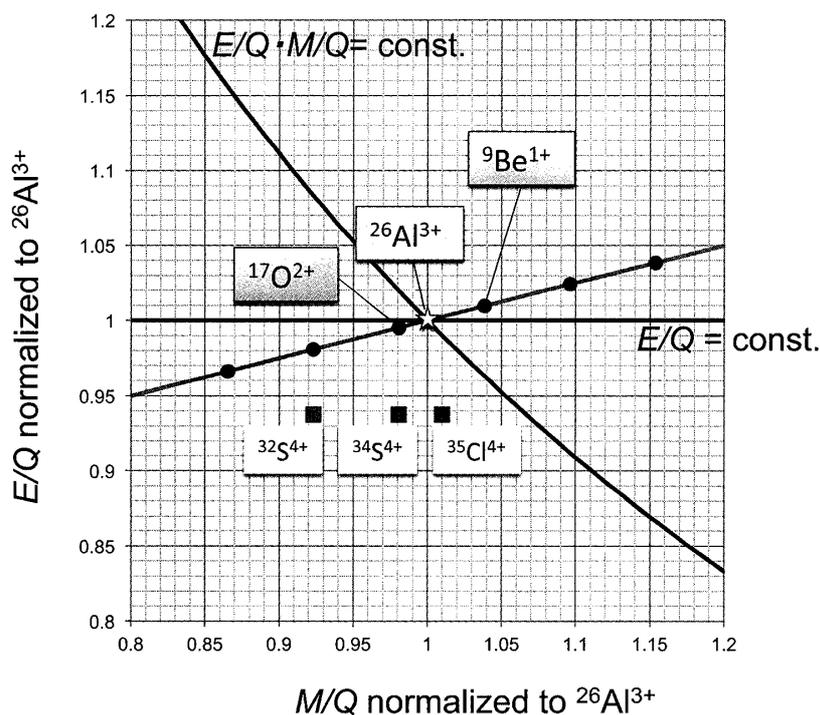


**Fig. 6.** An example of 2-dimensional spectrum obtained by the gas ionization detector for a long term  $^{26}\text{Al}$ -AMS measurement. Several peaks other than  $^{26}\text{Al}$  are observed.

ラグメントは、目的核種の質量数が大きくなるとよく見られるようになる (Matsuzaki et al., 2007b). 分子イオンのフラグメントは、荷電変換での分解により、エネルギーは小さくなっている。したがって、Fig.6のような二次元スペクトルでは、トータルエネルギーの小さい方 (図中にて相対的に左下の方向) に現れる。しかし、Fig. 6では、エネルギーの高い部分にも、何らかのシグナル (③) が認められる。例えば加速器にて3+より高いエネルギーを得られる4+の電荷を持つ核種のうち、 $^{26}\text{Al}^{3+}$ と  $M/Q$  が近いものには、質量数が34の  $^{34}\text{S}^{4+}$  や質量数35の  $^{35}\text{Cl}^{4+}$  が挙げられる (Fig. 7)。すなわち、③は、これらどちらか (もしくは両方) のシグナルである可能性が考えられる。ただし、このような重い核種が入射電磁石を通り抜けるメカニズムについては、不明である。

#### 4.4. $^{26}\text{Al}$ 標準試料

$^{26}\text{Al}$ -AMSの標準試料は、やはり、K. Nishiizumiにより NIST-SRM4229 (比放射能 38.79 Bq/g ( $\pm 1.1\%$ )) を出発物質として、安定同位体  $^{27}\text{Al}$  を加えて希釈されたものが、配布されており、これを用いる研究施設が多い。同位体比を算出する際に用いた半減期は、 $7.05 \times 10^5 \text{ yr}$  である (Nishiizumi, 2004)。

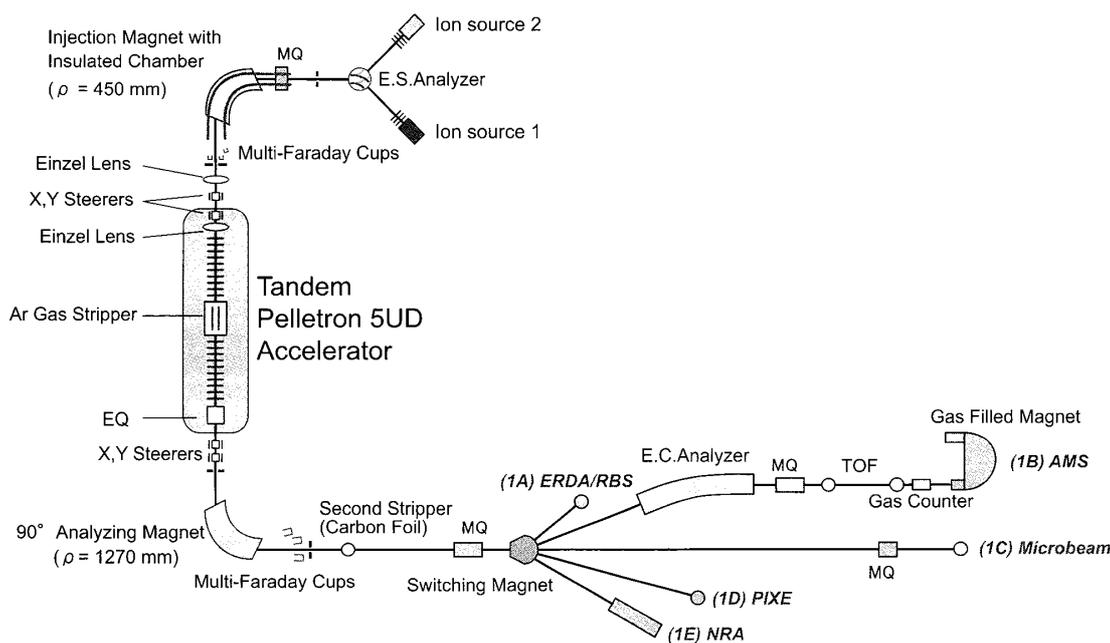


**Fig. 7.** Molecular fragments positioned near  $^{26}\text{Al}^{3+}$  in  $E/Q$ - $M/Q$  space.  $^{17}\text{O}^{2+}$  and  $^9\text{Be}^{1+}$  are possible candidates. In the figure, positions of stable isotopes  $^{32}\text{S}^{4+}$ ,  $^{34}\text{S}^{4+}$  and  $^{35}\text{Cl}^{4+}$  are also plotted, though how these ions could pass through the injection magnet is not known.

### 5. おわりに—東大 MALT-AMS と in situ CRNs の利用—

MALTでは、1980年代より、 $^{10}\text{Be}$ -AMS および  $^{26}\text{Al}$ -AMS の開発に取り組んできた。1993年に新たに米国 NEC 社製のペレットロン 5UD タンデム加速器が導入され、1998年に現在のガスカウンターが設置されて以来、高い性能で  $^{10}\text{Be}$ -AMS と  $^{26}\text{Al}$ -AMS のルーチン測定を行ってきた。両核種を測定できる AMS 施設は、日本では長らく東京大学 MALT のみであった。また、我が国で in situ CRNs を利用した応用研究を開始し、育んできたのも MALT 施設である。Fig. 8 は、東京大学 MALT のビームラインである (Matsuzaki et al., 2007a)。AMS ラインである 1B コースを見ると、タンデム加速器をはさんで、低エネルギー側（上流側）と高エネルギー側（下流側）それぞれに、静電分析器（図中の E.S.Analyzer および E.C.Analyzer）と分析電磁石（図中の Injection Magnet および Analyzing Magnet）が設置されていることが分かる。MALT では、AMS 以外にも、NRA, PIXE, ERDA などのビーム分析技術が開発・運用されている (Fig. 8)。

最後に、東京大学 MALT-AMS の性能 (Table 1) を参考までに紹介する。 $^{10}\text{Be}$ -AMS の場合は、イオン源でのイオン化効率がおおよそ 1%、加速器ターミナルでの電荷 3+ の荷電分率がおおよそ 10% であり、これらを総合した  $^{10}\text{Be}$  の検出効率は、おおよそ  $10^{-3}$  ということになる。第 1 節で述べたように、 $^{10}\text{Be}$  の生成率は、3-30 atoms/g-quartz/yr であるから、



**Fig. 8.** Beam lines of MALT (Micro Analysis Laboratory, Tandem accelerator), The University of Tokyo (Matsuzaki et al, 2007a).

**Table 1.** Summary of AMS performances at MALT (Micro Analysis Laboratory, Tandem accelerator), The University of Tokyo.

	$^{14}\text{C}$ -AMS	$^{10}\text{Be}$ -AMS	$^{26}\text{Al}$ -AMS	$^{36}\text{Cl}$ -AMS	$^{129}\text{I}$ -AMS
Target	Graphite	BeO	$\text{Al}_2\text{O}_3$	AgCl	AgI
Typical Current	20 $\mu\text{A}$ (MFC02-1, $^{12}\text{C}^-$ )	5 $\mu\text{A}$ (MFC02-2, $^9\text{Be}^{16}\text{O}^-$ )	500 nA (MFC02-3, $^{27}\text{Al}^-$ )	20 $\mu\text{A}$ (MFC02-2, $^{35}\text{Cl}^-$ )	5 $\mu\text{A}$ (MFC02-2, $^{127}\text{I}^-$ )
Injection cycle sequence	Sequential Injection 0.4 ms for $^{13}\text{C}^-$ 100 ms for $^{14}\text{C}^-$	Static	Sequential Injection 1 ms for $^{27}\text{Al}^-$ 100 ms for $^{26}\text{Al}^-$	Sequential Injection 100 ms for $^{36}\text{Cl}^-$ 0.8 ms for $^{37}\text{Cl}^-$	Sequential Injection 0.8 ms for $^{127}\text{I}^-$ 100 ms for $^{129}\text{I}^-$
Terminal Voltage	4.8 MV	4.8 MV	4.3 MV	4.7-5.0 MV	3.48 MV
Charge fraction	~60% (4+)	~10% (3+)	~30% (3+)	~1% (7+)	~3.5% (5+)
Stable Isotope Measurements	$^{12}\text{C}^+$ from $^{12}\text{CH}^-$ (MFC04-1) * $^{13}\text{C}^+$ (MFC04-2) $^{13}\text{C}^+$ from $^{13}\text{CH}^-$ (MFC04-3) *	$^{17}\text{O}^{5+}$ (MFC04-3) **	$^{27}\text{Al}^{3+}$ (MFC04-3)	$^{35}\text{Cl}^{7+}$ (MFC04-2) $^{37}\text{Cl}^{7+}$ (MFC04-3)	$^{127}\text{I}^{5+}$ (MFC04-2)
Rare Isotope Detection	$^{14}\text{C}^+$ (Havar + SSD)	$^{10}\text{Be}^{3+}$ (Gas Counter)	$^{26}\text{Al}^{3+}$ (Gas Counter)	$^{36}\text{Cl}^{7+}$ (Gas filled Magnet + Gas Counter)	$^{129}\text{I}^{5+}$ (Gas Counter)
count rate	100 cps (Modern carbon)	200 cps ( $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ ~ $3 \times 10^{-11}$ )	25 cps ( $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ ~ $3 \times 10^{-11}$ )	1 cps ( $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ ~ $1 \times 10^{-11}$ )	10 cps ( $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ~ $1 \times 10^{-11}$ )
Background	$^{14}\text{C}/^{12}\text{C} < 3 \times 10^{-16}$	$^{10}\text{Be}/^9\text{Be} < 1 \times 10^{-14}$	$^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al} < 1 \times 10^{-16}$	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl} < 1 \times 10^{-14}$	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I} < 2 \times 10^{-14}$
Typical Precision	0.5%	0.5~3% (due to statistics)	1~3% (due to counting statistics)	3%	1%
Unknown samples measured in 2012	700 /yr	1,000 /yr	250 /yr	-/yr	1,700 /yr

\*  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  is estimated from molecular ion origin of species  
( $^{13}\text{CH}^- \rightarrow ^{13}\text{C}$ ,  
 $^{12}\text{CH}^- \rightarrow ^{12}\text{C}$ )

\*\* Amount of  $^9\text{Be}$  is counted out by the current of accompanied  $^{17}\text{O}^{5+}$

1000 年の照射年代で、 $10^4$  atoms/g 程度の濃度となる。化学処理の収率も考えれば、数%の誤差で測定するためには、100 g 程度の石英が必要となってくる。同様にして  $^{26}\text{Al}$ -AMS の場合は、イオン化効率が 0.1%, 3+ の荷電分率が約 30% であるから、 $^{26}\text{Al}$  の検出効率は  $10^{-4}$  台となる。 $^{26}\text{Al}$  の生成率は、 $^{10}\text{Be}$  よりも高く、20-200 atoms/g-quartz/yr であり、1000 年の照射年代で、 $10^5$  atoms/g 程度の濃度となる。したがって、100 g 程度の石英を精製すれば、 $^{26}\text{Al}$  原子検出数 1000 カウント以上の測定が可能である。

### 引用文献

- Bierman, P. R. (1994) Using in situ produced cosmogenic isotopes to estimate rates of landscape evolution: A review from the geomorphic perspective: *Journal of Geophysical Research*, **99** (B7), 13, 885-13, 896.
- Cockburn, H. A. P. and Summerfield, M. A. (2004) Geomorphological applications of cosmogenic isotope analysis: *Progress in Physical Geography*, **28**, 1, 1-42.
- Horiuchi, K., Matsuzaki, H., Osipov, E., Khlystov, O. and Fujii S. (2004) Cosmogenic  $^{10}\text{Be}$  and  $^{26}\text{Al}$  dating of erratic boulders in the southern coastal area of Lake Baikal, Siberia: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **223-224**, 633-638.
- Horiuchi, K., Matsuzaki, H., Ohta, A., Shibata, Y. and Motoyama H. (2007) Measurement of  $^{26}\text{Al}$  in Antarctic ice with the MALT-AMS system at the University of Tokyo: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **259**, 625-628.
- 今村峯雄 (2003) 東大 AMS 用標準に関するメモ: “加速器 C-14 年代測定の実験室間の比較検定” 平成 14 年度科学研究費補助金 (基盤研究; 研究代表者: 中村俊夫) 研究成果報告書, 58-61.
- Kobayashi, K., Matsuzaki, H., Hatori, S., Nakano, C., Yamashita, H., Makita, H. and Sunohara, Y. (2000) Multi-nuclide AMS with a middle-sized tandem accelerator of MALT: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **172**, 75-81.
- Matsushi, Y., Wakasa, S., Matsuzaki, H., and Matsukura, Y. (2006) Long-term denudation rates of actively uplifting hillcrests in the Boso Peninsula, Japan, estimated from depth profiling of in situ-produced cosmogenic  $^{10}\text{Be}$  and  $^{27}\text{Al}$ : *Geomorphology*, **82**, p. 283-294.
- 松四雄騎・若狭 幸・松崎浩之・松倉公憲 (2007) 宇宙線生成核種  $^{10}\text{Be}$  および  $^{26}\text{Al}$  のプロセス地形学的应用: *地形*, **28**, 87-107.
- Matsushi, Y. and Matsuzaki, H. (2010) Denudation rates and threshold slope in a granitic watershed, central Japan: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **268**, 1201-1204.
- Matsuzaki, H., Tanikawa, M., Kobayashi, K. and Hatori, S. (2000) Development of a gas counter for AMS measurement of  $^{10}\text{Be}$  and  $^{26}\text{Al}$  of cosmic spherules: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **172**, 92-99.
- Matsuzaki, H., Nakano, C., Yamashita, H., Maejima, Y., Miyairi, Y., Wakasa, S. and Horiuchi, K. (2004) Current status and future direction of MALT, The University of Tokyo: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **223-224**, 218-223.
- Matsuzaki, H., Nakano, C., Tsuchiya, S.Y., Kato, K., Maejima, Y., Miyairi, Y., Wakasa, S., and Aze, T. (2007a) Multi-nuclide AMS performances at MALT: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **259**, 36-40.
- Matsuzaki, H., Muramatsu, Y., Kato, K., Yasumoto, M. and Nakano, C. (2007b) Development of  $^{129}\text{I}$ -AMS system at MALT and measurements of  $^{129}\text{I}$  concentrations in several Japanese soils: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **259**, 721-726.
- Middleton, R. (1990) “A Negative Ion Cookbook”, Dept. of Physics, University of Pennsylvania, unpublished.
- Nishiizumi, K. (2003)  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ , and  $^{41}\text{Ca}$  AMS Standards: “加速器 C-14 年代測定の実験室間の比較検定” 平成 14 年度科学研究費補助金 (基盤研究; 研究代表者: 中村俊夫) 研究成果報告書, 46-57.

- Nishiizumi, K. (2004) Preparation of  $^{26}\text{Al}$  AMS standards: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, **223-224**, 388-392.
- Nishiizumi, K., Imamura, M., Caffee, M. W., Southon J. R., Finkel, R. C. and McAninch, J. (2007) Absolute calibration of  $^{10}\text{Be}$  AMS standards: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, **258**, 403-413.
- 産業技術総合研究所深部地質環境研究コア編 (2012) 概要調査の調査・評価項目に関する技術資料 - 立地要件への適合性とその根拠となる調査結果の妥当性 - : 地質調査総合センター研究資料集, **560**.
- 若狭 幸・森口有里・松崎浩之・松倉公憲 (2004) 原位置宇宙線生成核種年代測定法: 侵食地形変化速度の解明への適用: 地形, **25**, 247-265.
- 若狭 幸・松崎浩之・松倉公憲 (2008) 宇宙線生成核種濃度から推定される木曾川上流寢覚ノ床における下刻速度: 季刊地理学, **60**, 69-76.