

連載講座

超低レベル放射能測定の現状と展望（第5回）

極低レベル ^{14}C , ^7Be 放射能測定による 過去の宇宙線強度変動の検出

櫻井敬久

Reprinted from
RADIOISOTOPES, Vol.55, No.8
August 2006



Japan Radioisotope Association

<http://www.jrias.or.jp/>

連載講座



超低レベル放射能測定の実況と展望 (第5回)

極低レベル¹⁴C, ⁷Be 放射能測定による 過去の宇宙線強度変動の検出[†]

櫻井敬久

山形大学理学部

990-8560 山形県山形市小白川町 1-4-12

Key Words : cosmic ray, cosmogenic nuclide, beryllium-7, carbon-14, aerosol, tree ring, solar activity, low level gamma ray measurement, ultralow level liquid scintillation measuring system

1. はじめに

宇宙線は19世紀末の放射線の発見から時を経ずして観測された。1912年頃、オーストリアのHessは、気球実験により地上からの高度が1 kmを越えると放射線が増加する現象を見出し、宇宙から放射線が来ていると考えた。宇宙線の発見からほぼ100年を経た現在、宇宙線の最高エネルギーはどこまでか¹⁾、宇宙線の起源と加速の現場はどこか²⁾、宇宙線は太陽圏・銀河内をどのように伝播してくるのか³⁾といった宇宙線研究の初期からの問題を解明していく研究が、日本のみならず世界において、宇宙物理学や高エネルギー物理学の分野と連携して精力的に進められている。

一方、宇宙線強度の時間変化の目安となる銀河系内での宇宙線の平均的滞在時間は、宇宙線

の化学組成の測定結果から、 $\sim 10^6$ 年程度と考えられている。宇宙線強度の永年変化の問題も、宇宙線の起源・加速・伝播に密接にかかわる重要な研究課題である。宇宙線の連続観測は1950年頃から始められているが、現在まで高々60年程度⁴⁾であり、過去へ遡る直接的な測定には宇宙線生成核種の利用が不可欠である。

本稿では大気中の宇宙線生成核種である⁷Beの濃度とその変動の測定と、過去の宇宙線強度の変動を探索するための代表的な宇宙線生成核種である¹⁴Cの古木年輪中の濃度について極低レベル放射能測定の見点から述べるとともに、宇宙線強度と¹⁴C濃度の関係について概説する。

2. 宇宙線と宇宙線生成核種

地球に降り注ぐ銀河宇宙線はエネルギースペクトルが 10^8 eVから 10^{20} eVのエネルギー領域にわたり、また強度も約20桁にわたって変化する。ちなみに 10^{20} eVは約16 Jであり、1個の粒子で16 Jといったとてもないエネルギーを持っている。地球に降り注ぐ宇宙線の数はいくつあるか。地球に降り注ぐ宇宙線は 1 cm^2 あたり毎秒約0.1個である。宇宙線の約90%は陽子であり、残りは種々の原子核成分から成っている。このうちの軽元素の割合を使って宇宙線の銀河系での滞在時間を推定するこ

[†]Present Status and Prospects of Ultralow Level Radioactivity Measurements (5).

Measurement of Time Variations of Cosmic Rays in the Past by the Detection of Ultralow Level ¹⁴C and ⁷Be Radioactivity.

Hirohisa SAKURAI : Department of Physics, Yamagata University, 1-4-12, Kojirakawa-machi, Yamagata-shi, Yamagata Pref. 990-8560, Japan.

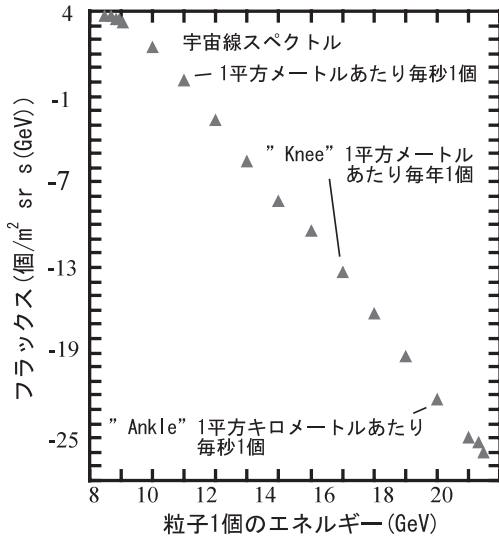


図1 宇宙線のエネルギースペクトルの全容
この図は高橋義幸, 超高エネルギーのフロンティアはいかに開拓されてきたか, 科学, 71, No. 2, pp. 129, 2001 (岩波書店) を参考にし
て作成した

とができる。

地球上の宇宙線生成核種は、宇宙線が地球大気と衝突してできるものがほとんどである。地球大気頂上に降り注ぐ1次宇宙線は高層大気と衝突して種々の2次宇宙線を生成する。これらの2次宇宙線のうち、主として陽子と中性子は、大気成分であるN, O, Ar, Xeなどと核破碎反応や中性子捕獲反応を起こして、 ^{14}C , ^7Be , ^{10}Be , ^{22}Na , ^{129}I などの放射性同位体を生成する。2次宇宙線によって生成するこれらの同位体は宇宙線生成核種と呼ばれ、 $^{14}\text{CO}_2$ のような気体として、あるいは ^7BeO のような固体としてエアロゾルに付着した状態で大気中に存在する。

大気中で生成された宇宙線生成核種が地表に降下して地表物質に固定された場合、その半減期を利用して、固定が起きた時を推定できる。これは、宇宙線生成核種の生成量が一定、すなわち宇宙線強度が一定であるという仮定が成立すれば原理的に正しい。

しかし、宇宙線強度が変動している場合、地

表に降下してくる宇宙線生成核種が年輪、極地域の氷床、湖底や海底の堆積層のように時間刻みがわかった状態の試料に固定されていれば、各時間刻みの放射能が変動するので、その変動から過去の宇宙線強度の変動が推定できる。

一方、大気中の宇宙線生成核種は大気や地球環境の状態変化の影響を受けて変動するので、地球環境や大気の動きを調べるためのトレーサとして重要な役割を担っている。最近では、気候変動や気象現象の解析に、宇宙線生成核種は必要なツールとなっている。宇宙線生成核種である ^{14}C や ^{10}Be ⁵⁾は、数万年から数十万年にわたる年代測定や過去の太陽・地球環境の解析に用いられている。更には大気中Xeと宇宙線の衝突によって生成する半減期1570万年の ^{129}I は、恐竜時代の宇宙線の変動といったロマンはもとより、数百万年と考えられている銀河系内の宇宙線の滞在時間の変動を探るプローブとして、宇宙線物理学においても重要な核種である。

宇宙線生成核種については、1960年代にLalとPeters⁶⁾による精力的な基礎研究がある。彼らは宇宙線によるスター発生率の実験データに基づいて、その発生率と陽子及び中性子数が平衡状態にあるとして高度や緯度分布を計算し、全体の描像としては良い結果を与えている。しかし、宇宙線生成核種の強度の時間変動、特に短時間変動などがある場合には平均値として扱えないので、大気中の粒子生成シミュレーションが必要となる。最近の宇宙線研究は、粒子生成シミュレーションの開発⁷⁾が進んでおり、これらの成果と資産を使うことによって、宇宙線生成核種生成量の時間変動をより精密に推定でき、観測データとの比較から、大気の運動などをより詳細に調べることが可能である。

3. 太陽活動と宇宙線強度変動

太陽は、太陽から吹きだすプラズマ風として知られる太陽風に伴う磁場が支配する勢力圏、すなわち太陽圏を形成している。磁場の存在により太陽圏に侵入してくる銀河宇宙線は散乱さ

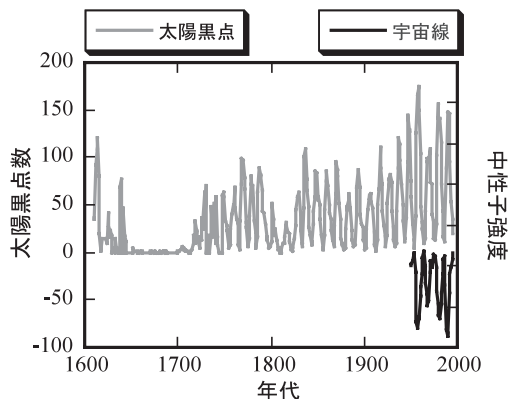


図2 1600年代からの太陽黒点数の観測データと1950年台以降の宇宙線強度変動

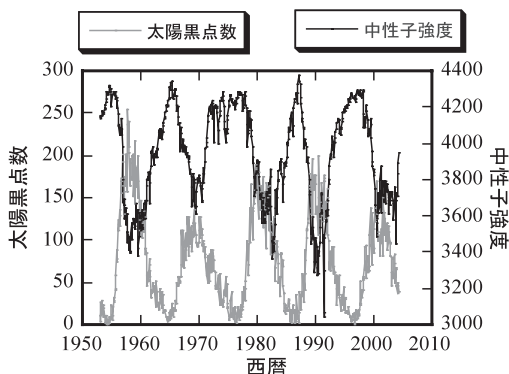


図3 太陽黒点数の変化と2次宇宙線である中性子強度変動の逆位相関係

れるので、太陽活動の変動によって地球に到達する宇宙線強度が変動する。太陽圏の範囲は100 AU程度と考えられている。惑星・深宇宙探査機ボイジャー1号は、2002年8月に約85 AUのところでは低エネルギーの粒子の急激な増加を観測しており、太陽圏の端を通過している可能性が示唆された⁸⁾。

太陽活動の指標は、1600年以降から観察されている太陽黒点数で表される。その観測データ^{9),10)}は、図2に示されるように強弱はあるがきれいな11年周期で変動している。しかし、1640年から1710年頃にかけてはほとんど黒点が無く太陽活動がかなり停滞していたと思われる。マウンダー極小期と呼ばれている。

宇宙線の観測データとして、コロラド州のClimax等で1952年から連続観測されている2次宇宙線の中性子強度変動⁴⁾がある。図3はClimaxの中性子データを太陽黒点数の変動と比較したものである。宇宙線強度も11年の周期で変動しており、太陽黒点数の変化とは逆位相であることがわかる。すなわち、太陽活動が活発な時期は宇宙線強度が弱く、太陽が静穏な時期は宇宙線強度が強いこと、宇宙線の荷電粒子成分は太陽風に伴う磁場の変化によって強度が変動することを示している。

超伝導スペクトロメータを用いて宇宙粒子線の運動量を精密に測定するBESS気球実験(宇

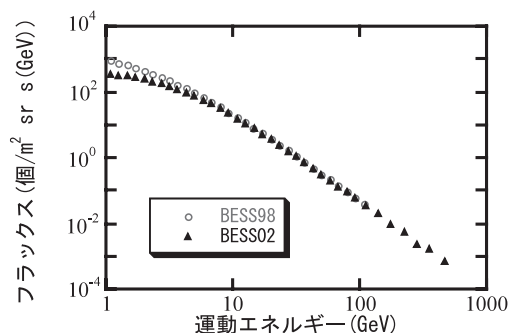


図4 BESS気球実験で観測された1 GeVから1 TeV程度までの宇宙線陽子のエネルギースペクトル¹¹⁾。太陽活動によって30 GeV以下のスペクトルが変化することがわかる。http://www.icepp.s.u-tokyo.ac.jp/~sanuki/research/bess/index.htmlに提供されているData Downloadに従ってデータを得て作成した

宙粒子線観測気球実験：Balloon-borne Experiment Superconducting Spectrometer)では、太陽活動のピーク時にあたる2002年と活動上昇期にあたる1998年に、1次宇宙線陽子の1 GeVから100 GeVまでのエネルギースペクトルを測定した。図4に示す結果が得られており、10 GeV以下のスペクトルに変化があることがわかる¹¹⁾。

図からわかるように、10 GeV以下の1次宇宙線は太陽活動により変調を受ける。その結果として2次宇宙線の中性子の強度も、太陽活動

により逆位相で変動を受ける。したがって、過去の宇宙線強度変動を1年程度の時間分解能で測定できれば、11年周期変動を指標として過去の太陽活動を調べることが可能である。

過去の宇宙線強度は、古木年輪のような時間刻みがわかり ^{14}C のような宇宙線生成核種を取り込んでいる試料を測定すれば調べることが可能である。しかし、このためには現在の試料を用いて宇宙線生成核種の強度変動が11年周期変動を示すことを確かめておく必要がある。

4. ^7Be の大気中濃度の連続測定

4.1 ^7Be について

半減期5730年の ^{14}C は、過去数万年程度まで遡って太陽活動と宇宙線強度変動の関連を調べるのに適した宇宙線生成核種である。したがって、現在の太陽活動と大気中の ^{14}C の濃度変動を比較することが最も望ましい。残念なことに、1960年代の大気圏核実験により大気中の ^{14}C 濃度は約2倍に上昇してしまい、0.2～0.5%程度と考えられている太陽活動による ^{14}C 濃度変化を捉える測定は極めて困難である。

筆者らは長期連続測定の目的に照らして、生成量が多く低バックグラウンドGe検出器で比較的容易に測定できる ^7Be をモニターしている。 ^7Be は、大気中のNやOの原子核と2次宇宙線粒子である陽子や中性子との破碎反応、例えば $^{14}\text{N}(n,X)^7\text{Be}$ により生成される。反応断面積¹²⁾は約10 mbで、閾エネルギーは10～50 MeVである。なお、 ^7Be は ^7BeO として大気中に浮遊しているエアロゾルに付着する。半減期が約53日と短いので、大気の運動のトレーサとしても利用できるほか、宇宙線による ^7Be 生成量の高度分布と大気運動の関係を調べるのにも適している。

4.2 連続測定

筆者らは、積算流量をデジタル記録するハイボリュームエアースンプラ HV-1000F (柴田科学製)を、山形大学(北緯38.25°, 東経140.35°,

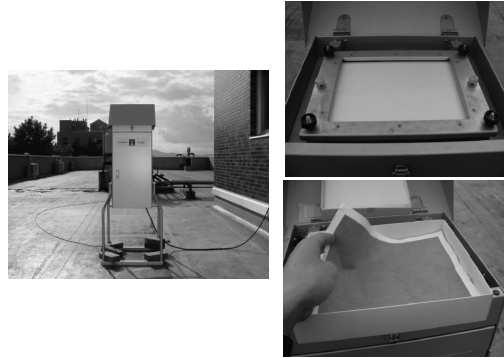


図5 山形大学屋上でハイボリュームエアースンプラを使った ^7Be のガラス濾紙への捕集風景

海拔152.2 m)の地上高約15 mに設置して、2000年1月より日変動の連続観測を行っている。1000 L/minの流量で大気を23時間吸引し、203 mm×254 mmのガラス繊維濾紙(ADVANTEC GB-100R)上に捕集する。浮遊塵の捕集効率は0.3 μm の粒子に対して99.99%である。

図5にハイボリュームエアースンプラ及びガラス繊維濾紙の写真を示す。濾紙を折りたたみプラスチック製の蓋付容器に入れて高純度Ge検出器(GEM-25185)を用い ^7Be から放出される478 keV γ 線を測定している。検出器は、鉛(120 mm)、鉄(30 mm)、銅(5 mm)、アクリル板(3 mm)から構成されたグレーデッドシールドにより遮蔽されている。478 keV付近のバックグラウンド計数は0.23 cpm程度であり、空気を収集していないガラス繊維濾紙単体を載せた場合と、なにも載せないときで計数はほとんど同じである。478 keVに対する検出効率は(宮城県原子力センターでの測定結果との比較から)2.68%である。

図6に2000年1月から約5年間の ^7Be の日変動と、太陽黒点数及びClimaxでの中性子数の日変化を比較して示した。 ^7Be 濃度は、春と秋に濃度が高く夏に低い季節変動を示している。また、2000年から2001年のデータをフーリエ解析した結果、太陽の自転周期に相当する約26日の周期成分が見られた¹³⁾。

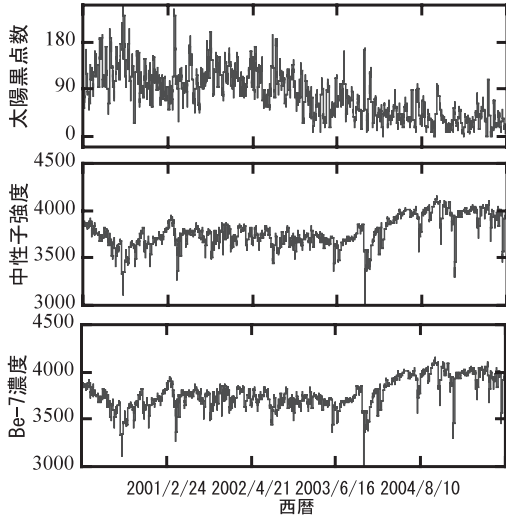


図6 2000年からの⁷Be濃度, 太陽黒点数, 中性子強度の日変動プロファイル

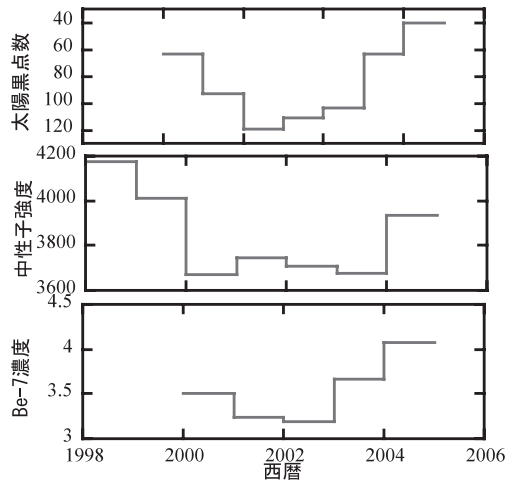


図7 2000年からの⁷Be濃度, 太陽黒点数, 中性子強度の年変動プロファイル。⁷Be濃度と太陽黒点数の変化が逆位相を示している

図7に年平均値の比較を示した。太陽黒点数は位相が逆になるため、⁷Be濃度と中性子数の縦軸を逆にとってある。太陽黒点数は2000年にピークがあり、その後減少している。⁷Be濃度も逆位相で同様な変化を示しているが、太陽黒点数のピークに対応する⁷Be濃度変動の底にあたるのは、約1年程度遅れているように見える。このことは、宇宙線の太陽圏での遅れ

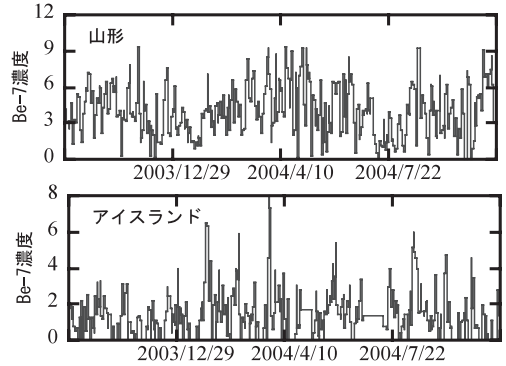


図8 山形とアイスランドでの⁷Be濃度日変動プロファイルの比較。山形のほうが濃度が高い

及び成層圏と対流圏の大気との交換などの効果を含めて考える必要があることを示唆している。ちなみに、⁷Beの濃度変化は3.2 mBq/m³から4.1 mBq/m³と28%程度であるが、太陽黒点数の変化は約38%であった。

4.3 アイスランドと山形の比較

宇宙線は地球全体に入射してくるので、地球全球の大気に宇宙線生成核種が生成する。しかし、地球は双極子磁場で近似できる磁場を持っているので、入射してくる荷電粒子はローレンツ力を受け、その運動量によっては跳ね返されて地球大気に入射できなくなる。高緯度の極地方は、その磁場構造から低エネルギーの宇宙線でも入射できる。山形の上空では、陽子で約5 GeV以上の宇宙線でないと入射できないが、北緯64度のアイスランドでは、数十 MeVの陽子でも入射できる。したがって宇宙線生成核種の強度も緯度効果を示すと考えられる。

緯度効果を調べることを目的として、2003年9月より、山形大学に設置してあるハイボリュームエアースンプラと同じものをアイスランドに設置し、高緯度地域での測定を開始した。定期的に山形大学に送られてくるガラス繊維濾紙を測定し、アイスランドにおける⁷Beの変動を解析している。

図8は、アイスランドと山形における⁷Beの大気中濃度の約1年間にわたる日変動を比較し

たものである。アイスランドと山形の ^7Be の平均濃度は、各々 1.5 mBq/m^3 、 3.9 mBq/m^3 である。Lal らが見積もった対流圏の生成率の緯度効果の値を使うと、アイスランドと山形の比は1:1.5程度⁶⁾と推定されるが、測定値は1:2.7程度であり見積もりよりも大きい。高緯度地域には低エネルギーの宇宙線が入るものの、対流圏では中性子のような2次宇宙線を生成するほどのエネルギーは無いと考えられるので、対流圏では高緯度地域での生成量は中緯度地域の生成量に比べてそれほど増加しない。更に高緯度地域では、対流圏の高度（対流圏と成層圏の境目にあたる圏界面の高度）が中緯度より低いため、高緯度地域の対流圏における生成率は中緯度地域に比べ小さくなる。しかし、実測値と生成率の見積もりの違いを説明するには、大気循環などの運動も考慮する必要がある。

4.4 宇宙線研究所柏微弱放射能測定設備

^7Be はエアロゾルに付着して降下するが、エアロゾルは、その化学形、形状、元素組成、水への可溶性の違いなどさまざまな様相があるので、降下のパターンは極めて複雑である。エアロゾルの濃度は地表で約 1 万個/cm^3 、高度5 kmで約 1 千個/cm^3 程度であり、サイズは $0.02 \mu\text{m}$ から $10 \mu\text{m}$ で直径の-3乗の中関数で分布している¹⁴⁾。しかし、高度ごとのサイズ分布はわかっておらず、その測定も難しい。筆者らは、地表で採取している ^7Be の濃度とエアロゾルのサイズとの関係を調べるために、アメリカ ユタ州にある最高エネルギー宇宙線観測用のTA望遠鏡ステーションの建屋屋上（13 m）にアンダーセン捕集器（柴田科学 AH-600F）を設置した。アンダーセン捕集器は、粒径 $1.1 \mu\text{m}$ 以下から $7 \mu\text{m}$ 以上までの5段階で浮遊塵を弁別して濾紙上に捕集する装置である。図9はアンダーセン捕集濾紙及びアンダーセン捕集器の設置風景である。

粒径別に捕集した ^7Be の放射能は微弱なため、千葉県柏市にある全国共同利用研究機関である



図9 米国ユタ州にある宇宙線望遠鏡施設の屋上(13 m)に設置したアンダーセンハイポリウムエアアースンプラと粒径弁別濾紙セット

東京大学宇宙線研究所の微弱放射能測定設備により測定している。この設備は地下23 m（土被り20 m:30 mew）の測定室に設置された3台の井戸型の高純度Ge検出器で構成されている。測定室のコンクリート壁は、ここから散逸してくるラドンのバックグラウンド計数への寄与を低減するため、特殊な塗料（マイナガード）によって塗装されている。ラドンモニターで測定したラドン濃度は平均約 5 Bq/m^3 程度であり、地下室としては十分低い値が維持されている。 ^7Be の測定には、キャンベラ社製の内径16 mmの井戸を持つ相対効率30%の井戸型Ge検出器（GCW3023）を用いた。検出器は、低炭素鋼（9.5 mm）、低バックグラウンド鉛（150 mm）、低レベル鉛（25 mm、 $^{210}\text{Pb} < 25 \text{ Bq/kg}$ ）、



図10 東京大学宇宙線研究所微弱放射能設備
千葉県柏市の研究所地下23mにある

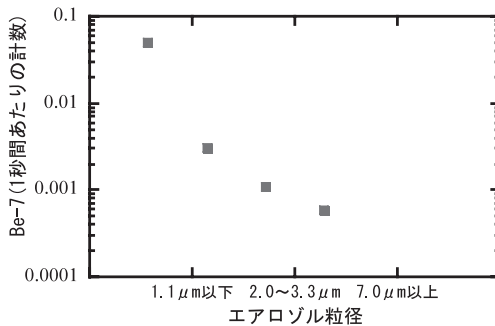


図11 ユタ州で採取したエアロゾル粒径 ^7Be 濃度との関係

低バックグラウンド錫 (1 mm)、高純度低バックグラウンド銅 (1.6 mm) からなる円筒型の (極低バックグラウンド) 遮蔽体 (キャンベラ社製 777B) で遮蔽されている。更に、金沢城の古い鉛で作った円筒型遮蔽体で Ge 検出器を囲んでいる。遮蔽体内部は液体窒素からの蒸発窒素を誘導してラドンのパージを行っている。 ^7Be のピーク領域付近のバックグラウンド計数率は 0.06 cpm 程度である。図 10 に微弱放射能測定設備による測定風景を示す。

図 11 は各 5 段階の濾紙中の ^7Be を柏地下微弱放射能測定設備で測定した結果である。 ^7Be は 1.1 μm 以下のフラクションに圧倒的に多いことがわかる。しかし、この結果から ^7Be はサイズの小さなエアロゾルに付着しているとは簡単にはいえない。 ^7Be のエアロゾルへの付着率を知るには、エアロゾルのサイズ分布が必要と

なるからである。

5. 古木年輪中と ^{14}C 濃度測定

5.1 年輪と ^{14}C 濃度の記録

半減期 5730 年の ^{14}C は、宇宙線によって大気中で作られる宇宙線生成核種で、主として 2 次宇宙線の熱中性子が大気中の N に捕獲され $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ により生成する。成層圏及び対流圏で生成した ^{14}C は、すぐに酸化されて二酸化炭素 ($^{14}\text{CO}_2$) となり、大気循環を経て光合成により地上の樹木に取り込まれ年輪に固定される。したがって、樹木年輪はその年々の大気中の炭素量に対する放射性炭素量の割合、すなわち ^{14}C 濃度を記録しているチャートであり、自然が我々に授けてくれたタイムマシンの一つである。年輪は春材と夏材として樹木の成長と共に 1 年の時を刻んでいるため、年輪を数えることにより、樹木が伐採や倒壊などで生育が停まった時を起点として、過去の時間を 1 年の時間分解能で計ることができる。

5.2 放射性炭素年代

樹木の年輪に取り込まれた ^{14}C の原子数は、取り込まれた時から現在までの経過時間 (年数) とともに指数関数的に減衰する。したがって、大気中の ^{14}C 濃度が常に一定であると仮定すれば、 ^{14}C 濃度の減少の度合いから樹木年輪の年代が求められる。これが放射性炭素年代である。放射性炭素年代は、化石燃料の燃焼による ^{14}C 濃度の低下 (Suess 効果) が起こる前の 1840 年から 1860 年の間に生育した樹木の ^{14}C 濃度を基準としており、1950 年を起点としている。 ^{14}C 濃度から放射性炭素年代を求める計算では、半減期の値として 5730 年ではなく 5568 年を使う約束になっている¹⁵⁾。

しかし、実際には大気中の ^{14}C 濃度は、太陽活動による太陽磁場の変動や地磁気の変化により地球に進入してくる宇宙線フラックスの変動や地球環境の変化により引き起こされる炭素循環系の変動の影響を受けており一定ではない。

したがって、放射性炭素年代は、そのまま実年代（暦年代）を表すものではない。それゆえ、測定試料の放射性炭素年代から高い精度で実年代を推定するためには、放射性炭素年代と実年代の関係を求めておくことが必要である。放射性炭素年代と暦年代の関係を示す新しい較正曲線 IntCal04¹⁶⁾が2004年に出版されている。

5.3 大気中の¹⁴C濃度変動

大気と海洋間の炭素の交換によって^{17), 18), 19)}, 海洋は炭素の最も大きな貯蔵庫となっている。ここで、¹⁴Cは宇宙線によってのみ大気中で生成し供給されると考えて、太陽活動が大気中の¹⁴Cの濃度の変動に与える影響を求めてみる。全地球の¹⁴Cの個数を N_t とし、その個数が（時間変動しないで）一定であるとする。宇宙線による1年あたりの¹⁴Cの生成量を P とし¹⁴Cの半減期を T とすれば

$$N_t = \frac{T}{\ln 2} P$$

となる。大気中の炭素量は地球上の全量の約1/57なので、大気中で生成した¹⁴Cが短時間で海洋にも拡散し一様になるとすれば、大気中に貯蔵されている¹⁴Cの量 N_a は

$$N_a = \frac{T}{\ln 2} P \left(\frac{1}{57} \right)$$

となる。したがって、ある時点の宇宙線による生成量が ΔP だけ変動したとすれば、大気中の¹⁴C量の変動の割合は

$$\frac{\Delta P}{N_a} = \frac{57 \times \ln 2}{T} \left(\frac{\Delta P}{P} \right)$$

で求められる。この計算式を使えば、太陽の11年周期活動に伴う宇宙線強度変動を28%⁴⁾とすると¹⁴C濃度の変動は0.2%程度と見積もられる。

5.4 ¹⁴C濃度測定

¹⁴C濃度の経年変動の測定や放射性炭素年代測定においては、¹⁴C濃度の標準値が必要である。筆者らは、日本アイソトープ協会を通じて、

国際標準試料として米国のNational Institute of Standards and Technology (NIST)が発行しているシュウ酸SRM4990Cを購入し、その¹⁴C濃度を標準値として使用している。このシュウ酸は1977年の春、夏、秋に収穫されたフレンチビートの糖液を、アスペルギルスニガーという菌で発酵させて製造したものであり、¹⁴C濃度の推奨値は18.32 dpm/g炭素である^{20), 21)}。

このように、現代の試料の¹⁴C濃度でさえかなり放射能レベルが低い上に、宇宙線強度の変動にもなまって起こると期待される0.2%程度の変動を、古木年輪の¹⁴C濃度の測定によって評価するには、極低レベル¹⁴C放射能測定が要求される。年輪試料の¹⁴C計数率を S 、バックグラウンド計数率を N 、 $\eta = S/N$ 、測定時間を T とすると、 S の統計的な相対測定精度(α)は

$$\alpha = \sqrt{\frac{1}{ST}} \sqrt{1 + \frac{2}{\eta}}$$

で表せる。この式は S/N を大きくすることは大事だが、同時に資料からの計数をできるだけ稼ぐことが重要なことを示している²²⁾。 α を0.2%以下にするには、 η が0.01の場合には総カウント数として 2.6×10^5 が必要になる。

これに加え、長時間測定及び各測定試料の放射能を精密に比較する必要性から、長期間にわたり安定した測定を維持することが重要である。

5.5 ¹⁴C濃度測定試料の作成

年輪試料の¹⁴C濃度の測定には、極低レベル液体シンチレーション計数システム (Quantulus, Wallac社製)を用いている。液体シンチレーション計測を採用したのは、¹⁴Cをコンバクトに含むベンゼンの形に代え、高い計数効率で安定な測定ができるからである。

宇宙線強度の変動を調べる目的で年輪中の¹⁴C濃度を精密に測定するには、年輪に固定されている¹⁴Cを測定する必要がある。そのため年輪間を移動しない成分として知られる α セルロースを抽出して測定する以下に示す方法を採用した。測定に必要な量の年輪試料を剥離し、

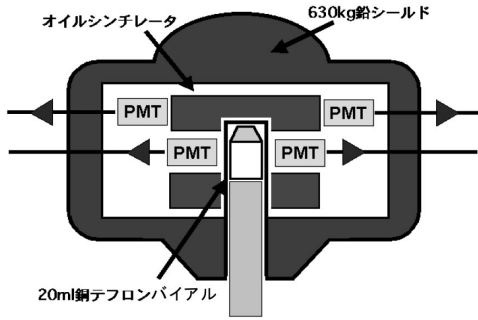


図12 極低レベル液体シンチレーションカウンティングシステム Quantulus の検出器構造
PMT は光電子増倍管を示す

有機溶媒（エタノールとヘキサン）による洗浄で油脂成分を除去した後、酸及びアルカリによる化学処理を行い、 α セルロースを抽出する。 α セルロースの燃焼により炭素を二酸化炭素として回収し、アセチレン合成を経て、最終的に最もコンパクトに炭素を含む化合物であるベンゼン(C₆H₆)を合成して、液体シンチレーション測定用の試料としている。高精度の測定を行うために、1年輪あたり約130gの試料を剥離すると、約30gの α セルロースが抽出でき、最終的には10.5gという大量のベンゼンが合成できる。作成したベンゼンは、銅キャップ付きの高純度テフロン製の20mLのバイアルに入れて0.1mgの精度で秤量し、シンチレータとしてbutyl-PBDを加えて β 線測定を行っている。

5・6 Quantulus の性能

Quantulusは、オイルシンチレータからなるガードカウンタとバイアルとの反同時計数方式によるアクティブな遮蔽と、総重量630kgの放射性不純物の少ない鉛によるパッシブな遮蔽によって低バックグラウンド化を図っている。図12にQuantulusの測定室内部の構造の概略を示した。

Quantulusのバックグラウンド特性を調べるために、市販のスペクトル用のベンゼンと、大理石から発生させた二酸化炭素から生成したベ

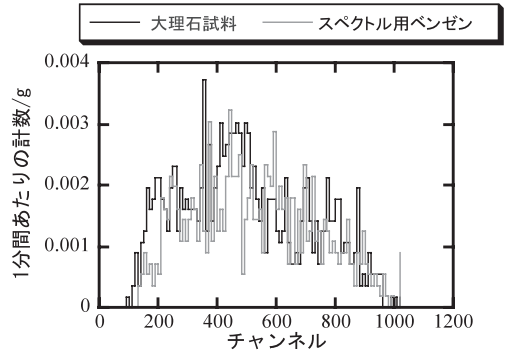


図13 大理石から作成したベンゼン及び市販のスペクトル用ベンゼンの液体シンチレーション測定スペクトル。Quantulusのバックグラウンドに対する性能を示している

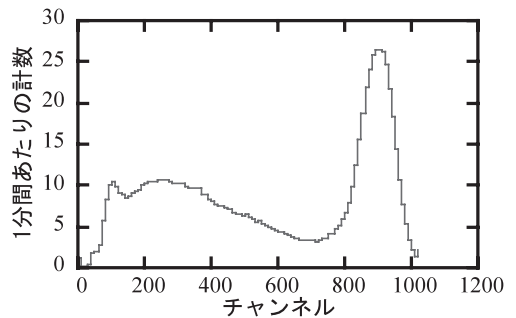


図14 Quantulusのガードカウンタの測定スペクトル。鉛遮蔽を通過して入射してくるバックグラウンドである

ンゼンの両方について測定を行った。図13にそれらの測定スペクトルを示した。

スペクトル用ベンゼン及び大理石からの¹⁴Cのバックグラウンド計数は、ベンゼン1gあたり各々0.080±0.004cpm及び0.087±0.004cpmであり良く一致していた。これによって、筆者らのベンゼン合成系は放射性不純物に対して極めてクリーンな状態にあることを実証できた。スペクトル用ベンゼンの原料である石油も、比較試料として用いた大理石も、¹⁴Cの半減期に比べ十分に古いと考えられる。これらの値をバックグラウンド計数として、この測定条件でのQuantulusによる¹⁴Cの測定限界を計算すると、放射性炭素年代で約41000年程度である。

図14にガードカウンタのエネルギースペク

トルを示す。高エネルギー部分に見られるピークは2次宇宙線のミュオンに由来するものであり、低エネルギー部分に見られるなだらかな山は中性子及び γ 線由来のバックグラウンドである。ガードカウンタの計数率865 cpmがバイアルを囲む 4π 方向からのバックグラウンド放射線の全てを計数していると考えれば、ブランク試料の約900倍ものバックグラウンド信号の環境中であって、それらを除去して ^{14}C を測定していることになる。なお、イタリアの地下1400 mのグランサッソーに置かれたQuantulusのガードカウンタの計数率は120 cpmで、ミュオンのピークはほとんど無いという報告がある²³⁾。測定環境によっては、 ^{14}C の測定限界を65000年程度までに伸ばすことが期待できると思われる。

年輪の ^{14}C 濃度は、標準試料(NIST シュウ酸)から合成したベンゼンの ^{14}C 濃度との比から算出する。図15は、NIST シュウ酸及び市販の薬品セルロースから合成した各々のベンゼンの β 線スペクトルである。両方とも、ほぼ同一のエネルギー分布をしている。また、年輪より分離したセルロースから合成したベンゼンと、NIST シュウ酸から合成したベンゼンの β 線スペクトルの形状が同一であることから、年輪中の ^{14}C 量を測定していることを確認できる^{24), 25)}。QuantulusによるNIST シュウ酸 ^{14}C 計数率は 15.07 ± 0.05 cpmであり、10.5 gベンゼンに対する ^{14}C の検出効率として89.1%が得られた。

他の低レベル仕様の液体シンチレーションカウンタとして、Packard社の2770TR/SL(現在はPerkinElmer社の3170TR/SL)と、ALOKA社のLSC-LB5をあげておく。2770TR/SLは、 β 線測定に対してはBGOシンチレータがバイアルを囲むアクティブ遮蔽として利用されており、信号パルスの形とタイミング解析により β 線の弁別を行って、低バックグラウンド化を図っている²⁶⁾。BGOを遮蔽体として

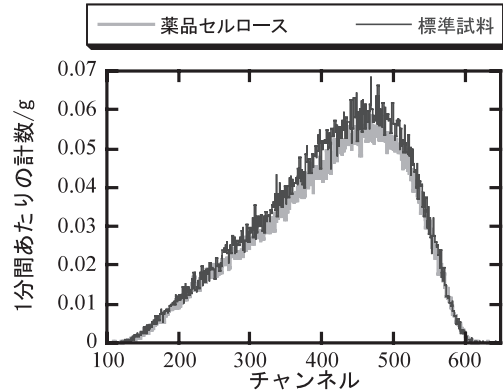


図15 ^{14}C 濃度測定のための標準試料NIST シュウ酸及び市販の薬品セルロースから合成したベンゼンの β 線スペクトル。両方ともきれいな ^{14}C からの β 線スペクトルを示している

いるので、カウンタ全体は比較的軽量(238 kg)である。LSC-LB5は100 mLのバイアルが使えるのが特徴であり、3本の光電子増倍管で3方向からシンチレーション光をとらえ、プラスチックシンチレータのガードカウンタと逆同時回路及び鉛による遮蔽により低バックグラウンド化を図っている。カウンタの重量は約750 kgである。装置性能の指標の一つとして

$$F = \frac{E^2 V^2}{B}$$

がある。ここで E 、 V 、 B はそれぞれ計数効率(%), 試料体積(mL), バックグラウンド(cpm)である。バイアル材質、試料の条件、装置設置環境により F 値は異なる。 ^{14}C に対してQuantulusと2770TR/SLの F 値は各々395000, 332000が報告されている²⁷⁾。また、LSC-LB5は正式データではないが40 mL試料に対して参考値として960000である²⁸⁾。

5・7 年輪の ^{14}C 濃度

年輪の中の1年ごとの ^{14}C 濃度変動が測定可能かどうかを検証するには、1960年代の大気圏核実験によって生成した ^{14}C 濃度を年輪ごとに測定すればよい。図16は、日本海側の秋田杉と太平洋側に近い室生杉の1950年から1994年までの年輪中 ^{14}C 濃度の測定結果である。大

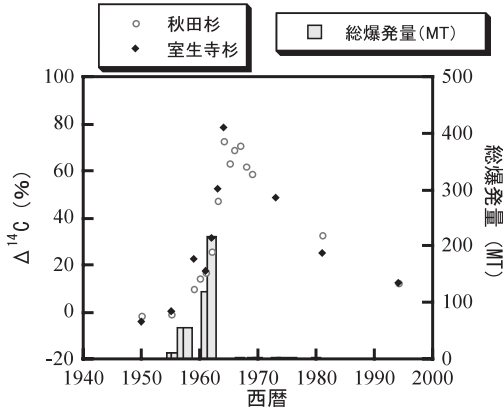


図 16 大気中核実験に対応した秋田杉及び室生杉年輪中の¹⁴C濃度の変動

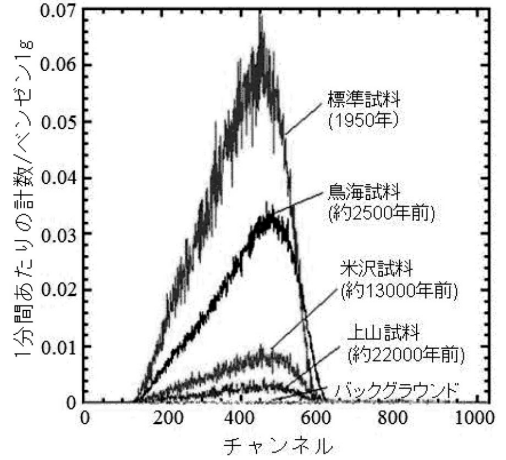


図 18 各年輪の¹⁴Cスペクトル。古い年輪ほど¹⁴C量が少ない



図 17 山形県内から採取した古木年輪

気圏核実験のほとんどは1962年までに行われており、その後の寄与は少ない²⁹⁾ので、¹⁴C濃度は1964年にピークを迎えた後減衰している。ピーク時の濃度は大気圏核実験前の約2倍に達したが、その後は海洋への溶け込みにより、見かけ上約7年の半減期で減衰している。この測定結果より、年輪は大気中の¹⁴C濃度を記録していることが確認できた。

年輪を利用した大気圏核実験による¹⁴C濃度変動の測定値として世界的に多くのデータが報告されている。参考までに最近のものを示しておく。国内の年輪試料として木曽のひのき(1984年伐採)³⁰⁾や上松の松を使った結果³¹⁾は、1964年にピークがあり、濃度変化はほぼ80%で筆者らの結果と同様であった。また、南イタリア(北緯40度)の松の結果も1964年のピークで

82.1%の濃度変化があり、1975年で約半分の濃度変化を示している³²⁾。その他¹⁴C濃度の変化の様子は緯度や北半球及び南半球によって異なるが、大気中及び年輪中¹⁴C濃度のデータをまとめ、地球を四つのゾーンに分けて変化の様子を示した報告が最近出ている³³⁾。

次に、古木年輪がその年代に対応した¹⁴C濃度を与えることを示す。図17は山形県内で入手した古木試料で、古い順から蔵王試料(約40000年)、上山試料(約22000年)、米沢試料(約13000年)、鳥海神代杉(2500年)、金峰杉(現代)である。これらの試料を測定して得たβ線スペクトルを図18に示した。スペクトル形は変わらないが年代が古いほど¹⁴C量が少ないことがわかる。

最後に、鳥海神代杉の33年輪に対しての1年輪ごとの¹⁴C濃度の予備的な測定結果を示す。図19中の点線は最小二乗法により正弦関数で解析適合を試みた結果であり、実線は3点移動平均である。最小二乗法によって得た振幅は0.28%で、周期は10.1年であった。この結果は、約2500年前の年輪中の¹⁴C濃度変動を1年ごとに測定することによって、当時の宇宙線強度の変動が測定できることを示唆している³⁴⁾。

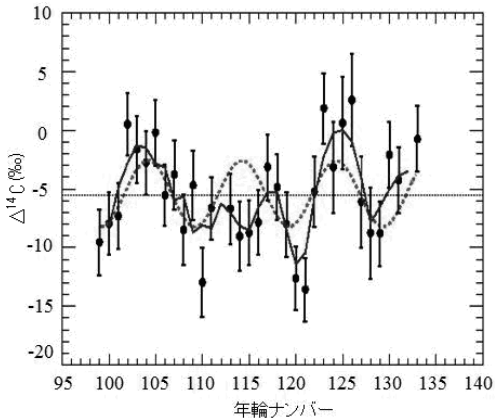


図 19 約 2500 年前の鳥海神代杉年輪 30 年輪の ^{14}C 濃度変動

6. まとめ

宇宙線生成核種は、天が我々に与えた地球を調べるトレーサであり、過去の太陽・地球環境を探索するトレーサでもある。本稿では、宇宙線のターゲットが地球大気の場合だけを述べたが、今後地質を標的にした宇宙線生成核種の研究を行うことによって銀河規模の過去を探索できる可能性がある。

宇宙線生成核種の測定試料は物質（放射性物質）であるため、極低レベル放射能測定技術により特定の核種の測定を追求するとき、試料の抽出調製が必要となるので、極めて感度の高い加速器質量分析法に進むのが必然であろう。しかし、放射線の本来の特性である透過性を生かした非破壊 γ 線測定は、多核種を同時に測定できるという大きな利点があり、 γ 線の超低レベル測定も極めて重要である。

また、極微弱な放射線測定の限界に挑むことは、魅力的である。

文 献

- 1) 福島正巳, 宇宙線エネルギーの限界を探る, 日本物理学会誌, **60**(1), 20-27(2005)
- 2) Koyama, K. et al. *Nature*, **378**, 255-258(1995)
- 3) 藤井善次郎, 宇宙線でさぐる太陽圏の端, *STEL*

Newsletter (名古屋大学 太陽地球環境研究所), No.38(2004)

- 4) 宇宙線強度についてのデータベース: <http://www.env.sci.ibaraki.ac.jp/database/>
- 5) Beer, J., Long-Term indirect indices of solar variability, *Space Sci. Rev.*, 1-14(2000)
- 6) Lal, D. and Peters, B., Cosmic Ray Produced Radioactivity on the Earth, *Handbuch der Physik*, pp.551-612, Springer-Verlag(1967)
- 7) CORSIKA: <http://www-ik.fzk.de/corsika/>
- 8) McDonald, F. B. et al., *28th Int. Cosmic Ray Conf.*, 3765-3768(2003)
- 9) Hoyt, D. V. and Schatten, K. H., Groupe sunspot numbers, *Solar Physics*, **179**, 189-219(1998)
- 10) <http://www.ngdc.noaa.gov/stp/SOLAR/ftpsunspotnumber.html>
- 11) Haino, S. et al., Measurements of primary and atmosphere cosmic-ray spectra with the BESS-TeV spectrometer, *Phys. Lett. B*, **594**, 35-46(2004)
- 12) Nagai, H. et al., Production rates of ^7Be and ^{10}Be in the atmosphere, *Nucl. Instr. Meth. B*, **172**, 796-801(2000)
- 13) Sakurai, H. et al., Relationship between daily variation of cosmogenic nuclide Be-7 concentration in atmosphere and solar activities, *Adv. Space Res.*, **36**, 2492-2496(2005)
- 14) Wallace, J. M. and Hobbs, P. V., *Atmospheric Science*, pp.143-149, Academic Press(1977)
- 15) 櫻井敬久, 年輪と炭素 14 年代, 弥生時代の実年代, pp.79-84, 学生社, 東京(2004)
- 16) Radiocarbon Calibration from 0-26 cal kyr BP, *Radiocarbon*, **46**(3)(2004)
- 17) 長谷川博一, 宇宙物質と宇宙線の歴史, 宇宙線物理学, pp.241-243, 朝倉書店, 東京(1983)
- 18) Oeschger, H. et al., A box diffusion model to study the carbon exchange in nature, *Tellus*, **27**, 168-192(1975)
- 19) *The Carbon Cycle*, edited by Wigley, T. M. L. and Schimel, D.S., CAMBRIDGE UNIVERSITY PRESS(2000)
- 20) National Bureau of Standards, Certificate, SRM 4990C
- 21) 放射性炭素分析法(放射能測定法シリーズ), p.75, 平成 5 年, 科学技術庁(1993)
- 22) 山越和雄, 低レベル計測における統計的諸問題,

- 低レベル放射線計測, pp.53-58, 共立出版, 東京 (1980)
- 23) Kaihola, L., Gamma Emission Monitoring Capabilities of Quantulus, LSC2005 at Katowice Poland, Oct. 2005
- 24) Suzuki, A., Sakurai, H. et al., Pulse height distribution of beta rays in ¹⁴C measurement with liquid scintillation counting system quantulus, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **46**, 302-305 (1999)
- 25) Endo, K., Sakurai, H. et al., ¹⁴C Measurement of synthesized benzene from old tree rings, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **47**, 1933-1937 (2000)
- 26) Noakes, J. E. and Valenta, R. J., The role of Bi₄Ge₃O₁₂ as an auxiliary scintillator for $\alpha/\beta/\gamma$ liquid scintillation counting and low-level counting, Liquid scintillation spectrometry 1994, International conference at Glasgow, Scotland, *Radiocarbon*, 43-58 (1996)
- 27) Cook, G. T. and Passo, C. J., Enhanced low-level environmental LSC performance using a BGO quasi-active guard, The 5th low level counting conference using liquid scintillation analysis at Yokohama., Proceedings 164-182 (1996)
- 28) ALOKA より参考値として提供された
- 29) 葛城幸雄, 放射能による環境汚染, 放射線科学, **29**, 2-10 (1986)
- 30) 中村俊夫, 他, 樹木年輪 (1945-1983) の¹⁴C 濃度変動, 地球化学, **21**, 7-12 (1987)
- 31) Muraki, Y. et al., The new Nagoya radiocarbon laboratory, *Radiocarbon*, **40**, 177-182 (1998)
- 32) Quarta, G. et al., New bomb pulse radiocarbon records from annual tree rings in the Northern Hemisphere temperate region, *Radiocarbon*, **47**, 27-30 (2005)
- 33) Hua, Q. and Barbetti, M., Review of troposphere bomb ¹⁴C data for carbon cycle modeling and age calibration purposes, *Radiocarbon*, **46**, 1273-1298 (2004)
- 34) Sakurai, H. et al., Measurements of C-14 concentration for 22 single-year tree rings of an old cedar ca. 2500 years ago, 28th *Int. Cosmic Ray Conf.*, 4135-4138 (2003)