

# 加速器質量分析計を用いたフェムトレベル超高感度環境分析

内田昌男<sup>1</sup>, 万徳佳菜子<sup>1</sup>, 小林利行<sup>1</sup> (<sup>1</sup> 国立環境研究所 地球システム領域)

## はじめに

加速器質量分析計(AMS: Accelerator Mass Spectrometer)は、極微量レベルの長寿命放射性同位体(<sup>14</sup>C, <sup>10</sup>Be, <sup>26</sup>Al, <sup>129</sup>Iなど)を、極めて高感度で分析できる最先端の装置である。従来の放射能測定法が放射線を検出するのに対し、AMSは同位体そのものを直接カウントすることで、検出限界を大幅に引き下げることができる。この技術により、フェムトグラムレベル( $10^{-12}$ ~ $10^{-15}$ )の同位体比計測が可能である。地球・環境科学分野において、AMSは、環境トレーサーのツールとして幅広く活用されている。例えば、<sup>14</sup>Cでは、年代測定のほか、海洋循環、大気CO<sub>2</sub>の炭素循環研究に用いられ、大気、海洋、陸域間における炭素動態の時空間変動を高精度で追跡できるようになった。また、宇宙線生成核種である<sup>10</sup>Beは地表侵食速度や氷河変動の解明に、<sup>129</sup>Iは核再処理施設由來のトレーサー研究などに用いられている。

さらにAMSの高感度・高精度化を図ることによって、環境研究の応用範囲を広げることが可能である。たとえば、大気中メタンの<sup>14</sup>Cが計測できれば、メタンの発生源解析において、極めて有用である。しかしながら、メタンの存在量は、大気CO<sub>2</sub>の200分の一と極めて微量であることから、計測が長く叶わなかった。

## NIES-TERRAにおける極微量<sup>14</sup>C分析に関する取り組み

### イオンソース、ビームラインの改造とグラファイト生成装置の開発

国環研AMS施設(NIES-TERRA)では、AMSを用いた様々な環境トレーサー研究の高度化を通じて、多様な地球環境課題の解明に関する研究を行っている。特に数十μgC以下の極微量<sup>14</sup>C計測(通常のAMSでは~1mgC)に対応する革新的な技術の開発を目的に、米国NEC製5MVタンデム型加速器質量分析計(図1)の大規模なアップグレードを行い、新型イオン源の導入、ビームラインの再構築、試料前処理の低バックグラウンド化を行った。とくに、極微量試料での安定したビーム生成の高精度・高感度化を目指し、試料グラファイトのCの負イオン生成を左右するカソードターゲットのセシウムパッタリング位置(深さ)の最適化(プラズマ空間の確保)を検討した(図2)。

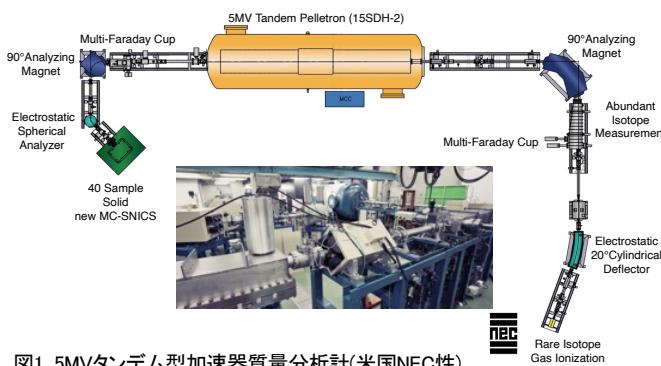


図1. 5MVタンデム型加速器質量分析計(米国NEC社)

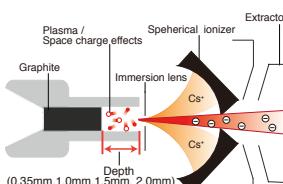


図2. イオン源の概念図



図3. 真空ライン

### 超微量炭素グラファイトのイオン電流の安定化とイオン化効率の向上

深さ2.0mmの位置条件において、10μgCの炭素量で10μA以上のビームカレントを30分以上にわたって安定化させることに成功した(図4)。これは、セシウムイオンにより生成されるプラズマが、より安定したCマイナスイオンの生成を促していることによる。また、イオン化効率(IE)については、0.35mmでの5.5%から最大で20.5%(2.0mm)へと約4倍に向上し、カソードターゲット位置の最適化がビーム生成の鍵であることが示された。さらに、IAEAの標準物質を用いたpMC値(<sup>14</sup>C計測値-パーセントモダンカーボン)の精度検証では、IAEA-C6の標準物質10 μgCで、保証値と約1-3%以内の良好な一致が得られた(表1)。以上から、超微量炭素試料においても、信頼性の高い<sup>14</sup>C計測が可能であることが実証された。

表1 IAEA標準物質3種(C1, C6, C8)のpMCの計測結果

IAEA標準物質	保証値	1 μgC	10 μgC	100 μgC
C6	150.61±0.11	149.8±3.8	151.0±1.0	150.5±0.4
C8	15.03±0.17	14.9±1.7	15.9±0.4	15.1±0.1
C1	0.00±0.02	3.9±1.3	0.6±0.4	0.4±0.0

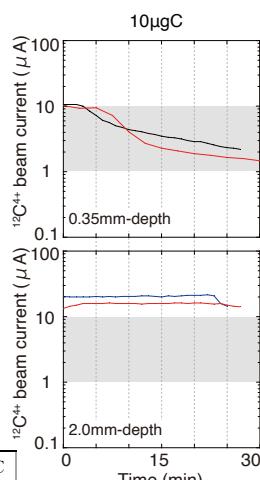


図4. 極微量グラファイトのビームカレントの時間変化

## 環境研究への応用

### 1. 大気エアロゾル 富士山頂PM<sub>2.5</sub>に運ばれるブラックカーボンの起源解析



図5. 富士山頂(標高3,765m)のエアロゾルサンプラー

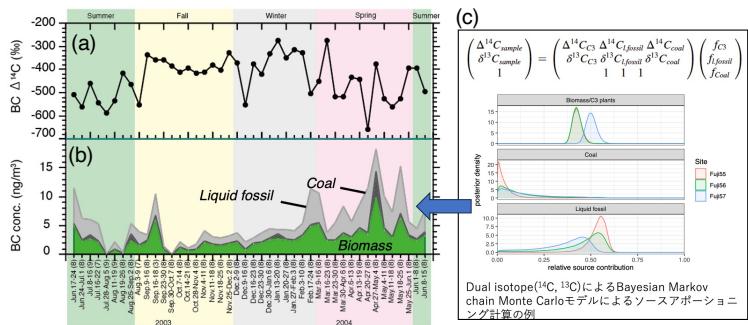


図6. (a)BC -  $\Delta^{14}\text{C}$ の季節変動、(b)MCMCモデルに基づくBC濃度とその発生源寄与結果、(c)同位体モデルシミュレーションの例

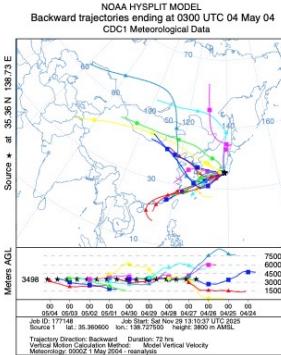


図7. 2004年4月27日～5月4日のHYSPLITの後方流跡線解析

### 2. 皇居桜田堀(1050-1990年代)のPAHs(大気由来)の分子レベル<sup>14</sup>Cによる起源解析

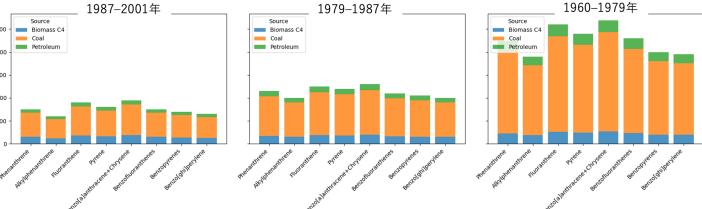


図8. 分子レベル<sup>14</sup>Cによるモデルシミュレーションにより計算された個別のPAH毎の発生源解析の結果

本研究は、桜田濠および大阪湾の堆積物を用いて、多環芳香族炭化水素(PAHs)の濃度・起源・歴史的変遷を詳細に解析しました。化合物特異的放射性炭素分析(CSRA)を活用することで、化石燃料とバイオマス燃焼の寄与を定量的に評価し、都市大気中の長期的汚染履歴を明らかにしました。これにより、過去の人間活動が都市環境に与えた影響を精密に再現することが可能となり、持続可能な都市環境管理に向けた指針を提供しました。本手法は、他の地域や地球規模の環境汚染解析にも応用可能であり、環境保護や政策立案において重要な基盤を提供します。

本成果により、今後、大気メタン、PM<sub>2.5</sub>、ブラックカーボン・ブラウンカーボン、有機汚染物質(PAHs等)など、試料量制約により計測が難しかった対象物質への<sup>14</sup>Cトレーサー研究の応用が可能となりました。これらの技術から得られる知見は、今後、メタン、大気微小粒子、GHGインベントリ、大気化学輸送モデルの検証・高度化に大きく貢献することが期待され、科学的に根拠ある環境政策設計(EBPM: evidence-based policy making)\*\*に直接結びつく強力な手法となります。

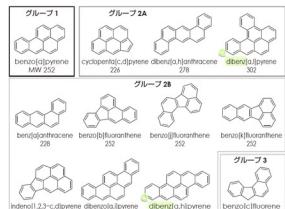


図9. 大気質レベルで発がんリスクが懸念されるPAHs