

加速器質量分析とその放射性炭素年代測定への応用

中村 俊夫*

Accelerator Mass Spectrometry and Its Application to High-Precision Radiocarbon Dating

Toshio NAKAMURA*

Abstract

Accelerator mass spectrometry (AMS) has developed wide application of radiocarbon (^{14}C) dating. The AMS system requires only 1 mg of carbon in precise determination of $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ and $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ isotope ratios, and this advantage has broadened the applicability of ^{14}C measurements. Nowadays, AMS contributes to the researches that utilize ^{14}C dating in archeology, cultural property science, geology, and those that employ ^{14}C tracer in environmental sciences, medical sciences and even forensic studies.

A Tandem AMS system dedicated to ^{14}C measurement was installed at Nagoya University, and its routine operation for ^{14}C measurement was started in 1983 for the first time in Japan. In 1996, another AMS system (HVE-Model-4130-AMS) was purchased and has been used for high precision ^{14}C measurements. By repeating a 30 minutes measurement of carbon isotopes for consecutive three days for a sample, one-sigma uncertainty of ± 17 to ± 30 years has been achieved. A reproducibility test for 2000-year-old archeological samples yielded a fluctuation error as small as ± 11 years. We also have evaluated accuracy in our ^{14}C measurements by participating in international ^{14}C inter-comparison tests, and confirmed that our ^{14}C results were quite consistent with those evaluated by the majority of participants. After the critical tests, we are sure that our AMS system is applicable to historical samples that require high precision as well as high accuracy ^{14}C measurements.

1. はじめに

加速器質量分析 (Accelerator Mass Spectrometry; AMS) は、粒子イオンを静電的に加速する加速器、その質量を識別する質量分析装置、さらに入射粒子のエネルギーやエネルギー損失率から入射粒子の原子番号 (原子核の電荷) を決定する重イオン検出器を組み合わせて、天然に存在するごく微量の放射性同位体とその安定同位体を高感度かつ高精度に定量する測定法である¹⁾。1980年代に AMS により天然レベルのごく微量放射性同位体のごく微量の試料を用いて高感度で測定できるようになって、放射性同位体を用いる年代測定への応用の範囲が著しく拡大された。AMS を用いると、 ^{10}Be (half life: 1.5×10^6 yr), ^{14}C (5730 yr), ^{26}Al (7.1×10^5 yr), ^{36}Cl (3.0×10^5 yr), ^{41}Ca (1.0×10^5 yr), ^{129}I (1.57×10^7 yr) などさまざまな宇宙線生成放射性同位体が、対象とする元素の量で数ミリグラムを用いて測定できる。利用される加速器は、AMS 専用機と

しては加速電圧が 0.5 MV~5 MV のタンデム型の静電加速器 (バンデグラフ, またはコッククロフト・ワルトン式) がほとんどである。後述のように、小型サイクロトロンの利用も試験されているがまだ完成していない。

年代測定においては、これらの宇宙線生成放射性同位体のうち放射性炭素 (^{14}C) が最もよく用いられる。炭素は、生物に含まれる主要元素の一つであることから、生物起源のさまざまな考古学・地質学試料に含まれている。さらに、地球の大気中で宇宙線の作用で形成された ^{14}C は酸化されて二酸化炭素 ($^{14}\text{CO}_2$) となり、大気中に存在する他の二酸化炭素とよく混合して、 ^{14}C 濃度が一定になったあと、生物体内に移行する。このため、炭素試料の ^{14}C 初期濃度がほぼ一定であり、試料に残存している ^{14}C 濃度と試料の年代との関係はほぼ指数関数で表される。一方、 ^{41}Ca は、動物の骨などに含まれており、半減期も 10 万年と長いため、原人段階の骨化石の年代測定に利用できる可能性

* 名古屋大学年代測定総合研究センター Center for Chronological Research, Nagoya University
(E-mail: nakamura@nendai.nagoya-u.ac.jp)

が高い。しかし、それぞれの試料中の ^{41}Ca の初期濃度が明白ではないため、また ^{41}Ca の検出は、 ^{14}C の検出に比較してバックグラウンドイオンの除去が難しいため、 ^{41}Ca の年代測定への応用はまだ開発段階といえる。他方、 ^{10}Be 、 ^{26}Al 、 ^{129}I は、湖底・海底堆積物の堆積年代、露出した岩石や隕石の宇宙線照射年代の推定、また ^{36}Cl は地下水の年齢の推定に利用される。

本報文では、AMS の特徴、発展の歴史、日本および世界における稼働状況を述べたあと、AMS による ^{14}C 年代測定について、名古屋大学 AMS システムの構成、諸性能を例として議論する。さらに AMS ^{14}C 測定の応用の問題点、文化財資料への応用例について概説する。

2. 加速器質量分析 (AMS) の特徴

2.1 AMS と放射能測定との比較

放射性同位体を定量する方法としては、(1)放射能を測る方法、(2)加速器質量分析 (AMS) により放射性同位体を直接検出する方法がある。

放射能測定では、放射性同位体が放射性壊変する際に一次的あるいは二次的に放出される α 線、 β 線、 γ 線などの放射線を、ガス比例計数装置、液体シンチレーション計数装置、半導体計数装置などを用いて計測し、試料の比放射能 (単位質量あたりの放射能の強さ) を測る。一方 AMS では、放射性同位体の壊変を待つのではなく、放射性同位体自身を識別して 1 個 1 個計数する。こうして、放射性同位体と安定同位体の存在比が得られる。AMS は、調製して得たわずか数ミリグラムの元素を含む試料を用いて原子の数の比で $10^{-12} \sim 10^{-16}$ の同位体比が測定可能な超高感度同位体比分析法である。AMS によって測定される宇宙線

生成放射性同位体の特徴を表 1 に示す。

放射能測定では、単位時間に計数される放射線のカウンント数 n_c は、

$$n_c = \ln(2) \cdot \epsilon_c \cdot N_r / T_{1/2} \quad (1)$$

で与えられる。ここで、 ϵ_c は計数効率、 N_r は放射性同位体の個数である。 n_c が放射性同位体の半減期 $T_{1/2}$ に反比例することから、半減期の長い放射性同位体では、たとえ放射性同位体の個数が多くても計数率は大きくならない。そこで、測定時間を長くして放射線の総計数 N_{total} を増やすことになるが、バックグラウンドの計数率を小さくすることや検出装置を長時間にわたって安定に作動させるなどの問題点があり高精度の計測は困難である。このため、放射能測定によって長寿命の放射性同位体の測定を高精度で行うことは大変な労力を必要とした²⁾。

一方、AMS において単位時間に計数されるカウンント数 n_{AMS} は、分析計のイオン輸送効率 (検出効率) を ϵ_{AMS} 、イオン源から出力されるイオン電流を I 、安定同位体の数を N_s とすると

$$n_{\text{AMS}} = \epsilon_{\text{AMS}} \cdot I \cdot N_r / N_s \quad (2)$$

で与えられる。

放射能測定および AMS で測定される ^{14}C および ^{10}Be について計数率を比較する。ここで、 $\epsilon_c = 1.0$ 、 $\epsilon_{\text{AMS}} = 0.1$ とする。また AMS では、 C^- で $I = 10 \mu\text{A}$ (6.2×10^{13} ions/s に相当する)、 ^{10}Be 測定の際にイオン源から出力される BeO^- では $I = 1 \mu\text{A}$ の電流が得られるとした。ここで用いた AMS の検出効率 (ϵ_{AMS}) もイオン電流 (I) も控えめの値である。現代炭素 ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C} = 1.2 \times 10^{-12}$) および NBS ベリリウム標準

表 1 AMS により測定できる主な宇宙線生成放射性同位体とその理化学的特徴

放射性同位体	半減期(年)	安定同位体	妨害同重体	イオン源 試料の化学形	陰イオン	測定感度
^{10}Be	1.5×10^6	^9Be	^{10}B	$\text{BeO}(\text{Ag})$	BeO^- , Be^-	3×10^{-15}
^{14}C	5730	^{12}C , ^{13}C	^{14}N	C , CO_2	C^-	3×10^{-16}
^{26}Al	7.1×10^5	^{27}Al	^{26}Mg	Al , $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{Ag})$	Al^-	1×10^{-15}
^{32}Si	101-172	^{28}Si	^{32}S	$\text{SiO}_2(\text{Ag})$	Si^-	4×10^{-15}
^{36}Cl	3.0×10^5	^{35}Cl	^{36}Ar , ^{36}S	AgCl	Cl^-	1×10^{-16}
^{41}Ca	1.0×10^5	^{40}Ca	^{41}K	CaH_2	CaH_3^-	2×10^{-15}
^{53}Mn	3.7×10^6	^{55}Mn	^{53}Cr	$\text{MnO}_2(\text{Ag})$	Mn^-	?
^{129}I	1.57×10^7	^{127}I	^{129}Xe	AgI	I^-	1×10^{-14}

3 番目のコラムから、放射性同位体の測定に際して比較される安定同位体、放射性同位体と同じ質量数を持つため妨害となる同位体、イオン源に用いられる試料の化学形、イオン源で出力される陰イオンの化学形、測定可能な同位体存在比の限界を示す。

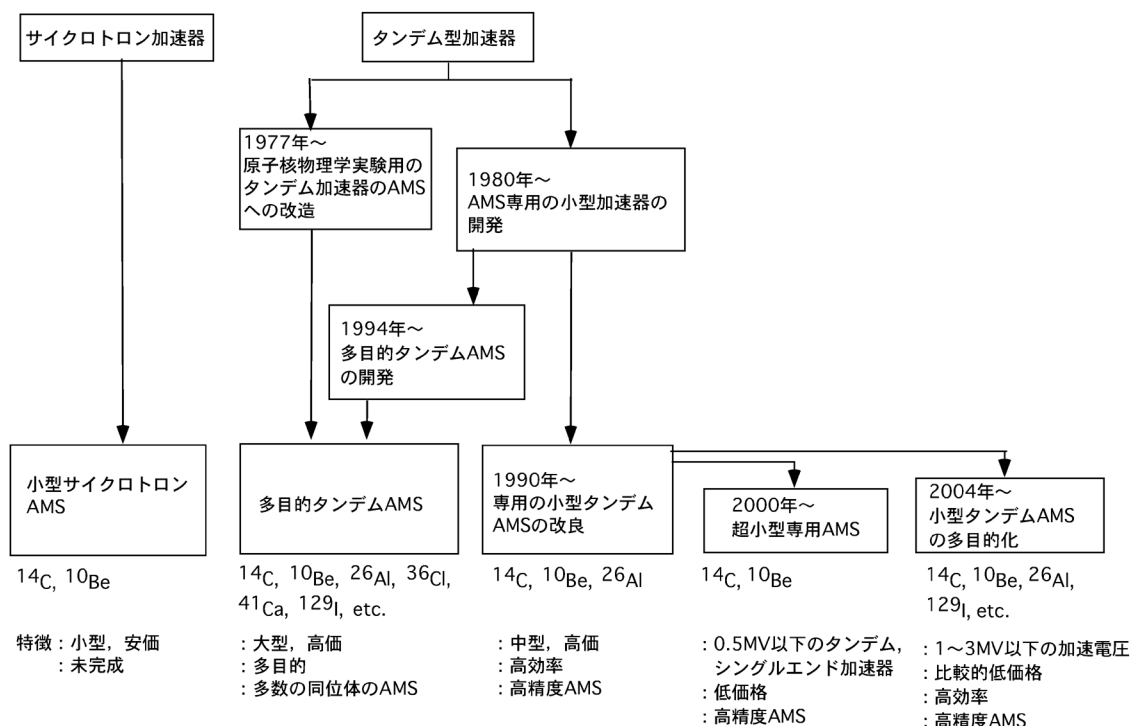


図 1 加速器質量分析 (AMS) の発展の流れ

体 ($^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = 3.1 \times 10^{-11}$) の場合, 1 時間の測定で, AMS では, 26,600 個の ^{14}C , また 68,400 個の ^{10}Be がそれぞれ計数される. しかし, 放射能測定では, それぞれ 1 mg の試料について, 測定に 1 時間かけても, ^{14}C および ^{10}Be の放射壊変による放射線が計算上それぞれ 0.83 個および 0.11 個計数されるに過ぎない. 以上の概算から, AMS の測定感度が極めて高いことが示される.

放射線の計測では, 計数が N のときの計数誤差 ΔN は $\pm\sqrt{N}$ で与えられ, 相対計数誤差は $1/\sqrt{N}$ となる. そこで, 放射能測定では, 放射線の総計数を増やして測定の相対誤差を小さくするために, 試料炭素量を 1 g 以上, 測定時間を 24 時間程度に増やす. AMS では, 試料量が数 mg 程度あれば充分で, それ以上多量にあってもイオン化の効率は増加しない. この比較から AMS は従来の放射能測定に比較して, 測定に必要な試料の量が千分の一以下, 測定時間が十分の一以下と大幅に節約できること, また比較的長寿命の放射性同位体の測定に大変有効であることがわかる.

2.2 AMS 発展の歴史

AMS 発展の歴史を図 1 に示す. 当初は, 質量分解能の高いサイクロトロン加速器を用いて, ^{10}Be や ^{14}C の測定が計画された³⁾. また同年に, カナダのマクマスター大学および米国のロチェスター大学のタンデム加速器を用いた AMS により初めて ^{14}C 測定が行われ

た^{4,5)}. その後約 30 年間にわたって, 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 5~12 MV) が AMS 用に改造され利用されてきた. 現在では, 既に全世界で 70 を越える加速器施設で AMS 利用が可能となっている.

こうした既存のタンデム加速器の改造とは別に, 小型タンデム加速器 (加速電圧 2~3 MV) を用いた AMS 専用のシステム (タンデトロン AMS 装置) が米国 General Ionex 社によっていち早く開発され, 1981~1983 年にかけて米国, 日本, カナダ, イギリス, フランスに導入された. 名古屋大学のタンデトロン AMS はその 1 台である⁶⁻⁹⁾. この AMS 専用機はきわめて安定した性能を持ち, AMS 開発初期の 1980 年台においても, これら数台で全世界の ^{14}C 測定データの過半数を生み出したと言っても過言ではない. さらに, 1991 年以降は, オランダの High Voltage Engineering (HVE) 社により, 従来のタンデトロン AMS が, 最新のコンピューター, 電気・機械制御の技術を取り入れて改良され, ^{14}C 測定専用の高性能改良型タンデトロン AMS として販売されている. この改良型 AMS 装置は, 米国ウッズホール海洋研究所¹⁰⁾, オランダのグローニンゲン大学¹¹⁾, ドイツのクリスティン・アルブレヒト大学¹²⁾ に設置され, 1996 年 3 月末には名古屋大学に設置された¹³⁾. 1997 年 3 月末には, ^{14}C のほかオプションとして ^{129}I が測

定可能な機種が日本原子力研究開発機構青森研究開発センターに設置されている¹⁴⁾。また、名古屋大学と同型の装置が1998年に韓国のソウル大学¹⁵⁾、2002年にイギリスのオックスフォード大学¹⁶⁾、また多目的利用を兼ねた3 MV AMS systemが2001年にイタリアのLecce大学¹⁷⁾、2003年にフィレンツェのNational Institute of Nuclear Physics (INFN)、2005年に中国西安の地球環境研究所¹⁸⁾に設置された。

本格的な多目的利用のタンデム加速器として、1991～1993年にかけて東京大学に設置されたタンデム加速器では、AMSを主たる目的として設計・製作され、¹⁰Be, ¹⁴C, ²⁶Al以外にも、³⁶Cl, ⁴¹Ca, ¹²⁹Iなどいくつかの放射性同位体の測定が計画された。これは、**図1**に示した多目的タンデムAMSの流れである。東京大学では、1982年ごろタンデム・バンデグラーフ加速器を改良したAMSが開発され、¹⁰Be, ¹⁴C, ²⁶Alの測定が1991年までルーティンに行われていた^{19,20)}。その後1991年から1993年にかけて、米国のNational Electrostatic Corporation (NEC)社製の加速電圧5 MVの新型タンデム加速器に更新された²¹⁾。現在、この装置を用いて¹⁰Be, ¹⁴C, ²⁶Al, ³⁶Cl, ¹²⁹Iの測定がルーティンに実施されている²²⁾。日本国内のその他の研究機関によるAMS研究の進展状況としては、東京大学と同型のAMS装置が国立環境研究所に1995年の秋に設置されている。国立環境研究所では、¹⁴C濃度の測定において±0.3～±0.7%の再現度が達成されている²³⁾。また同型のAMS装置が1997年3月に日本原子力研究開発機構東濃地科学センター²⁴⁾に設置されている。さらに、NEC社は、加速電圧3 MV, 1.7 MV, 0.5 MVのタンデム加速器を用いたAMSシステムを開発している。加速電圧3 MVのタンデム加速器によるAMSシステムは、オーストリアのウィーン大学、米国のアリゾナ大学、そして日本の加速器分析研究所²⁵⁾などに設置され順調に稼働している。日本国内では、このほか、筑波大学²⁵⁾、京都大学²⁶⁾、九州大学²⁷⁾でも既存のタンデム加速器を用いたAMSの研究が推進されており、筑波大学では³⁶Clの測定が、京都大学では¹⁴Cの測定が可能となっている。

ここ数年の傾向としては、加速電圧0.5 MVのタンデム加速器を用いる小型のAMSシステムの利用が急速に発展している。米国NEC社製のcompact-AMSシステム²⁸⁾が、ポーランドのPoznan研究所、アメリカ合衆国のGeorgia大学、California大学、日本のパレオ・ラボ²⁹⁾および加速器分析研究所³⁰⁾、中国の北京大学などに導入されている。また、加速器0.25 MV

のシングルエンド静電加速器を用いるAMSシステムが¹⁴C測定専用として開発され、スウェーデンのLund大学²⁸⁾、オーストラリアのANU大学に導入されている。さらに、加速電圧1 MV程度の小型タンデム加速器を用いて複数の同位体を測定できる装置の開発が進んでおり、大韓民国地質調査所に導入されたAMS装置は加速電圧1 MVであるが、¹⁰Be, ¹⁴C, ²⁶Alの高精度の測定が保証されている。現在、世界で利用されているAMS装置は、オランダのHVE社と米国のNEC社の2社による製品ではほぼ独占されており、両社がAMS関連の新技术の開発にしのぎを削っている。他方、スイスのPSI/ETH実験室や英国のOxford大学に所属するAMS研究者が、両社の資金援助を得て、AMS関連の新技术（装置の小型化およびCO₂ガスイオン源など）の開発に参画し、優れた製品を生み出している。

一方、AMSの開発当初に進められた小型サイクロトロンを用いるAMSの研究は現在も継続されている²⁹⁻³¹⁾。この技術が実用化できれば、小型で安価な装置を組み上げることが可能である(**図1**)。しかし前述のように、加速電圧0.5 MV以下のタンデム加速器を用いる超小型のAMSシステムが既に実用化されており、小型サイクロトロンを用いる¹⁴C測定の開発研究は意義を失いつつある。

3. 名古屋大学タンデトロンAMSによる¹⁴C, ¹³C, ¹²C測定

名古屋大学タンデトロン加速器質量分析計(**図2**)による¹⁴C, ¹³C, ¹²Cの直接測定の概略を以下に記す。採取された試料から特定の炭素成分を抽出して、それを固形炭素であるグラファイトに変換する。AMSのイオン源では、グラファイトターゲットの表面をCsの陽イオンで照射して炭素の陰イオンを作る。¹⁴Cの同重体である¹⁴Nの陰イオンは不安定なため形成されない。イオン電流は10 μA程度が得られる。これは炭素陰イオンが1秒間に6.2×10¹³個生成されることになる。リコンビネーターを用いて¹²C⁻, ¹³C⁻, ¹⁴C⁻を選別し、それらを同時に加速器へ入射する。この際に、¹²C⁻は、スリット付きの回転円盤からなるビームチョッパーを用いてビーム強度を1/90程度に減ずる。得られた炭素イオンをタンデム加速器を用いて2.5 MVの電圧で加速し、タンデム加速器の中央において、ストリッパー(Ar gas)を用いて陰イオンから陽イオンへ荷電変換する。この際に、イオン源において炭素の原子イオン(¹²C⁻, ¹³C⁻, ¹⁴C⁻)と同時に作られる分子イオン(¹²CH⁻, ¹³CH⁻, など)を原子

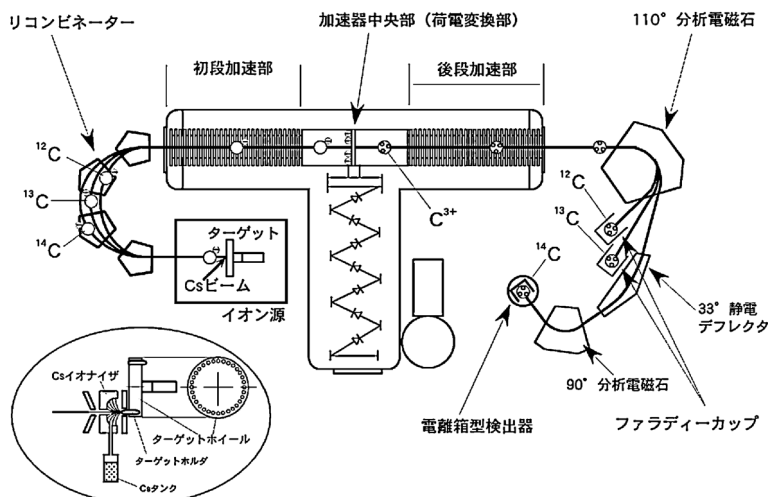


図2 名古屋大学タンデトロンのAMSシステムの構成

イオンに壊してしまう。こうして、 ^{14}C と同じ質量を持つ ^{13}CH 分子を ^{13}C とH原子に分解し、後段の質量分析において質量数14の分子イオンが ^{14}C の選別を妨害しないようにする。このあと質量分析電磁石により $^{12}\text{C}^{3+}$, $^{13}\text{C}^{3+}$, $^{14}\text{C}^{3+}$ の進行する軌道が分けられ、 $^{12}\text{C}^{3+}$, $^{13}\text{C}^{3+}$ のイオンはそれぞれの電流読みとり装置 (Faraday cup) で定量される。+3価イオンを選ぶ理由は、荷電変換において+3価の分子イオンは生き残らないからである。+3価イオンを選んでいるので $^{14}\text{C}^{3+}$ は、静電デフレクタによるエネルギー選別を受けたあと、重イオン検出器 (気体電離箱検出器) へ導かれ、イソブタンガス中でのエネルギー損失の違いにより他のバックグラウンドイオンから識別されて計数される。このように、AMSでは、試料炭素に含まれる炭素同位体比 ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$, $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$) が測定される³²⁾。 ^{14}C 年代測定において、 ^{14}C 年代は、西暦1950年を基準にして1950年から遡った年数 (BP: before present の略記) で示される。そこで、“初期 ^{14}C 濃度”として西暦1950年に対応する ^{14}C 濃度 ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C} \cong 1.2 \times 10^{-12}$) が定義される³³⁾。

3.1 名古屋大学のHVEタンデトロンのAMSシステムの諸性能

名古屋大学では、1981-1982年に米国GIC社製のタンデロン加速器質量分析計を導入した⁶⁾。アリゾナ大学へ導入されたタンデロン加速器質量分析計1号機の兄弟機器である。1983年から1999年までに、この分析計を用いて約8000個の試料を測定した。この間、1996年に、オランダ国のHVE社製のタンデロン (Model4130-AMS) (図2) が新たに導入され、1999年から ^{14}C 測定利用が開始された。

1999年から2007年末までに測定したターゲットの個数は12,724個に及んでいる。

名古屋大学のタンデロン加速器質量分析計による ^{14}C 年代測定は次の様な特徴を持つ。

- () ごく少量の炭素試料で測定が可能である。分析計に用いるグラファイトは、炭素として0.2~2 mg あればよい。
- () 測定誤差は、数千年前までの比較的新しい試料については、定常的な年代測定では $\pm 20 \sim \pm 35$ 年程度である。試料の年代が古くなると誤差はこれより大きくなる (図3)。
- () ごく低い ^{14}C 濃度の測定が、すなわち古い年代の測定が可能である。5万~6万年前まで遡って年代測定ができる。
- () 測定に要する時間が短く、1試料あたり1~2時間でよい。

3.1.1 ^{14}C 年代測定の誤差

名古屋大学での測定手順は、47個のターゲット (^{14}C 濃度未知の試料34個, ^{14}C 濃度標準体6個 \times 2種類, システムバックグラウンド (ブランク試料として ^{14}C を含まないはずのグラファイト) 1個) について続けて3回繰り返し測定して再現性を検定し、また統計精度をあげることで高い精度を達成している。すなわち、ターゲット1個あたり30分の測定を3回繰り返すことになる。シュウ酸標準体 (HOxI および HOxII) から製作したそれぞれ6個のターゲットの ^{14}C 濃度の変動幅は、1回の測定において1標準偏差で $\pm 0.5\%$ (年代のバラツキ幅にして ± 40 年) 以下となり、それぞれで互いに良く一致している。図3に示すように、Modern~5千年前程度の試料で ^{14}C 年代

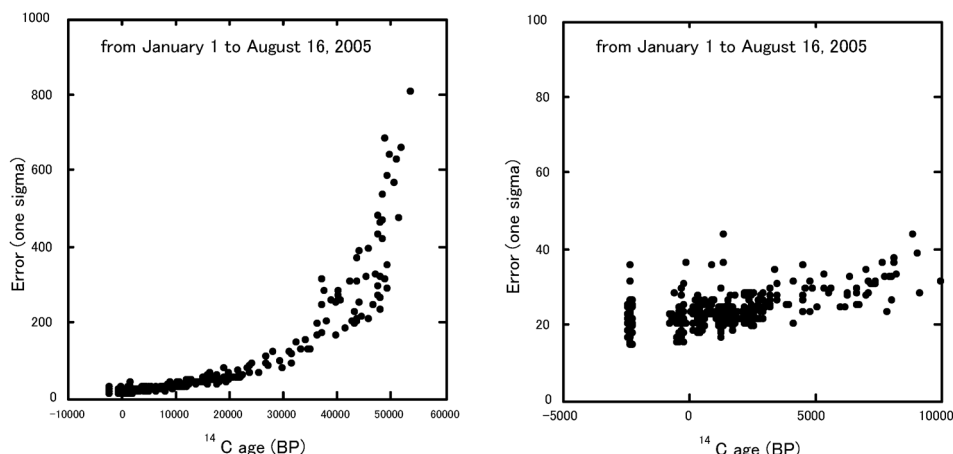


図3 名古屋大学 HVE タンデロン加速器質量分析計による定常的な ^{14}C 年代測定の誤差
 環境中の炭素は、大気圏内の核実験で生成された人工起源 ^{14}C を含むため、1960 年代以降の生物活動で生成された試料では、 ^{14}C 濃度が標準のレベル（初期 ^{14}C 濃度）よりも高く ^{14}C 年代が見かけ上負の値となることがある。左図：Modern～60,000 BP の測定結果，右図：Modern～10,000 BP の拡大図

測定の 1 標準誤差は $\pm 20 \sim \pm 35$ 年程度である。平均的な分布からずれて誤差が大きいターゲットは CO_2 からグラファイトへの合成がきちんと進まなかったものである。グラファイトの合成の度合いが悪いとターゲットからの炭素イオン出力が弱く、 ^{14}C の計数が減るため統計誤差が大きくなる。

3.1.2 ^{14}C 年代測定の再現性

一般に ^{14}C 年代測定の精度や正確度の検証は簡単ではなく、その検証方法が今なお検討されている。精度については、繰り返し測定が一つの目安になる。名古屋大学の AMS 装置の精度試験では一例として北海道千歳市生瀧 2 遺跡³⁴⁾ から出土した厚く堆積したクルミの殻を用いた。クルミの殻はかなり丈夫で汚染にくいので年代測定が実施しやすい試料である。北海道埋蔵文化財センターから提供された数十個のクルミ殻の破片の中から独立した個体を 10 点選んで独立して試料調製および年代測定を行ったところ、それぞれの ^{14}C 年代は 1 標準偏差の誤差 (± 30 年) 範囲で一致した (図 4)。10 個の平均をとると 2699 ± 11 BP となり、バラツキの誤差 ($\pm 1\sigma$) を ± 11 年程度に抑えることが可能であることが示された。

3.1.3 ^{14}C 測定の国際比較

国際的な放射性炭素研究組織 (<http://www.radiocarbon.org>) は、既に 5 回の ^{14}C 測定国際比較を実施している³⁵⁾。この ^{14}C 測定の国際比較はブラインドテストとして実施され、正確度の検定に利用される。2004 年に実施された第 5 回国際比較 (Fifth International Radiocarbon Inter-comparison; VIRI) の結果によると、参加した ^{14}C 測定機関は 66 機関

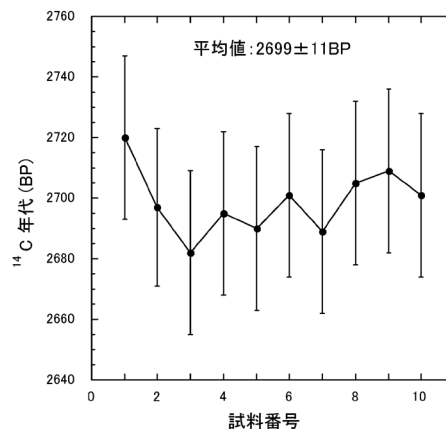


図 4 北海道生瀧 2 遺跡出土のクルミ殻 10 個の ^{14}C 年代の比較

(2000 年に実施された第 4 回国際比較の数値を括弧内に比較して示す；92 機関)。この 66 機関のうち、AMS が 32 機関 (25 機関)、LSC (液体シンチレーション法) が 31 機関 (49 機関)、GPC (ガス比例計数管法) が 10 機関 (18 機関) であった。両比較が実施された 5 年の間に、相対的には AMS 研究機関の参加が増加していることがわかる。配布された試料は 4 点であり、近年に収穫され ^{14}C 濃度が高い barley mash (粉碎したオオムギ) が 2 点、各 2 g ずつ、また、考古学関連試料として、charred seed (炭化穀物) が 2 点、各 4 粒ずつであった。各試料について、グラファイトを独立に 2 個ずつ作成して測定した結果を、国際機関で測定された結果と比較して表 2 に示す。

比較の結果、国際機関で測定された結果は大きなバ

表 2 ^{14}C 測定の第 5 回国際比較 VIRI の結果

試料番号	資料物質	平均値	中央値	標準偏差	最小値	最大値	名古屋大 ($\pm 1\sigma$)
A (pMC)*	粉碎した大麦	108.6	109.1	2.78	92	113.0	109.6 \pm 0.3 109.7 \pm 0.3
B (BP)**	炭化穀物	2825	2821	198.7	2460	3979	2752 \pm 25 2803 \pm 28
C (pMC)*	粉碎した大麦	109.8	110.6	2.35	98.6	112.6	110.7 \pm 0.3 110.9 \pm 0.3
D (BP)**	炭化穀物	2859	2835	185.2	2580	3998	2811 \pm 25 2832 \pm 25

* percent modern carbon の略記。 ^{14}C 濃度を示す。 ^{14}C 年代が 0BP である標準体の ^{14}C 濃度（初期 ^{14}C 濃度）を 100% としたときの未知試料の ^{14}C 濃度を%で表す。 試料の ^{14}C 濃度が 100% を超えるのは、核実験起源の ^{14}C を含むためである。

** ^{14}C 年代。 1950年を起点として、遡った年数を表す。

ラツキが見られる。そこで平均値ではなく中央値と比較すべきである。名古屋大学の結果は中央値とほぼ一致しているが、細かく見ると国際機関で測定された結果の中央値に比べて ^{14}C 濃度がやや高い方、また、同様な傾向であるが ^{14}C 年代が若い方向に少しずれていることがわかる（表 2）。このような系統的なずれの原因をきちんと検討する必要がある。

3.1.4 実験室間の比較研究

国内の 2 つの AMS 施設で ^{14}C 測定の比較研究を行った。共に年代測定の標準体として用いられている、 ^{14}C 濃度の異なる 2 種類のシュウ酸標準体 HOxI 及び HOxII から調製された計 20 個（自施設製 10 個、他施設製 10 個）のグラファイトについて、炭素同位体比 ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$, $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$, $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$) が、それぞれの AMS 施設において測定された。試料の炭素同位体比は、それぞれの AMS 施設において HOxII から別途に作成したグラファイトを比較対象にして測定された。

測定結果の詳細は、中村³⁶⁾を参照されたい。HOxII について測定された $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ を HOxI について測定された $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ で除した値を比較して図 5 に示す。試料の調製と測定について可能な 4 つの組み合わせを取ると、 $(^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{HOxII}} / (^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{HOxI}}$ は、名古屋大学の AMS 施設による測定値の方が他の施設の測定値よりもやや大きい値を示すが、測定の誤差範囲内で両施設間でよく一致している。これは何を意味するのか。実は、AMS による炭素同位体比の測定においては、試料の炭素同位体比は、絶対測定によるものではなく、炭素同位体比が既知の標準体に対する相対値として得られる。今回、2 つの AMS 施設間で、 $(^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{HOxII}} / (^{14}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{HOxI}}$ の測定結果がよく一致したことは、施設間で同じ標準体を用い、さらに、試料と標

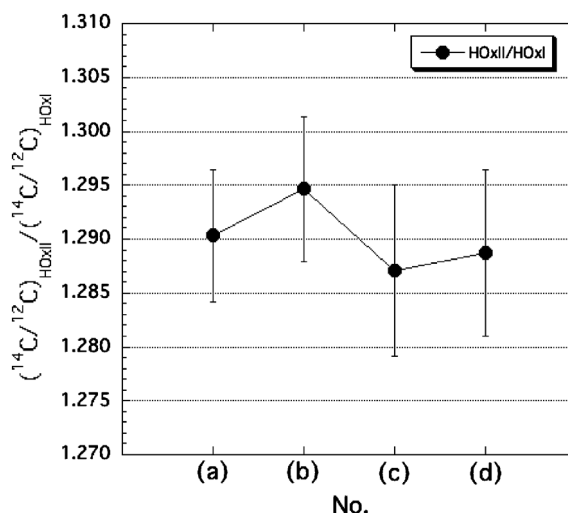


図 5 ^{14}C 測定の実験室間の比較

(a)名古屋大学で試料調製し、それを名古屋大学で測定、(b) a 施設で試料調製し、それを名古屋大学で測定、(c)名古屋大学で試料調製し、それを a 施設で測定、(d) a 施設で試料調製し、それを a 施設で測定

準体の調製を一つの施設にて行った組み合わせを用いれば、どちらの施設で測定しても同じ試料の $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ は測定の誤差範囲内で一致することを示している。

4. ^{14}C 年代測定法の原理および対象となる試料とその調製法

^{14}C 法では、 ^{14}C が放射壊変により規則正しく減少する物理現象を正確な時計として利用する。 ^{14}C は地球上に絶え間なく降り注ぐ宇宙線によって大気中で作られる。宇宙線の作用でまず中性子が作られ、これが大気中の窒素 (^{14}N) と核反応を起こして ^{14}C と陽子

が生成される。生成された ^{14}C は酸化されて $^{14}\text{CO}_2$ となり、安定炭素からなる $^{12}\text{CO}_2$, $^{13}\text{CO}_2$ とよく混合し、それらの比率は一樣になる。宇宙線による ^{14}C の生成が時間的に変動しなければ、単位時間に放射壊変により減少する ^{14}C の個数と生成される個数とが釣り合って、地球上の ^{14}C の個数は時間的に変動しない。大気中で生成された ^{14}C は、地球のグローバルな炭素循環や食物連鎖に従って、大気から光合成により植物へ、そして動物へ、さらに陸上堆積物へ、また海洋水や陸水へ、そして海洋や湖底の堆積物へと移行し、さらに分解により大気へ戻る。これらの様々な炭素含有物質のうち、炭素固定を行った時期が数万年前より新しいものでは固定されたときの ^{14}C がまだ残っており、その ^{14}C 濃度を測定することで炭素固定の年代が測定できる。

以上の ^{14}C 法の原理に基づき、ある試料について ^{14}C 法が適用でき、かつ正確な年代値が得られる条件としては次の2項目があげられる。

- () 試料中で炭素固定が行われた時の ^{14}C 濃度（本稿では“初期 ^{14}C 濃度”と称する。また、 ^{14}C 濃度は、AMS による ^{14}C 年代測定では試料中の ^{14}C , ^{12}C の原子数の比、すなわち $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ とする）が正確に判っていること、
 - () 試料が外界から隔離されてから年代測定に供されるまでの間、試料中の炭素は外界との交換がなく閉鎖系に保たれていたこと、
- である。これらの2条件は測定対象となる試料自身の性質に依存する。試料が古くなるほど初期 ^{14}C 濃度は不明確になるし、自然環境下に存在した間に炭素について閉鎖系が保たれていたかは明らかではない。しかし AMS による ^{14}C 年代測定ではごく微量の炭素で年代測定が可能であることから、採取した生試料から上記の条件()を満たすような炭素化合物を選別することにより、試料の正しい年代値を得ることが可能となっている。

^{14}C 年代測定試料として、木片・草片・竹片、木炭・炭化物、泥炭、骨・牙・歯、動物の筋肉・体毛、絹糸・綿糸・紙片、土壌・湖底や海底の堆積物、貝殻・サンゴ・プランクトン、淡水や海水中の溶存無機炭酸および有機態炭素、大気中の $\text{CO}_2 \cdot \text{CH}_4$ 、古代鉄中の炭素、などが用いられる。 ^{14}C 年代測定では、測定対象となる試料が本来持っていた炭素物質を生試料から物理的・化学的に選別、抽出して（後世に試料に混入した可能性のある外来の汚染物質は完全に除去する）、AMS のイオン源に用いる固体状炭素（グラフアイト）を作製する化学操作が不可欠である。例え

ば、骨化石試料では通常は骨に含まれる硬タンパク質のコラーゲンを抽出して用いる。しかし、コラーゲンの分解が進んでおり汚染の心配がある場合には、さらに骨の本質物質であるアミノ酸を抽出して用いる³⁷⁾。試料調製法の詳細については、中村³⁸⁾を参照されたい。

5. ^{14}C 測定の利用

天然試料について測定される高精度の ^{14}C 年代あるいは ^{14}C 濃度はさまざまな研究分野で利用される。しかし ^{14}C 年代については、 ^{14}C 年代と暦年代の区別を明確にしておく必要がある。

5.1 ^{14}C 年代軸から暦年代軸への較正の必要性

古文化財資料や考古学資料の編年を研究する場合、まず始めに明らかにしたいのはそれぞれの資料の暦年代である。石碑や古文書などの古記録の情報から資料の暦年代を明らかにすることが出来ない場合には、理化学的な年代測定法、例えば年輪年代測定法や ^{14}C 年代測定法などが適用される。年輪年代法では、樹種、生育した地方、さらに木材の年輪数などについて制限がある³⁹⁾。また、理化学的に資料から直接測定される ^{14}C 年代は、資料の暦年代とは明らかに異なる。歴史に刻まれる1年は地球が太陽を1周するのに要する時間であるのに対し、 ^{14}C 年代の1年は閉鎖系にある炭素中の ^{14}C の個数が 0.012% 減少するのに要する時間である（ ^{14}C の半減期を 5730 年とした場合）。この問題に対応するために前述の国際的な放射性炭素研究組織は、古い木材の年輪や海底堆積物の年縞の計数及びサンゴの U-Th 年代測定から得られる年代を暦年代に相当するとして、暦年代とそれらの試料の ^{14}C 年代の対応関係を調べてきた。海底堆積物の年縞には有孔虫（プランクトン）や植物細片が混入しており、 ^{14}C 年代測定に用いられる。こうして両者の対応がわかれば、 ^{14}C 年代から暦年代への換算ができる。30 年近い研究の成果が現在、全世界的に ^{14}C 年代から暦年代への変換に使われている ^{14}C 年代較正曲線（IntCal04 あるいは一つ古い版である IntCal98 データセット）である⁴⁰⁾（図6）。IntCal04 や IntCal98 を詳細にみると ^{14}C 年代は暦年代からずれていることがわかる。おおよそ AD 1 年以前では ^{14}C 年代は暦年代よりも系統的に若い値を示し、そのズレは年代が古くなるほど大きくなる傾向を示す。数千年前では ^{14}C 年代は暦年代よりも 500~800 年若く、数万年前になると 3 千~5 千年若い。このズレは太陽活動や地球磁場の強弱の経年変動に基づく ^{14}C 生成頻度の変化、また大気と海洋間の炭素交換による ^{14}C 濃度の希釈効果に由来

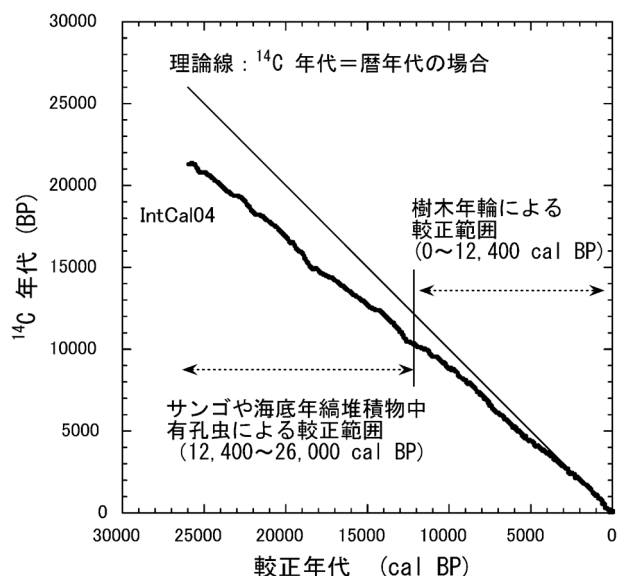


図6 ^{14}C 年代-暦年代校正曲線 (IntCal04; 0-26,000cal BPの範囲). Reimer et al. (2004) による

し、地球の気候変化と関連するとされる³⁸⁾。

考古学的イベントの時間的周期性、例えば、土器型式の変遷過程や一つの型式の使用期間などを解析しようとする際には、歪んだ時間尺度である ^{14}C 年代で議論してはいけない。代わりに暦年代を用いる必要がある。そこで、IntCal04を用いて ^{14}C 年代から暦年代への校正が不可欠である。

5.2 日本産樹木を用いた国際校正データの検証

世界的に用いられている ^{14}C 年代校正曲線であるIntCal04あるいはIntCal98は、北米大陸のロッキー山脈あるいは欧州のドイツ南部で生育した樹木を用いて作成されている⁴⁰⁾。そこで日本産の樹木に対してこのIntCal04が適用可能か否か、すなわち、大気中の CO_2 の ^{14}C 濃度に地域差が存在するかについて比較研究が進められている。この研究は昨今話題になっている弥生時代の開始年代の議論⁴¹⁾と深く関わっている。日本における比較研究はKigoshi & Hasegawa⁴²⁾により1960年台に始められたが、AMSによる高精度 ^{14}C 年代を用いた本格的な研究はSakamoto et al.⁴³⁾により着手され、箱根町や宮田村の堆積物、払田柵遺跡から採取された4本のスギ材(年輪年代範囲240BC-AD900)について10年分の年輪をまとめて分割して ^{14}C 年代を測定した結果をIntCal98と比較してほぼよく一致していることを確認している。しかし、この中でAD100-AD200の間で日本のスギ材の ^{14}C 年代の方がIntCal98よりも系統的に古い方に30~40年ずれていることを確認している。中村ほか⁴⁴⁾は、芦ノ湖湖底から採取されたヒノ

キ材(AD61-AD180)について同様に ^{14}C 年代測定を行い、同年代範囲で同様な古い年代へのずれを確認している。Ozaki et al.⁴⁵⁾は長野県飯田市畑ノ沢地区で採取されたヒノキ材(705BC-193BC)及び広島県広島市黄番1号遺跡から採取されたスギ材(840BC-200BC)を用いて、5年分の年輪をまとめて ^{14}C 年代測定を行いIntCal04と比較し、両者がほぼ一致する結果を得ている。

一方、宮原ほか⁴⁶⁾は枯死年あるいは伐採年のわかった木材を用いて、すなわち、奈良県室生寺から採取されたスギ材からAD1617-AD1739の年輪を、また鹿児島県屋久島で伐採された2本の屋久杉からそれぞれAD1413-AD1615及びAD881-AD1072の年輪を選別し、1年輪ごとに分割して ^{14}C 濃度を測定した。Miyahara et al.⁴⁷⁾はこれらの年輪データをもとに過去の太陽活動の強弱変動の周期を解析している。Nakamura et al.⁴⁸⁾はこれらのデータをもとに、日本産樹木の年輪の ^{14}C 年代をIntCal04と比較した。その結果、日本産樹木の ^{14}C 年代はIntCal04が示す ^{14}C 年代に対してAD881-AD1072の年輪区間で $+26.2 \pm 27.2$ [^{14}C 年]、AD1413-AD1615の年輪区間で $+14.9 \pm 22.1$ [^{14}C 年]、AD1617-AD1739の年輪区間で $+7.8 \pm 24.0$ [^{14}C 年]のズレが得られた。 ^{14}C 年代のずれはいずれもばらつきの誤差範囲ではあるが、日本産の樹木の方がIntCal04に比べて古い ^{14}C 年代を示す傾向にある。これらのずれは ^{14}C 年代校正の正確度にかかわる問題であり、今後、高精度のデータを蓄積し詳細な検討が必要である。現状では日本産試料の校正にはIntCal04あるいはIntCal98が用いられている。

5.3 尼寺に伝わる袈裟の ^{14}C 年代測定

名古屋大学のHVEタンデントロンAMSシステムによる ^{14}C 測定はさまざまな学際研究に利用されてきた⁴⁹⁾。ここでは古文化財資料の ^{14}C 年代測定の一例として、尼寺に伝わる袈裟の ^{14}C 年代測定を紹介する。

京都の曇華院門跡に所蔵されている二着の袈裟について ^{14}C 年代測定を行った⁵⁰⁾。この二着の九条袈裟は、さまざまな史料や歴史的な背景の調査から曇華院の開山(1311-1388)の所有物であったと考えられている。袈裟の所有者が着用したとすれば、所有者の死亡年より以前に袈裟が作製されたことが前提になる。しかし、袈裟の保存中に何らかの異変(例えば取り違いなど)が起こった可能性は否定できない。そこで、科学的方法により、実物である可能性を確認するために袈裟の素材である絹糸の ^{14}C 年代を測定した。また、併せて袈裟を包んであった白色の和紙についても

表3 袈裟関連資料の $\delta^{13}\text{C}$, ^{14}C 年代および較正年代

資料番号	試料	$\delta^{13}\text{C}^*$ (‰)	^{14}C age (BP)	^{14}C 年代を較正した年代 (cal AD) $\pm 1\sigma$ の較正年代範囲** (可能性の確率)	^{14}C 年代を較正した年代 (cal AD) $\pm 2\sigma$ の較正年代範囲 (可能性の確率)	実験室コード番号 (NUTA2-)
KJ-W	袈裟保存紙(白)	-22 ± 1	130 ± 32	cal AD 1682-1707 (17.0%) cal AD 1719-1737 (12.7%) cal AD 1803-1826 (14.2%) cal AD 1832-1885 (37.6%) cal AD 1913-1936 (16.5%)	cal AD 1673-1778 (40.2%) cal AD 1799-1894 (43.6%) cal AD 1904-1942 (15.7%)	12321
KJ-B	袈裟(茶)	-26 ± 1	537 ± 32	cal AD 1329-1339 (16.9%) cal AD 1396-1429 (83.1%)	cal AD 1316-1354 (29.2%) cal AD 1389-1439 (70.8%)	12323
KJ-P	袈裟(紫)	-27 ± 1	570 ± 32	cal AD 1319-1351 (59.7%) cal AD 1390-1412 (40.3%)	cal AD 1303-1366 (60.1%) cal AD 1383-1424 (39.9%)	12320

* $\delta^{13}\text{C} = [(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{sample}} / (^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{PDB}} - 1.0] \times 1000$ (‰), ここで, PDB は Pee Dee Belemnite の略記で, 炭酸カルシウムからなる矢石類の化石であり, $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比の標準体として用いられる.

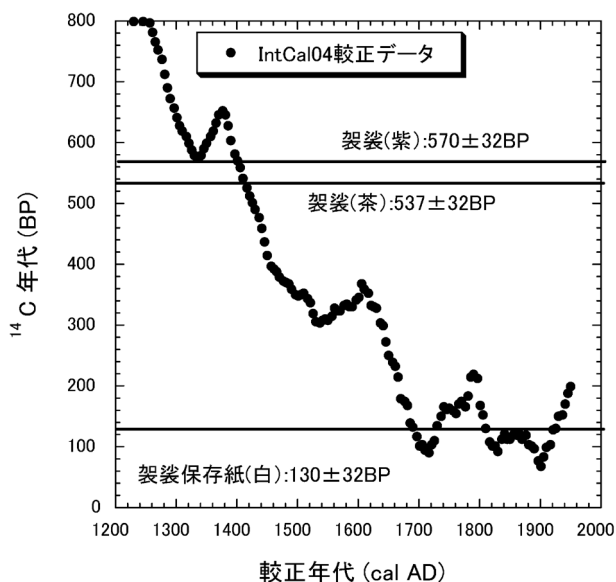


図7 袈裟関連資料の ^{14}C 年代, および較正データ IntCal04 との比較

袈裟保存紙(和紙)の較正年代は, 信頼確率95%の範囲で cal AD 1670-1940 と, 袈裟(茶)の較正年代は, 信頼確率95%の範囲で cal AD 1320-1440 と, 袈裟(紫)の較正年代は, 信頼確率95%の範囲で cal AD 1300-1420 と推察される.

^{14}C 年代測定を実施した. 表3 および図7 に示すように, 絹糸の年代はほぼ14世紀初頭から15世紀前半, 和紙の年代は江戸時代中期以降と測定された. 袈裟を包んでいた和紙は, おそらく江戸時代に取り替えられたものと考えられる. 一方, 絹糸の ^{14}C 年代は, カイコが食した桑の葉の年代を意味する. もし, 繭から絹糸, 絹織物, 袈裟までの作製が短期間に進んだと

すれば, 絹糸の ^{14}C 年代は袈裟の作製年代を示す. もちろん, 袈裟が作製されてから何人かの手に渡って, 最後の持ち主のところに落ちていた可能性もあることを考えると, 絹糸の ^{14}C 年代と最後の持ち主の生存年代には幾分かの年差があってもよい. ^{14}C 年代測定の結果, 二着の袈裟は95%の信頼度で, それぞれ cal AD 1303-1424 および cal AD 1316-1439 と得られ, 開山の生存期間を含んでおり, これらの袈裟が開山の持ち物であった可能性は高いと結論される. 推定された暦年代範囲が2区間に分かれ, しかも全体として120年間を超えて広い(表3)理由は, この年代区間で, IntCal04 が ^{14}C 年代軸でジグザグしているためである(図7). 残念ながら, IntCal04 にジグザグがある区間では, ^{14}C 年代を高精度で測定しても暦年代を狭い範囲に絞り込むことはできない.

6. 今後の展望

^{14}C 年代測定は AMS 法の開発により大きな発展を遂げた. 今や, 数千年前程度の比較的若い試料については $\pm 20 \sim \pm 30$ 年の誤差 ($\pm 1\sigma$) で測定できる. また, 測定可能な試料数は試料調製さえできれば年間2000個を超える. 今後の技術改良によってさらに, 正確度, 精度の向上, 測定効率の向上が進められるであろう.

^{14}C 年代軸から暦年代軸への較正が, ^{14}C 年代の利用者にも定着してきた. ^{14}C 年代測定の精度向上と共に, 歴史時代の文化財や考古学資料の ^{14}C 年代測定から, 較正年代と暦年代の比較研究が近年盛んに推進されている. このような年代測定技術の進歩に伴って, 日本人の起源や日本での定住過程, 土器編年, コメの

日本への伝搬や古環境変動イベントの高精度年代解析など、さらに世界の文明の発祥、発展の詳細な編年など、考古学や文化財科学研究へ、また古環境の編年や ^{14}C をトレーサーとして用いる現環境解析への応用がさらに発展するものと期待される。

参考文献

- 1) 中村俊夫, “考古学のための年代測定学入門”, p. 1, 古今書院 (1999).
- 2) 山越和雄, “低レベル放射線計測”, p. 230, 共立全書, 東京 (1980).
- 3) R. A. Muller, *Science*, **196**, 489 (1977).
- 4) D. E. Nelson *et al.*, *Science*, **198**, 507 (1977).
- 5) C. L. Bennett *et al.*, *Science*, **198**, 508 (1977).
- 6) T. Nakamura *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **24**, 1716 (1985).
- 7) 中村俊夫, 中井信之, 地質学論集, **29**, 83 (1988).
- 8) 中村俊夫, 第四紀研究, **34**, 173 (1995).
- 9) 名古屋大学年代測定資料研究センター: 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, II~VIII, (1991~1997).
- 10) K. F. Reden *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B92**, 7 (1994).
- 11) D. J. W. Mous *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B92**, 12 (1994).
- 12) M-J. Nadeau *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B123**, 22 (1997).
- 13) T. Nakamura *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B172**, 52 (1997).
- 14) T. Aramaki *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res.*, **B172**, 18 (2000).
- 15) J. C. Kim *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res.*, **B172**, 13 (2000).
- 16) C. B. Ramsey *et al.*, *Radiocarbon*, **46**, 1, 17 (2004).
- 17) L. Calcagnile *et al.*, *Nucl. Instr. And Meth. in Phys. Res.*, **B223-224**, 16 (2004).
- 18) W. Zhou *et al.*, *Radiocarbon*, **48**(2), 285 (2006).
- 19) M. Imamura *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res.*, **B5**, 211 (1984).
- 20) 永井尚生ほか, 質量分析, **39**(6), 315 (1984).
- 21) K. Kobayashi *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B92**, 31 (1994).
- 22) H. Matsuzaki, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B259**, 36 (2007).
- 23) H. Kume *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res.*, **B123**, 31 (1997).
- 24) S. Xu *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res.*, **B172**, 8 (2000).
- 25) Y. Nagashima *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B172**, 129 (2000).
- 26) M. Nakamura *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B172**, 124 (2000).
- 27) S. Mitarai *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B223-224**, 135 (2004).
- 28) J. Knezovich *et al.* (eds.), *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B259**, p. 816 (2007).
- 29) K. J. Bertsche *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B52**, 398 (1990).
- 30) M. B. Chen *et al.*, *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res.*, **B29**, 213 (1994).
- 31) Y. L. Liu *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B259**, 62 (2005).
- 32) 中村俊夫, 第四紀研究, **40**(6), 445 (2001).
- 33) 中村俊夫, *Radioisotopes*, **52**, 3, 145-171 (2003).
- 34) 山形秀樹, 北檜山町生洲2遺跡—太櫓川広域基幹改修工事用地内埋蔵文化財発掘調査報告書一, 財団法人北海道埋蔵文化財センター, **85** (2005).
- 35) 中村俊夫, 国立歴史民俗博物館研究報告, **137**, 37 (2007).
- 36) 中村俊夫, 平成14年度科学研究費補助金(基盤研究(C)(1))研究成果報告書, 課題番号: 14608004, (2003).
- 37) M. Minami and T. Nakamura, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B172**, 462 (2003).
- 38) 中村俊夫, 環境考古学マニュアル, 同成社, 301 (2003).
- 39) 光谷拓実, 日本の美術, 6 (No. 421) (2001).
- 40) P. J. Reimer *et al.*, *Radiocarbon*, **46**(3), 1029 (2004).
- 41) 西本豊弘(編), “弥生時代の新年代”, 雄山閣, 143 (2006).
- 42) K. Kigoshi and H. Hasegawa, *J. Geophys. Res.*, **71**, 1065 (1966).
- 43) Sakamoto *et al.*, *Radiocarbon*, **45**, 81 (2003).
- 44) 中村俊夫ほか, 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, XV, 206 (2004).
- 45) H. Ozaki *et al.*, *Radiocarbon*, **49**(2), 473 (2007).
- 46) 宮原ひろ子ほか, 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, XVI, 57 (2005).
- 47) H. Miyahara *et al.*, *J. Geophys. Res.*, **111**, A03103 (2006).
- 48) T. Nakamura *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, **B 259**, 408 (2007).
- 49) 名古屋大学年代測定総合研究センター, 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, IX-XIX (1998-2008).
- 50) M. Bethe, 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, XIX, 12 (2008).