

一般セッション(口頭講演) | CS コードシェアセッション: 【CS.1】 2.3 加速器質量分析・加速器ビーム分析、
7.4 イオンビーム一般のコードシェア

📅 2024年9月18日(水) 13:30 ~ 18:15 📍 D62 (万代島ビル)

[18p-D62-1~17] CS.1 2.3 加速器質量分析・加速器ビーム分析、7.4 イオンビーム一般のコードシェア

瀬木 利夫(京大)、豊田 紀章(兵庫県立大)、松崎 浩之(東大)、盛谷 浩右(兵庫県立大)、笹 公和(筑波大)

13:30 ~ 13:45

[18p-D62-1]

Auナノ粒子を内包するSiO₂フリースタンディング膜の作製と特性評価

○久保田 真歩¹、一宮 正義²、番 貴彦²、柳澤 淳一² (1.滋賀県立大院工、2.滋賀県立大工)

13:45 ~ 14:00

[18p-D62-2]

反応性ガス雰囲気下GCIB照射によるエッチングのガス分圧および基板温度依存性

○(M1C)伊藤 汰一¹、竹内 雅耶¹、豊田 紀章¹ (1.兵庫県立大学工)

◆ 奨励賞エントリー

14:00 ~ 14:15

[18p-D62-3]

中性ガスクラスタービームを用いたCu膜のドライエッチング

○(M1)池田 圭佑¹、田中 秀幸¹、竹内 雅耶¹、豊田 紀章¹ (1.兵庫県立大工)

14:15 ~ 14:30

[18p-D62-4]

X-ray PEEM測定用液体セルに向けたGCIB照射による極薄SiNxメンブレンの応力制御

○竹内 雅耶¹、豊田 亜里紗¹、豊田 紀章¹ (1.兵庫県立大工)

14:30 ~ 14:45

[18p-D62-5]

自立グラフェン膜への水クラスターイオンビーム照射効果

○(M1C)諸葛 亮佑¹、盛谷 浩右¹、持地 広造²、乾 徳夫¹ (1.兵庫大工、2.NPO分析産業人ネット)

◆ 奨励賞エントリー

14:45 ~ 15:00

[18p-D62-6]

CIDにおける有機分子解離メカニズムに関する研究

○(M1)西坂 光貴¹、瀬木 利夫¹、松尾 二郎¹ (1.京大院工)

15:15 ~ 15:30

[18p-D62-7]

THz加速のための狭線幅差周波光源開発

○竹家 啓^{1,2}、Yahia Vincent^{1,2}、石月 秀貴^{2,1}、平等 拓範^{2,1} (1.分子研、2.理研)

15:30 ~ 15:45

[18p-D62-8]

LiF 蒸着フィルムを用いた透過型検出器の検出効率向上

○(M1)仙田 敬¹、藤井 晴也¹、中溝 珠里²、間嶋 拓也²、安田 啓介¹ (1.京府大生命環、2.京大院工)

15:45 ~ 16:00

[18p-D62-9]

JAEA-AMS-TONOにおける加速器質量分析装置に関する研究開発; 2024年秋

○藤田 奈津子¹、神野 智史¹、南谷 史菜¹、三宅 正恭¹、松原 章浩²、前田 祐輔¹、木田 福香¹、小川 由美¹、西尾 智博²、大前 昭臣³、宇野 定則³、渡邊 隆広¹、木村 健二¹、島田 耕史¹ (1.原子力機構、2.ペスコ、3.ビームオペレーション)

16:00 ~ 16:15

[18p-D62-10]

微量放射性炭素測定のための前処理技術の開発

○(P)南谷 史菜¹、藤田 奈津子¹、神野 智史¹、西尾 智博²、渡邊 隆広¹ (1.原子力機構、2.ペスコ)

16:15 ~ 16:30

[18p-D62-11]

都市大タンデムの現状 ～分析用ビームラインの状況～

○羽倉 尚人¹ (1.都市大)

16:30 ~ 16:45

[18p-D62-12]

東京大学MALTの現状 –2024秋–

○山形 武靖¹、徳山 裕憲¹、土屋 陽子¹、戸谷 美和子¹、斉 遠志¹、松崎 浩之¹ (1.東大MALT)

17:00 ~ 17:15

[18p-D62-13]

³⁶Clの加速器質量分析における妨害同重体³⁶Sのイオン源での抑制

○笹 公和^{1,2}、松村 万寿美¹、吉田 哲郎¹、高橋 努¹ (1.筑波大応用加速器、2.筑波大数物)

17:15 ~ 17:30

[18p-D62-14]

ハイマツ試料中放射性炭素濃度の年変動に関する研究VI

○武山 美麗^{1,2}、森谷 透^{1,2}、櫻井 敬久²、宮原 ひろ子³、門叶 冬樹^{1,2} (1.山形大AMSセンター、2.山形大理、3.武蔵美)

17:30 ~ 17:45

[18p-D62-15]

自然環境におけるヨウ素同位体システムの研究3

○松崎 浩之¹、戸谷 美和子¹、斉 遠志¹、山形 武靖¹ (1.東大MALT)

◆ 奨励賞エントリー ◆ 英語発表

17:45 ~ 18:00

[18p-D62-16]

Temporal Changes of Iodine-129 in the Canada Basin Over the Past Decade

○(P)Yuanzhi Qi¹, Takeyasu Yamagata¹, Hiroyuki Matsuzaki¹, Hisao Nagai², Yuichiro Kumamoto³, Qiuyu Yang¹, Xinru Xu¹ (1.The Univ. of Tokyo, 2.Nihon Univ., 3.JAMSTEC)

◆ 奨励賞エントリー ◆ 英語発表

18:00 ~ 18:15

[18p-D62-17]

Vertical distributions of ¹²⁹I and insight of current in the Southern Canada Basin

○(M1)Xinru Xu¹, Yuanzhi Qi¹, Takeyasu Yamagata¹, Hiroyuki Matsuzaki¹, Yuichiro Kumamoto² (1.Univ. of Tokyo, 2.JAMSTEC)

Au ナノ粒子を内包する SiO₂ フリースタンディング膜の作製と特性評価

Fabrication and characterization of free-standing SiO₂ films including Au nanoparticles

滋賀県立大院工¹, 滋賀県立大工², [○]久保田 真歩¹, 一宮 正義², 番 貴彦², 柳澤 淳一²

Grad. Sch. of Univ. of Shiga Pref.¹, Univ. of Shiga Pref.²

[○]Maho Kubota¹, Masayoshi Ichimiya², Takahiko Ban², Junichi Yanagisawa²

E-mail: on23mkubota@ec.usp.ac.jp

[背景と目的] 我々は金-シリコン (Au-Si) 共晶合金イオン源を用いたシリコン酸化膜 (SiO₂) へのイオン照射と大気中での熱処理により, SiO₂ 内部に埋め込まれた金 (Au) ナノ粒子を形成するプロセスを提案した. これまでは主にシリコン (Si) 基板上に形成された酸化膜を用い, 光反射スペクトル測定により Au ナノ粒子形成の評価を行ってきたが, この薄膜をフリースタンディング化することで光透過スペクトルの測定が可能となり, 応用への幅の広がりが期待できることから, 本研究では Au ナノ粒子を内包する SiO₂ 薄膜のフリースタンディング化を試みた.

[実験と結果] 100 nm の熱酸化膜が形成された両面研磨の Si (100) ウェハから切り出した試料に加速電圧 6 kV での Au-Si イオン源を用いたイオン照射と, 大気中での 1000 °C, 45 分間の熱処理とを行った. 熱処理前後で X 線回折測定と光反射スペクトルの測定 (Fig. 2.) を行い, Au ナノ粒子の形成を確認した. その後, 試料裏面にフォトリソグラフィにより直径約 3 mm の穴のあいた Al マスクを形成し, SF₆ ガスを用いたプラズマエッチングと KOH 水溶液によるウェットエッチングにより Si 基板のエッチングを行い, Au ナノ粒子を内包した SiO₂ 薄膜のフリースタンディング化を試みた. Fig.1.に透過光で撮影した試料の写真を示す. 一部に膜の破壊が見られるが, この試料膜に対して測定した反射または透過スペクトルを Fig. 3.に示す. エッチング前後の試料の反射スペクトルに大きな差が見られないことから, イオン照射面へのエッチングの影響はなかったことがわかる. 一方, エッチング後の透過スペクトルでは, Au ナノ粒子による表面プラズモン吸収を示すスペクトルのディップ位置に変化が見られた. これは, 基板裏面からの Si のエッチングで SiO₂ 膜をフリースタンドにする際に, Si だけでなく SiO₂ 膜も部分的にエッチングされることで Au ナノ粒子も除去され, 膜内部の Au ナノ粒子のサイズ分布に影響が出たためと推察される.

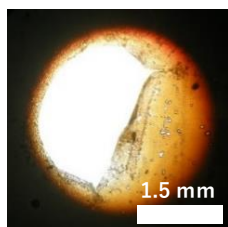


Fig. 1. Photo of free-standing SiO₂ film.

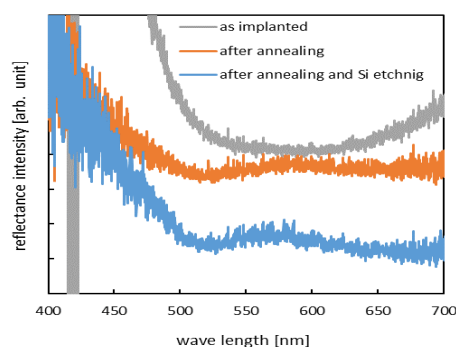


Fig. 2. Reflectance spectra of SiO₂ films on Si.

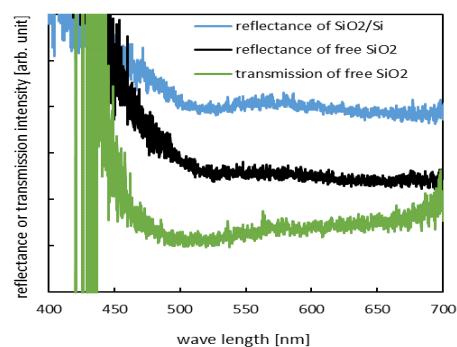


Fig. 3. Reflectance or transmission spectra of SiO₂ films.

反応性ガス雰囲気下 GCIB 照射によるエッチングのガス分圧および基板温度依存性

Dependence of Reactive Gas Partial Pressure and Substrate Temperature on Etching by GCIB Irradiation under a Reactive Gas Atmosphere



兵庫県立大学工 〇(M1C)伊藤汰一,竹内雅耶,豊田紀章

Graduate School of Engineering, University of Hyogo,

〇Taichi Ito, Masaya Takeuchi, Noriaki Toyoda.

E-mail: ei24t004@guh.u-hyogo.ac.jp

我々の研究グループでは、反応性エッチングにおける新たな表面反応励起源として、ガスクラスタイオンビーム(GCIB)を検討してきた。これまで本研究室では、室温で反応性ガス雰囲気下での GCIB 照射による低損傷、高アスペクト比、高い選択比でのエッチングを検討してきた[1]。さらに基板を冷却することによって反応性ガスの吸着量が増加し、より高効率のエッチングが期待される。一方、反応性ガスを導入することにより GCIB と残留ガスとの衝突が増加し、GCIB のエネルギー損失が生じるため、エッチング効果が低減する可能性がある。したがって最適な反応性ガス分圧と基板温度を決める必要がある。そこで、本研究では金属膜のエッチング量の反応性ガス分圧と基板温度依存性について検討を行った。

本研究では、Fig.1 に示す低温での GCIB 照射が可能な装置を用いた。試料には Si 基板上に成膜した膜厚 500Å の Co 膜を使用し、反応性ガスとして酢酸分子を用いた。この Co 膜に対し、O₂-GCIB を加速電圧 5kV、イオン照射量 5×10^{15} ions/cm² で照射し、酢酸分圧を $2 \times 10^{-5} \sim 2.5 \times 10^{-4}$ Torr まで変化させるとともに、基板温度を -60 から 25℃まで変化させ、エッチング量を測定した。その結果を Fig.2 に示す。Fig.2 より、基板温度 -60℃では、反応性ガス分圧が増加することによって、エッチング量が低下する。これは、残留ガスが増加することで GCIB のエネルギーが低下したためと考えられる。また、基板を冷却することによって同じ分圧であっても、エッチング量が増大することを確認した。反応性ガス分圧を低くして GCIB との衝突を減らしつつ、基板冷却によって反応性分子の吸着を促進することにより、エッチング量を増大させることが可能であることが分かった。講演では他の材料でのエッチング効果や、XPS や AFM を用いた表面状態についても報告する予定である。

※本研究はキオクシア（株）奨励研究の助成を受けたものです。

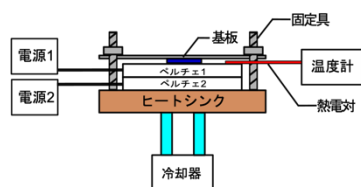


Fig.1 Overview of low-temperature GCIB irradiation equipment

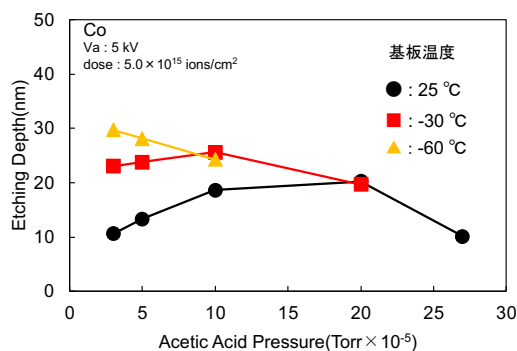


Fig.2 Partial pressure dependence of etching depth of Co film

[1]豊田紀章,応用物理,90,239-243(2021)



中性ガスクラスタービームを用いた Cu 膜のドライエッチング

Dry Etching of Cu films by neutral cluster beam

兵庫県立大学工[○](M1C)池田圭佑, 田中秀幸, 竹内雅耶, 豊田紀章

Univ. of Hyogo, Keisuke Ikeda, Hideaki Tanaka, Masaya Takeuchi, Noriaki Toyoda

E-mail: ei24a003@guh.u-hyogo.ac.jp

近年の半導体製造において、高精度かつ均一性の優れたエッチング手法として原子層エッチング(Atomic Layer Etching, ALE)が注目されている。本研究室では、通常 ALE で使用されるプラズマの代わりに GCIB(Gas Cluster Ion Beam)を用い、低エネルギーかつ低温での表面反応促進効果を活用し、ハロゲンフリーで ALE を実現できることを報告してきた[1]。しかし GCIB は高電圧かつ多くの真空ポンプが必要であり、また比較的低スループットなどの問題がある。

そこで、我々は中性ガスクラスタービーム GCB(Gas Cluster Beam)を用いた反応性エッチングを検討している。これまで、酸素 GCB による表面酸化と溶液による除去を繰り返すことにより擬似的な ALE が可能なことを示してきた[2]。本研究では溶液を用いず、GCB 照射と気相中での反応性分子供給によるエッチングについて検討を行った。

図 1 に GCB を用いたエッチングの概要を示す。ノズル中に高圧の酸素ガスを導入し、真空中に噴出させることにより中性クラスタービームを形成する。チャンバー内には反応性ガスを供給することの出来るラインが設けられており、反応性ガス分圧を調整しながら表面吸着させる。さらに、VUV 光源も設置されており、表面反応を促進させることが可能である。図 2 に、酢酸雰囲気と O_2 -GCB 照射による Cu 薄膜のエッチング量の基板温度依存性を示す。GCB が直接照射されている軸上照射部分では基板温度上昇とともにエッチング量が増大するが、残留ガスの曝露のみである軸外照射部分ではエッチングが観測できなかった。このことから、中性ガスクラスターに非常に強い指向性が有り、モノマーに比べて大きなエネルギーを与えることにより表面反応を促進していると考えられる。

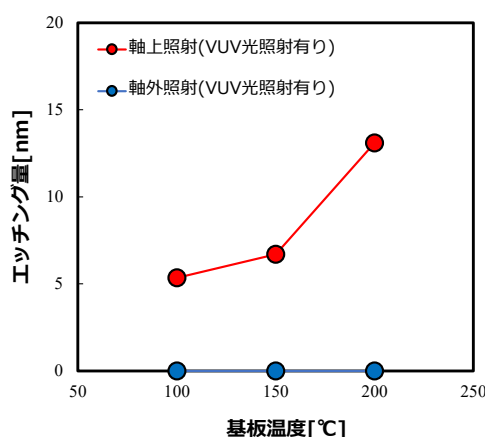
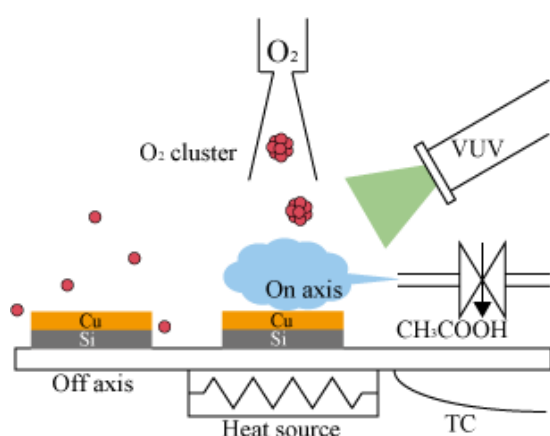


図 1 Cu 薄膜の GCB によるエッチングの模式図

図 2 Cu 薄膜のエッチング量の温度依存性

[1]N.Toyoda et.al., J. Phys. D : Appl. Phys. 50, 184003 (2017).

[2]池田圭佑, et. al., 応用物理学会 2024 年春季講演会 24p-12B-13

X-ray PEEM 測定用液体セルに向けた GCIB 照射による極薄 SiNx メンブレンの応力制御 Stress control of ultrathin SiNx membrane by GCIB irradiation for PEEM measurement liquid cell

兵庫県大工¹, ○竹内雅耶¹, 豊田亜里紗¹, 豊田紀章¹

Grad. school of Eng., Univ. of Hyogo¹, ○Masaya Takeuchi¹, Arisa Toyota¹, Noriaki Toyoda¹

E-mail: m_takeuchi@eng.u-hyogo.ac.jp

【序論】 近年、燃料電池は脱炭素社会実現のキーデバイスとして注目されている、大量の水素を発生するシステムが必要となる。水素はアルカリ性電解液を電気分解することで発生できるが、このとき発生した水素バブルがアノード電極に付着し、その生成効率が大幅に低下する¹。我々は、この水素バブル発生メカニズム解明のため、X線光電子顕微鏡 (X-ray PEEM) を用いた電極-バブル界面の測定を検討している。その測定は真空中で行われるため、液体は Fig. 1 に示す TEM window chip を用いた“液体セル”に封止される。この SiNx メンブレン (光電子透過窓) は、Si 基板上に SiNx 膜を形成しその後バックエッチングすることにより作製されるが、SiNx 膜成膜時に発生した残留応力によりその形状は湾曲する。このことは PEEM イメージの歪曲を引き起こす。一般的に薄膜の応力制御には単一分子のイオンビームが用いられるが、1 気圧以上の耐圧性を必要とするシングルナノオーダーの極薄 SiNx メンブレンに照射損傷が入り、その耐圧性は損なわれる。そこで本研究では、低損傷照射効果を示すガスクラスターイオンビーム (GCIB) を用いた SiNx メンブレンの応力制御を検討する。

【実験・結果】 TEM window chip (SiMPore, Inc.) の表面形状は、光干渉計 (Zygo New view 6300) で行われた。この時の SiNx メンブレンの膜厚は 11-12 nm、面積は 25 μm 角である。Fig. 2(a) はオリジナルの SiNx メンブレンの高さ分布を示している。メンブレン領域の中心部でその高さは、SiNx/Si 領域に比べて、約 60 nm 高くなっていることが分かる。これは SiNx 成膜時に生じた残留応力に起因する。我々は、このメンブレンに Ar-GCIB (kinetic energy; 5 keV, dose; 2×10^{13} ions/cm²) を照射した。その高さ分布を Fig. 2(b) に示す。メンブレン全体が、未照射 SiNx/Si に比べて、30 nm 程度の高さが低下していることを確認した。先行研究では、SiNx 膜への Ar plasma 照射により、Si-N 結合の切断が生じ酸化層が形成されることが報告されている²。また、SiNx 膜へ酸素プラズマを照射することにより、圧縮応力がかかることも報告されている³。上記より、Ar-GCIB 照射により SiNx メンブレンの酸化層が形成され、それによる圧縮応力の発生によりメンブレンの高さが変化したと考えられる。講演では、そのメカニズムの詳細について議論する。

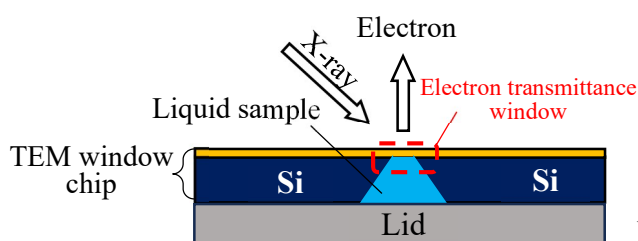


Fig. 1 Schematic of liquid cell

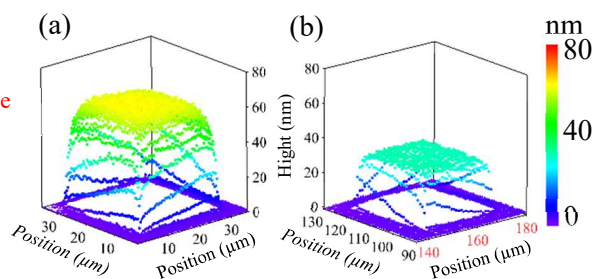


Fig. 2 Three-dimensional image of (a) pristine and (b) Ar-GCIB irradiated SiNx membrane

【謝辞】 本研究は JSPS 科研費 23K13236 の助成を受けたものです。

[1] H. Ikeda, R. Misumi, Y. Nishiki, Y. Kuroda, S. Mitsushima, *Electrochimica Acta*, **430**, 141053, 2022.

[2] T. Hamano and K. Eriguchi, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **57**, 06JD02, 2018.

[3] N. Luhmann et. al., *Appl. Phys., Lett.*, **111**, 063193, 2017.



自立グラフェン膜への水クラスターイオンビーム照射効果 Effects of water cluster ion beam irradiation on free-standing graphene

兵庫県大工¹, NPO 分析産業人ネット², ^{○(MCI)} 諸葛 亮佑¹, 盛谷浩右¹, 持地広造², 乾徳夫¹

Univ. of Hyogo¹, PAI-NET², ^{○(MCI)} Ryosuke Shokatsu¹, Kosuke Moritani¹, Kozo Mochiji², Norio Inui¹

E-mail: ej24b017@guh.u-hyogo.ac.jp

1. 背景

グラフェンは2次元(2D)結晶構造を持ち、高い強度、高い透過率、熱伝導性、電子移動度を持つことから、より薄く、より高速な電子デバイスを実現するための理想的な材料と考えられている。しかし、理想的な構造的・機能的性能を実現するためには、表面の清浄化と機械的頑強性が必要となるが、溶剤洗浄ではすべての汚染物質を除去することはできず、加熱による脱離は熱変形を引き起こす可能性がある。クラスターイオンビームは、グラフェンのような超薄膜サンプルを室温において非破壊でクリーニングできる可能性がある。われわれはこれまでに、Ar クラスターイオンビームを用いて銅基板上のグラフェン膜をクリーニングし、後方散乱 Ar クラスターの解離比からそれをプロービングする方法を提案してきた[1]。1原子当たり数 eV ($E/n < 5\text{eV}$) の運動エネルギーで固体に衝突した Ar_n^+ は、衝撃により Ar_2^+ や Ar_3^+ などの小さなクラスターイオンとなって後方散乱する。このとき、解離比が固体の機械的特性に依存するため、解離比の変化から表面状態の変化をプローブすることができる。この手法を用いれば、巨大クラスターイオンビームを用いて、グラフェンのような超薄膜サンプルの表面状態をモニターしながら室温で非破壊クリーニングできる可能性がある。本研究では、水クラスターイオンビームを銅グリッド上に成膜した自立グラフェン膜に照射し、飛行時間型二次イオン質量分析法 (ToF-SIMS) を用いて、ビーム照射下における自立グラフェンの破壊特性を実験的に観察した。

2. 実験

ToF-SIMS 測定は J105 (Ionoptika Ltd, UK) を用いて行った。 $n=20\text{K}$ と 31K の水クラスター(H_2O) $_n^+$ を 70keV で加速させ、銅の TEM グリッドに支持された自立グラフェンに照射した。照射した各クラスターの E/n は、 $n=31\text{K}$ で 2.26eV 、 $n=20\text{K}$ で 3.50eV である。

3. 結果・考察

図(a),(b)は(H_2O) $_{31\text{K}}^+$ 、(c),(d)は(H_2O) $_{20\text{K}}^+$ クラスター照射時の二次イオン画像である。両 E/n において、イオン量 1.2×10^{13} (ions/cm²) でグラフェンの残存が確認された。一方、イオン量 2.4×10^{13} (ions/cm²) では、(H_2O) $_{20\text{K}}^+$ ビーム照射下ではグリッドのみが観察され、グラフェンが破壊されたことが示された。しかし、(H_2O) $_{31\text{K}}^+$ ビーム照射下ではグラフェンに変化は見られなかった。この結果は、水クラスター衝突による自立グラフェン破壊の閾値エネルギーは $2.26 \sim 3.50\text{eV}$ にあることを示唆している。

4. 謝辞

SIMS 測定を実施して頂いた IONOPTIKA 株式会社の佐野奈緒子博士に感謝申し上げます。

5. 参考文献

[1] K. Moritani, S. Houzumi, K. Takeshima, N. Toyoda, K. Mochiji, J Phys Chem C 112 (2008) 11357–1136

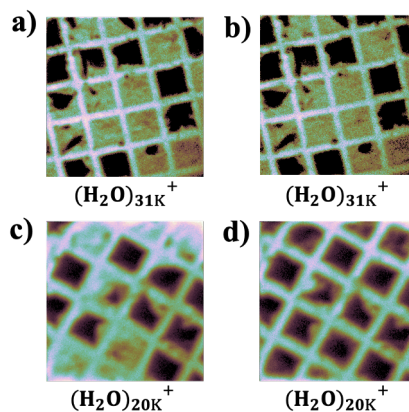


Fig. Secondary ion image of free-standing graphene supported on a copper grid during (H_2O) $_n^+$ cluster ion irradiation at 70kV with $n=31\text{K}$ for (a) and (b), $n=20\text{K}$ for (c) and (d). Ion fluence is 1.2×10^{13} ions/cm² for (a) and (c), 2.4×10^{13} ions/cm² for (b) and (d).

CID における有機分子解離メカニズムに関する研究

The Study of the Fragmentation Mechanism of Organic High Mass Molecules in CID

京大院工, [○] (M1) 西坂 光貴, 瀬木利夫, 松尾二郎

Graduate School of Engineering, Kyoto Univ., [○]Koki Nishisaka, Toshio Seki, Jiro Matsuo

E-mail: nishisaka.koki.35x@st.kyoto-u.ac.jp

タンデム質量分析法 (MS/MS) は、試料分子イオンから特定の質量電荷比 m/z をもつ前駆イオンを質量分離し、これを解離させて生成したプロダクトイオンの m/z スペクトルを得る手法である。前駆イオンの解離法としては、イオンに速度を与えて不活性ガスと衝突させる衝突誘起解離 (Collision-Induced Dissociation; CID) が最も主流である。MS/MS は構造異性体を多くもつ有機分子の構造決定などによく用いられるが、その際に CID におけるイオン解離過程が測定結果に影響する。検出されるプロダクトイオンの種類や収量は前駆イオンの物性や不活性ガスとの衝突エネルギーによって大きく変化するため、CID でのイオン解離メカニズムの解明が、MS/MS を利用した物質同定の精度向上のために必要である。

本研究で使用した MS/MS 分析装置の概要を示す (Fig. 1)。試料に照射する Ar ガスクラスターイオンビームは、スパッタされる分子イオンの解離を抑制する効果をもつ。質量分析計としては、四重極 (Q) による質量分離と飛行時間型質量分析計 (TOF) によるスペクル取得を組み合わせた QTOF-MS を用いた。前駆イオンには Q を通過した直後に加速電圧 E をかけ、衝突室内の Ar ガスと衝突させた。分析試料には有機分子の中でも構造が単純な脂肪酸であり、不飽和度がそれぞれ 0 と 1 であるステアリン酸 $C_{18}H_{36}O_2$ とオレイン酸 $C_{18}H_{34}O_2$ を選んだ。これらとトリフルオロ酢酸セシウム CsTFA を混合した試料を MS 測定すると、それぞれの脂肪酸から H^+ が 1 個脱離し Cs^+ が 2 個付加した $[M - H + 2Cs]^+$ が検出された。これを前駆イオンとし、CID 衝突エネルギー E を変化させながら MS/MS 測定を行った。

$E = 50\text{eV}$ における測定結果を Fig. 2 に示す。ステアリン酸のスペクトルは、 E の値を上げても $[M - H + 2Cs]^+$ と Cs^+ のピークしか示さなかった。これは、前駆イオンから Cs 原子単体が Cs^+ として脱離することで、ほぼ全てのイオンが正電荷を失い検出不可能となったことを示している。一方でオレイン酸のスペクトルからは、 $E = 30, 40, 50\text{eV}$ において $m/z = 50 \sim 150$ の炭化水素イオンによるピークが複数確認された。これは、オレイン酸が Cs 原子を含まないフラグメントイオンを生成することができ、その解離過程は炭素間二重結合によって促進されていることを示唆している。

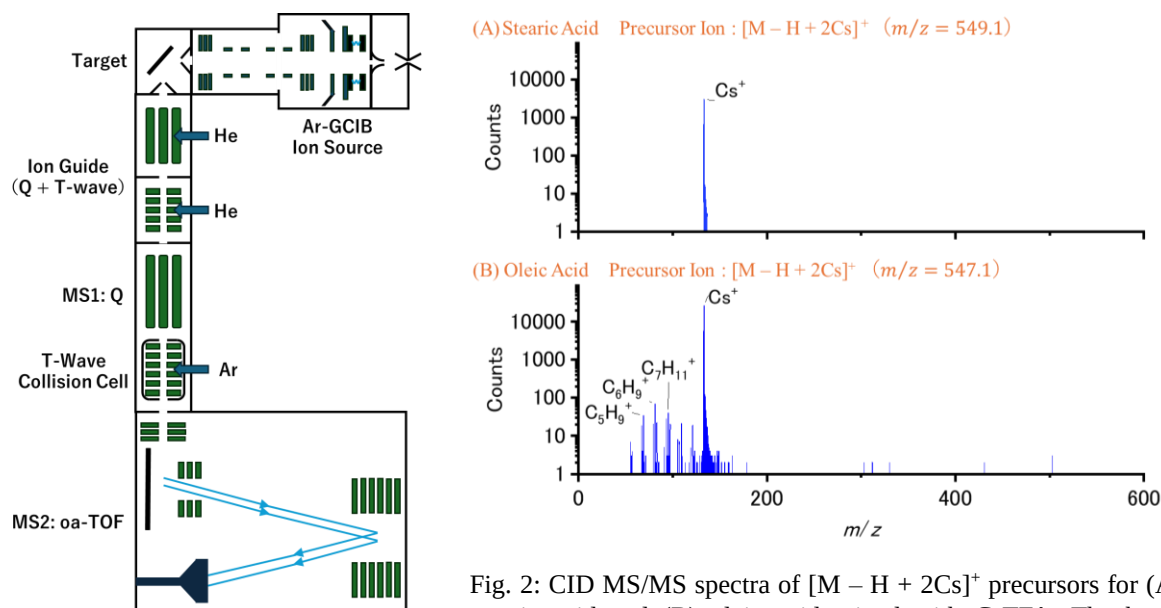


Fig. 1: Gas cluster SIMS system combined with a QTOF-MS

Fig. 2: CID MS/MS spectra of $[M - H + 2Cs]^+$ precursors for (A) stearic acid and (B) oleic acid mixed with CsTFA. The beam current, measurement time and collision energy in CID are 150pA, 50s and 50eV, respectively.

THz 加速のための狭線幅差周波光源開発

Narrowband differential frequency light source for THz acceleration

○竹家 啓^{1,2}, Vincent Yahia^{1,2} 石月 秀貴^{2,1}, 平等 拓範^{2,1}IMS¹, RIKEN², ○Kei Takeya^{1,2}, Vincent Yahia^{1,2}, Hideki Ishizuki^{2,1}, Takunori Taira^{2,1}

E-mail: takeya@ims.ac.jp

近年、テラヘルツ(THz)波の発生強度が増加し、高エネルギー物理での利用可能性が注目されている[1]。そのためには波長 1.5mm かつ mJ 以上、<GHz の狭線幅の THz 波が求められるため、高強度の THz 波発生技術が必須となる。差周波波長変換 (DFG) はそのような THz 波を発生させる有望な手法であるが、狭線幅の高強度二波長光の発生とデバイスの耐久性が課題である。そこで我々は解決策として、縮退条件下でシングル波長光を生成する縮退型光パラメトリックシステム (OPO) と Volume Bragg Grating (VBG) を使用した光学系で狭線幅二波長光の発生と増幅を試みた[2]。

Nd:YAG Micro MOPA
をポンプ光源とし、
PPMgLN、40% 反射の
共振器ミラー、反射型
Volume Bragg Grating
(VBG)、温度コントロー
ラーを含むコンパクト

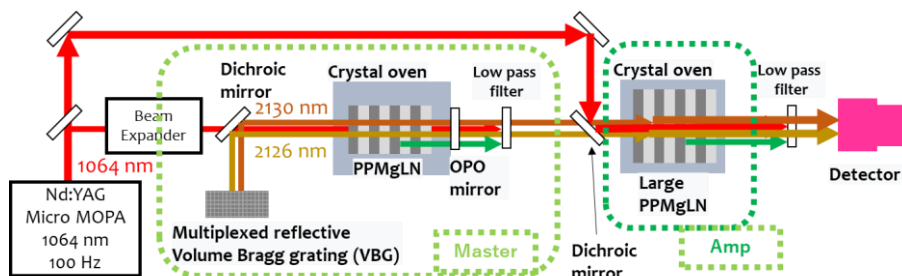


図 1. PPLN, OPO+VBG による差周波光源作成の光学系

な OPO を構築した (図 1)。VBG は反射型で 99% 以上の回折効率で、2126nm と 2130nm の二波長光を取り出すことが出来る。その二波長光を、増幅用の PPMgLN を用いて出力の増幅を行った。

PPMgLN 動作の最適温度を調べたのち、OPO 光学系による波長変換後の光をスペアナで観測したところ二波長光の発生が観測された。この時のスペクトル幅は約 0.5nm、両波長の強度は約 2mJ であった。このことは、PPLN1 個と VBG から構成されるシンプルな増幅系において波長変換に利用可能な二波長光の取り出しが出来ることを示唆している。この二波長光を用いて THz 発生実験を行ったところ、検出器においてテラヘルツ波が検出された。さらに、PPMgLN による二波長光の増幅を行ったところ、1064nm 励起光の強度 (～12mJ) に応じて二波長光の増幅が 3 mJ まで観測された (図 2)。この結果は本手法がパワースケーリング可能な技術であることを示しており、今後の高強度 THz 光源の励起光として有望であることを示している。

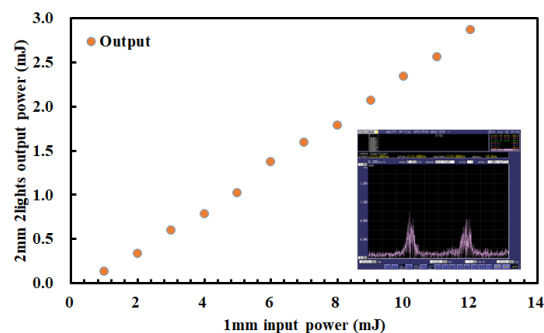


図 2. 二波長光の入出力特性。挿入図はスペクトラムアナライザからの信号

本研究の一部は、安全保障技術研究推進制度 JPJ004596、の支援を受けたものです。

[1] S. W. Jolly, N. H. Matlis, F. Ahr, H. Ishizuki, T. Taira, et al. *Nat Commun.* 10, 2591 (2019).

[2] K. Takeya, V. Yahia, H. Ishizuki, T. Taira, TILA-LIC1-03, OPIC TILA-LIC2024 (2024)

LiF 蒸着フィルムを用いた透過型検出器の検出効率向上

Improvement of detection efficiency for transmission detector using LiF-coating foil

京府大生命環¹, 京大院工^{2, °}(M1)仙田 敬¹, (M2)藤井 晴也¹,
(M2)中溝 珠里², 間嶋 拓也², 安田 啓介¹

Kyoto Prefectural Univ.¹, Kyoto Univ.^{2, °} Haruya Fujii¹, Satoshi Senda¹,
Shuri Nakamizo², Takuya Majima², Keisuke Yasuda¹

E-mail: s824632012@kpu.ac.jp

全固体リチウムイオン二次電池 (ASSLB) は次世代の二次電池として大きな期待を受けている。電池の性能向上には、電圧印加時のイオンの詳しい挙動の理解が重要である。そこで我々は、ASSLB 内部のリチウムや他の元素の挙動を調べることを目的として飛行時間測定弾性反跳粒子検出 (TOF-ERDA) 測定装置の開発を行っている。TOF-ERDA 装置は 2 つの透過型検出器 (T1, T2)、1 台のシリコン半導体検出器 (SSD) で構成され、T1 と T2 で飛行時間、SSD でエネルギーを測定する。透過型検出器は炭素フィルム、マイクロチャネルプレート (MCP) 検出器、静電ミラーで構成されている。粒子がフィルムを通過する際に発生する二次電子を静電ミラーで偏向し、MCP 検出器で検出する。透過型検出器の検出効率は水素やリチウムなどの軽元素では 20%~60%程度と低くなっている。これまでの研究から、検出効率は炭素フィルム表面に絶縁物の薄膜を蒸着することにより向上することが知られている。本発表では、透過型検出器 T1 に用いる炭素フィルムにフッ化リチウム (LiF) を蒸着した際の水素の検出効率の向上について報告する。

測定で得られた水素の検出効率を Fig. 1 に示す。従来の測定で用いた厚さが $3.0 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の炭素フィルムを使用した場合の検出効率は水素のエネルギーが 0.7 MeV から 2.0 MeV の範囲で 10 % から 24 % であった。T1 に用いるフィルムを厚さが $3.0 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の炭素フィルムに厚さが $1.0 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ の LiF を蒸着したものに変更したところ、検出効率は平均で 1.8 倍向上した。この検出効率の向上の原因

として、フィルムに LiF を蒸着した影響と、蒸着によって膜厚が厚くなった影響が考えられる。本発表では厚さの影響を取り除いた LiF 蒸着の効果についても報告する予定である。

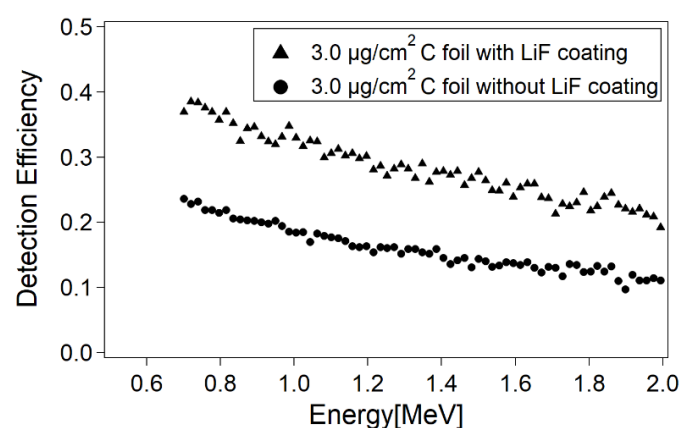


Fig.1 The detection efficiency for hydrogen.

**JAEA-AMS-TONO における
加速器質量分析装置に関する研究開発; 2024 年秋
Research and Development for Accelerator Mass Spectrometer
at JAEA-AMS-TONO; 2024**

日本原子力研究開発機構¹, 株式会社ベスコ², ビームオペレーション株式会社³,
○藤田奈津子¹, 神野智史¹, 南谷史菜¹, 三宅正恭¹, 松原章浩², 前田祐輔¹, 木田福香¹,
小川由美¹, 西尾智博², 大前昭臣³, 宇野定則³, 渡邊隆広¹, 木村健二¹, 島田耕史¹,
Japan Atomic Energy Agency (JAEA)¹, PESCO Co., Ltd.², Beam Operation Co., Ltd.³,
°Natsuko Fujita¹, Satoshi Jinno¹, Fumina Minamitani¹, Masayasu Miyake¹, Akihiro Matsubara²,
Fukuka Kida¹, Yusuke Maeta¹, Yumi Ogawa¹, Tomohiro Nishio², Akiomi Ohmae³, Sadanori Uno³,
Takahiro Watanabe¹, Kenji Kimura¹, Koji Shimada¹
E-mail: fujita.natsuko@jaea.go.jp

日本原子力研究開発機構東濃地科学センター土岐地球年代学研究所では、地質環境の長期安定性に関する研究における技術開発において、加速器質量分析装置 (Accelerator Mass Spectrometer : AMS) を用いた年代測定を実施している。AMS は希少放射性核種を対象とした超微量同位体比測定が可能な装置であり、当センターにおいても地質試料や地下水試料、考古学試料等の年代測定に取り組んでいる。現在当センターには AMS が 3 台あり、うち 2 台は年代測定の実試料測定用であり、もう 1 台が超小型 AMS の開発に向けた試験装置である。

実試料測定用の 2 台の AMS は JAEA-AMS-TONO-5MV (NEC 製 15SDH-2, 最大加速電圧 5.0 MV) と JAEA-AMS-TONO-300kV (HVE 製 4103Bo-AMS, 最大加速電圧 300 kV) であり、2 台とも、炭素-14 (¹⁴C), ベリリウム-10, アルミニウム-26, ヨウ素-129 の 4 核種を測定している。また 5MV の AMS ではこれら 4 核種のルーチン測定に加えて、地下水の年代測定に有用な塩素-36 の測定に向けた技術開発も実施している。具体的には妨害核種の硫黄の除去工程の検討をしており、前処理での除去と反応セルを用いた物理的な除去、検出器やビーム調整での除去を検討している。JAEA-AMS-TONO-300kV では 4 核種のルーチン測定に加えて、炭素試料のガスイオン源化の検討も開始した。超小型 AMS の開発に向けた試験装置 (最大引出電圧 40 kV, タンデム加速はなし) は ¹⁴C 測定用であり、イオンチャネリングを利用した AMS の同質量分子の新しい分別方法を実証するための装置である[1]。これまで ¹⁴C 測定実用化のための実証試験に向け、イオンチャネリングをさせる固体結晶に塩化カリウムを使用し、検出部において質量 14 の電流を計測した。今後も ¹⁴C のみの検出に向けて研究開発を行っていく予定である。発表では、それぞれの研究開発状況を報告する。

[1] 藤田 他, 第 70 回応用物理学会春季学術講演会 シンポジウム, (2023) 17a-A304-5.

微量放射性炭素測定のための前処理技術の開発

Development of a small-scale sample pretreatment system for AMS radiocarbon dating

日本原子力研究開発機構¹, 株式会社ペスコ²

○(P) 南谷 史菜¹, 藤田 奈津子¹, 神野 智史¹, 西尾 智博², 渡邊 隆広¹

Japan Atomic Energy Agency (JAEA)¹, PESCO Co., Ltd.²

°Fumina Minamitani¹, Natsuko Fujita¹, Satoshi Jinno¹, Tomohiro Nishio², Takahiro Watanabe¹,

E-mail: minamitani.fumina@jaea.go.jp

加速器質量分析法 (AMS) による放射性炭素測定では、近年、測定試料量の微量化と迅速分析に関心が集まり、レーザーアブレーション法による局所領域からの試料分取技術や微量試料の効率的な測定に必要となるガスイオン源 AMS の技術改良が進められている。これらの技術開発によって樹木やサンゴの年輪試料から 100 マイクロメートル以下のスケールかつ 1 年単位での高時空間解像度分析が促進され、これまで困難であった微小試料のデータを報告できるようになってきた。とくに、炭素量で数十マイクログラムの微量試料で放射性炭素測定を行うためには、試料前処理における収率の改善と AMS に必要な測定ターゲット (グラファイトや鉄炭化物であるセメントタイト) の均質化が重要である。また、従来法であるグラファイト調製では 1 週間程度の作業時間が必要となり、時間的コストの発生や前処理作業時の炭素汚染が問題となっていた。

そこで日本原子力研究開発機構東濃地科学センター土岐地球年代学研究所では、レーザーアブレーションを用いたセル内完結型の前処理技術の開発およびセメントタイトによる微量試料調製法に着手した。レーザーアブレーションによる前処理では、サンプルセル内で試料を燃焼させるため炭素汚染の影響を軽減できるだけでなく、分析時間の短縮が期待される。試料から生成した二酸化炭素は、新規に当センターで構築予定のガスイオン源 AMS での測定を計画している。微量試料調製法では、新たにセメントタイトに最適な反応容器と反応炉、還元鉄 (鉄粉の種類や量、還元条件) を検討し、炭素量 100 マイクログラム以下での測定を予定している。2016 年以降に当センターで運用中の自動グラファイト調製装置 (IonPlus 社製 AGE3) による試料前処理法と比較し、本手法の性能評価を進める予定である。本発表では、これらの試料前処理システムの概要と成果を報告する。

都市大タンデムの現状 ～分析用ビームラインの状況～

Present states of TCU-Tandem - Current Status of Analytical Beamline -

都市大 °羽倉尚人

TCU °Naoto Hagura

E-mail: nhagura@tcu.ac.jp

東京都市大学・原子力研究所では、2018年5月から1.7MVペレトロン・タンデム加速器（都市大タンデム）^[1]を運用している。研究用原子炉「武蔵工大炉」が廃止措置段階に入ったため新たな教育・研究のための設備として導入された。荷電粒子線励起X線分光（EDS-PIXE）分析実験をスタートさせ、武蔵工大炉建屋のコンクリート^[2]や使用済燃料再処理プロセスにおけるマイナーアクチニド（MA）の回収に用いられる吸着剤^[3]、そのほか環境試料を主な分析対象としている。2021年からは学内の他学科の研究室との共同利用も開始しユーザーの拡大に向けた第一歩を踏み出している^[4]。本学や他大学の学部学生や大学院生を対象とした実験実習科目の一テーマとして教育利用を進めている。本報告では、当施設のタンデム加速器の主に分析用ビームラインの状況を報告する。

- [1] 羽倉尚人 ほか、日本原子力学会和文論文誌、Vol. 17、No. 3/4、pp. 111-117 (2018).
- [2] N. Hagura, et al., International Journal of PIXE, Vol. 28, Nos. 3 & 4, 77-84 (2018).
- [3] S. Watanabe, et al., Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B 477, 60-65 (2020).
- [4] 小森あかね ほか、放電学会年次大会、2021/12、B-2

東京大学 MALT の現状 - 2024 年秋 -**Current status of MALT, The University of Tokyo in the Fall 2024****東京大学¹ [○]山形武靖¹, 徳山裕憲¹, 土屋陽子¹, 戸谷美和子¹, Yuanzhi Qi¹, 松崎浩之¹****The Univ. of Tokyo¹, [○]Takeyasu Yamagata¹, Hironori Tokuyama¹,****Yoko sunohara Tsuchiya¹, Miwako Toya¹, Yuanzhi Qi¹ and Hiroyuki Matsuzaki¹****E-mail: yamagata@um.u-tokyo.ac.jp**

東京大学総合研究博物館タンデム加速器施設 MALT (Micro analysis laboratory, Tandem accelerator, The University of Tokyo)は米国 NEC 社製ペレトロン 5UD 加速器 (最大加速電圧 5MV) を運用しており、学内外を問わず研究・教育活動のための施設として用いられている。例年加速器運転時間のおよそ 3 分の 2 が加速器質量分析 (Accelerator mass spectrometry: AMS) マシンタイムに充てられている。AMS マシンタイムの他は NRA(Nuclear Reaction Analysis), ERDA (Elastic Recoil Detection Analysis)を行なっている。現在ルーチン測定として AMS を行なっている核種は ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl と ^{129}I であり、 ^{41}Ca と ^{236}U の開発を行なっている。

2024 年度前期は共同利用として ^{10}Be -AMS (^{26}Al -AMS 2 課題を含む)が 15 課題、 ^{129}I -AMS が 4 課題、 ^{14}C -AMS と ^{36}Cl -MS が 1 課題と NRA が 5 課題、ERDA と PIXE がそれぞれ 1 課題、p-NRA とビーム利用が 2 課題の合計 29 課題が採択された。今期 ^{41}Ca -AMS の共同利用は申請されていないが、今後も性能向上の開発実験等を行っていく。

2023 年 2 月からインダクターからペレットチェーンに放電し、加速器が止まるトラブルが発生した。原因は 2 本あるチェーンを回すプーリーの片側に装着しているコンタクトバンドのはじがめくれ、インダクターと放電することとわかり、2024 年 4 月のメンテナンスで新品に交換したところトラブルは起きなくなった。10 月にメンテナンス停電があり、復旧の際に 2021 年末に起きたトラブルと同様の AMS 測定用の CAMAC モジュール ADC の故障が起きた。前回は中古品の購入等で修理が出来たが、今回は代替品が手に入る予定がなかったため、内部 IC を交換しテストした結果、復帰できた。2021 年末のトラブル時から出ていた ADC スペクトルのチャンネル飛び減少も無くなった。2024 年 5 月にビーム収束ができなくなるトラブルに見舞われた。ビームラインを解放しチェックすると入射系のアインツェルレンズに金属フレークが付着していた。おそらく MALT 特有の縦側ビームラインにおいて入射電磁石に析出した析出金属が落下してきたためと考えられる。その直後にイオン源でカソードが導通して測定ができなくなるトラブルが発生した。カソードディスクを保持するロッドの碍子にセシウムが付着し導通したと思われるため、アライメントを損ねない程度できる限りイオン源を分解し清掃した。トラブル続きでマシンタイムが逼迫しているが、ユーザーの希望するマシンタイムは確保し運営を行えている。本講演では 2024 年度の運営の現状と新規応用研究について報告する。

^{36}Cl の加速器質量分析における妨害同重体 ^{36}S のイオン源での抑制

Suppression of interfering isobaric ^{36}S in ^{36}Cl AMS at the ion source

筑波大 CRiES¹, 筑波大数物² ○笹 公和^{1,2}, 松村万寿美¹, 吉田哲郎¹, 高橋 努¹

CRiES, Univ. Tsukuba¹, Pure Appl. Sci., Univ. Tsukuba², ○Kimikazu Sasa^{1,2}, Masumi Matsumura¹,

Tetsuro Yoshida¹, Tsutomu Takahashi¹

E-mail: ksasa@tac.tsukuba.ac.jp

筑波大学 6 MV タンデム加速器質量分析装置では、宇宙線生成あるいは人為起源の極微量放射性核種の高感度検出について技術開発を進めている。高エネルギーに加速することで多核種の粒子識別に対応できるようになっており、これまでに ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{129}I の 6 核種について同位体比 $10^{-10}\sim 10^{-15}$ レベルでの検出が可能となっている^[1]。

^{36}Cl (半減期 30.1 万年)の加速器質量分析では、 AgCl から引き出した Cl^- を加速電圧 6.0 MV により加速して、ガス電離箱で検出をおこなっている。炭素フォイル ($3.6\text{ }\mu\text{g}/\text{cm}^2$) により荷電変換し、48 MeV の $^{36}\text{Cl}^{7+}$ を検出する^[2]。 ^{36}Cl は、妨害となる同重体の ^{36}S の混入により、AMS による測定が最も困難な放射性核種の一つである。硫黄そのものは環境中に存在しやすく、その除去を困難にしている。 ^{36}S を分離・識別するために、これまでに、Cs スパッタリング負イオン源からのビーム自体に含まれる ^{36}S を低減する方法と、検出器に入射する ^{36}S のスペクトルを分離・識別する方法が研究されている^[2,3]。本研究では、Cs スパッタリング負イオン源から放出される ^{36}S を低減するために、カソードホイールの改良について検討を進めた。 ^{36}Cl の加速器質量分析では、試料形態として塩化銀 (AgCl) を用いる。 AgCl を装填する試料搭載ホルダーについて、 AgBr 粉末で充填した銅ホルダーを使用した結果、 ^{36}S の混入は少なかった。 AgBr には、直径 1 mm の穴を開けて AgCl を装填する。サンプル量が多い場合は、 AgCl をカソードの全面に配置する方法が ^{36}S の混入が最も少なかった。本研究では新たに、厚さ 0.50 mm の Ta プレートで Al ホイールディスクの表面を覆うことで、 ^{36}S の混入抑制を試みた。測定結果として、Ta プレートカバーの取り付けにより、 ^{36}S の寄与は約 50 分の 1 に減少した。本発表では、6 MV タンデム加速器を用いた ^{36}Cl の AMS 検出技術の進展において、妨害同重体 ^{36}S のイオン源での抑制方法の検討結果について報告する。

謝辞 本研究は、JSPS 科研費（基盤研究(B) 22H02001, 基盤研究(A) 23H00135, 基盤研究(S) 20H00173）の支援を受けて実施している。

References

- [1] K. Sasa et al., (2018) The 6 MV multi-nuclide AMS system at the University of Tsukuba, Japan: First performance report, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, 437, 98-102.
- [2] S. Hosoya, K. Sasa et al., (2018) Isobar suppression for ^{36}Cl accelerator mass spectrometry at the University of Tsukuba, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, 438, 131-135.
- [3] 笹 公和 他, 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会, 8a-Z25-3, 2020.

ハイマツ試料中放射性炭素濃度の年変動に関する研究 VI

Research of annual variations of ^{14}C concentrations in pinus pumila VI

山形大 AMS センター¹, 山形大理², 武蔵美³

○武山 美麗^{1,2}, 森谷 透^{1,2}, 櫻井 敬久², 宮原 ひろ子³, 門叶 冬樹^{1,2}

Center for AMS, Yamagata Univ.¹, Fac. of Sci., Yamagata Univ.², Musashino Art Univ.³

○Mirei Takeyama^{1,2}, Toru Moriya^{1,2}, Hirohisa Sakurai², Hiroko Miyahara³, Fuyuki Tokanai^{1,2}

E-mail: takeyama@sci.kj.yamagata-u.ac.jp

放射性炭素 (^{14}C) は、宇宙線と大気中の窒素 (^{14}N) との相互作用により生成され、直ちに酸化されて二酸化炭素 ($^{14}\text{CO}_2$) となり、大気中の二酸化炭素と混合して地球規模の炭素循環に取り込まれるため、大気中の ^{14}C 濃度は太陽活動の変動や宇宙線増加現象を反映する。したがって年代の判明している古木試料の ^{14}C 濃度を高精度に測定することで、過去の太陽活動の周期性や太陽フレアに起因する宇宙線増加現象を調べることができる[1-4]。しかしながら、植物が光合成により取り込む大気中 (対流圏) の ^{14}C 濃度は、地球の炭素循環の影響により ^{14}C 生成から時間差が生じ、その濃度変動は地球の成層圏で生成された ^{14}C 量の変動の 1/100 以下まで減衰する。従って ^{14}C をプローブとして過去の宇宙線強度変動や太陽活動を調べるためには、太陽黒点数や二次宇宙線の量が正確に観測されている現代の試料を用いて、植物中の ^{14}C 濃度の時間と変動の依存性を調べることが重要となる。

そこで、我々は試料中の ^{14}C 濃度変動と宇宙線強度変動、および太陽活動の関係を調べ、地球炭素循環の影響を評価することを目的として、乗鞍岳および蔵王山の高山帯に生息するハイマツの球果と葉 (図 1) を 2018 年から継続的に採取し、 ^{14}C 濃度測定を行っている。また、化石燃料の影響を比較するために、東京都および山形県天童市の市街地からアカマツ試料を採取し、同じく ^{14}C 濃度測定を行っている。試料の ^{14}C 濃度測定には、山形大学高感度加速器質量分析センター (YU-AMS) に設置された AMS システムおよびグラフィット作製システムを使用した。図 2 に各試料の採取年に対する ^{14}C 濃度 ($\Delta^{14}\text{C}$) と太陽黒点数[5]を示す。乗鞍岳と蔵王山で採取したハイマツ試料の $\Delta^{14}\text{C}$ は 2018 年から 2023 年にかけて全体的に減少傾向を示しており、1949 年から 1962 年に行われた大気圏核実験の影響がいまだに残っていると考えられる。本講演では、より詳細な測定結果について報告する。



図 1. 試料に用いたハイマツの球果(左)と葉(右)

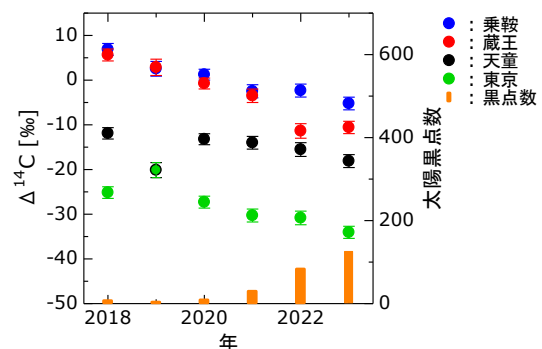


図 2. ハイマツ・マツ球果の採取年に対する $\Delta^{14}\text{C}$ 濃度と太陽黒点数

- [1] F. Miyake et al., Nature, 486, 240-242 (2012).
- [2] F. Miyake et al., Geophys. Res. Lett., 48, e2021GL093419 (2021).
- [3] H. Miyahara et al., Sci. Rep., 11(1), 5482-5482 (2021).
- [4] H. Miyahara et al., Geophys. Res. Lett., 49, e2021GL097201 (2022).
- [5] WDC-SILSO, Royal Observatory of Belgium, Brussels.

自然環境におけるヨウ素同位体システムの研究 3

Study on natural iodine isotope system 3

東大 MALT, °松崎 浩之, 戸谷 美和子, 齊 遠志, 山形 武靖

MALT, Univ. of Tokyo, °Hiroyuki Matsuzaki, Miwako Toya, Yuanzhi Qi, Takeyasu Yamagata

E-mail: hmatsu@um.u-tokyo.ac.jp

ヨウ素同位体 ^{129}I (放射性同位体: 半減期 1570 万年) および ^{127}I (安定同位体) により、ヨウ素同位体システムが形成される。自然環境においては、大気中においては、キセノン (Xe) と宇宙線との相互作用 ($^{129}\text{Xe}(n, p)^{129}\text{I}$) で、海水中や地殻中では天然ウラン 238 の自発核分裂によって、ヨウ素 129 は生成する。生成したヨウ素 129 は、地球表層環境中のヨウ素の生物地球化学循環に入る。これまで、大気・表層海水・海洋 (深層)・堆積物/地殻の 4 つのボックスモデルにより、それぞれのボックスにおける定常的なヨウ素同位体比 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) を検討してきた。各ボックス中のヨウ素インベントリの見積もりに不確定性がある他、ボックス間のヨウ素交換速度も不明であることから、ヨウ素同位体システムを完全に解明したとまではいえないが、それでも、不自然でないパラメーターの選択により、海洋中の平衡同位体比と堆積物中の平衡同位体比で異なる値を持つことも可能であることが示された。

今後、モデルを精緻化するために重要なポイントとして、宇宙線生成核種生成率の緯度依存 (Fig.1) の考慮が挙げられる。これまでは、大気全体を積分し平準化した生成率を使っていたが、大気中ヨウ素の混合の様子によっては、大気中ヨウ素 129 濃度の緯度依存性が残る可能性もある。

また、堆積物中や地殻中のウラン濃度も重要なパラメーターであるが、これまでは非常に大雑把な平均値を用いてきた。堆積物や岩石中のウラン濃度データを精査し、改善する必要がある。

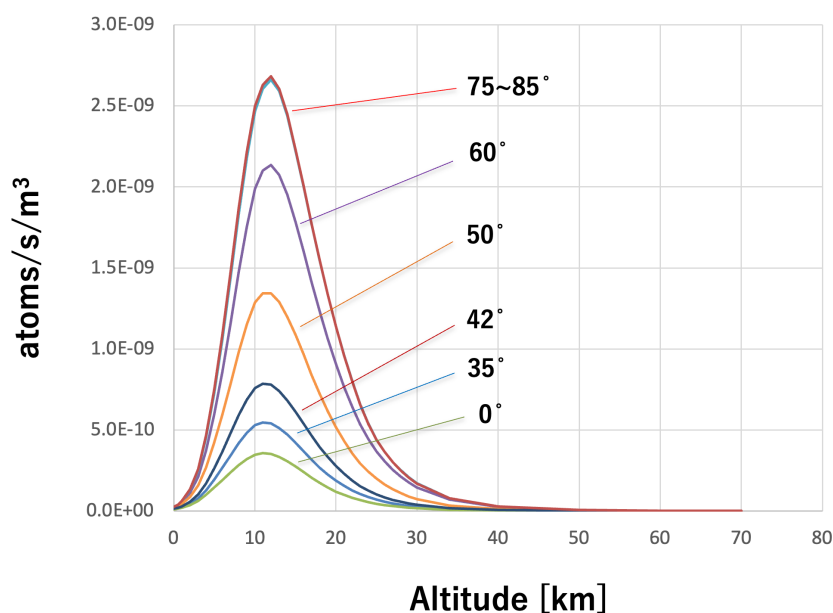


Fig. 1. The latitude dependency of the production rate of ^{129}I as functions of the altitude.

Temporal Changes of Iodine-129 in the Canada Basin Over the Past Decade

The Univ. of Tokyo ¹, Nihon Univ. ², JAMSTEC ³, °(P) Yuanzhi Qi¹, Takeyasu Yamagata¹, Hiroyuki Matsuzaki¹, Hisao Nagai^{1,2}, Yuichiro Kumamoto³, Qiuyu Yang¹, Xinru Xu¹

E-mail: yuanzhiqi@um.u-tokyo.ac.jp

The Arctic, known for its high sensitivity to global climate change, has experienced a temperature increase surpassing four times the global average rate since the industrial era began. This warming trend has coincided with the northward encroachment of warmer and saltier Atlantic waters into the Arctic Ocean, a phenomenon termed "atlantification". These changes have led to significant reductions in Arctic sea ice and alterations in seawater thermohaline structure, potentially impacting Arctic ocean currents. Understanding the response mechanisms of these currents to climate change is crucial for comprehending and addressing the broader impacts of global warming. Iodine-129 (¹²⁹I), released in substantial quantities directly into the North Atlantic from nuclear fuel reprocessing plants (NFRPs), is transported into the Arctic via the Fram Strait and Barents Sea, making it an ideal tracer for tracking Arctic currents. While numerous studies have utilized ¹²⁹I to investigate ocean currents in the Eurasian Basin, research in the Canada Basin, which also features complex current patterns, remains limited.

This study presents a decade-long analysis of temporal changes in ¹²⁹I concentrations at two stations (NAP, 74.5 °N, 162.0 °W; CB, 72.5 °N, 155.0 °W) within the Canada Basin from 2013 to 2023. Our findings reveal a diminishing influence of Atlantic water on the surface of the Canada Basin over this period. In the early 2010s, ¹²⁹I concentrations in the intermediate layer at both stations remained similar, indicating a shared source. However, by the late 2010s, the concentration of ¹²⁹I in the intermediate layer at the NAP station significantly surpassed that at the CB station, suggesting a shift in ocean currents potentially linked to changes in the Arctic Oscillation and atlantification.

Vertical distributions of ^{129}I and insight of current in the Southern Canada Basin

The Univ. of Tokyo ¹, JAMSTEC ², °(P) Xinru Xu¹, Yuanzhi Qi¹, Takeyasu

Yamagata¹, Hiroyuki Matsuzaki¹, Yuichiro Kumamoto²

E-mail: xuxinru0426@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

Human activities, particularly nuclear fuel reprocessing and nuclear weapons testing, are the primary sources of ^{129}I in the marine environment. The Sellafield facility in the UK and the La Hague facility in France are the predominant contributors to ^{129}I discharges into the ocean. ^{129}I subsequently travels through the North Atlantic Ocean to the Arctic Ocean, eventually reaching the Canadian Basin. The current system in the Canadian Basin is intricate and intertwined with climate change. ^{129}I has been widely utilized in studies of ocean currents and water mass origins, providing significant insights into current systems.

This study is based on the most recent data collected by our laboratory in 2023. This study investigated two depth profiles at stations St.14 (72.4°N, 155.4°W) and St.32 (74.0°N, 162.0°W) in the region. Vertically, the $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio initially decreased from the surface layer to a minimum value of 2×10^{-10} , then increased to a maximum value of 138×10^{-10} (Figure 1). It remained relatively stable within a depth range to 1000 m, before gradually decreasing with further depth (Figure 1). Based on these ratio data, the water source composition is categorized into a freshwater mixed layer (0–20 m), Pacific-origin water (20–100 m), Atlantic-origin water (200–1000 m), and bottom aged water mass (near the seabed). Vertical mixing occurs between these water masses. Further analysis of the Atlantic-origin water layer revealed a distinct peak in the $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio at approximately 250 m (Figure 2). Previous studies have identified two primary currents from the Atlantic Ocean: the Fram Strait Branch Water (FSBW), with a core at around 400 m, and the Barents Sea Branch Water (BSBW), with a core at about 800 m. However, this observed peak at 250 m is not attributable to either FSBW or BSBW and exhibits a higher signal than both. This suggests the possibility of an unknown ^{129}I source in the Arctic or an unrecognized Atlantic Ocean current carrying a high ^{129}I signal.

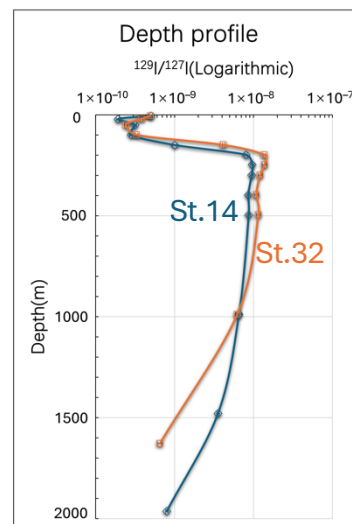


Figure 1. Depth profile of $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in logarithmic form

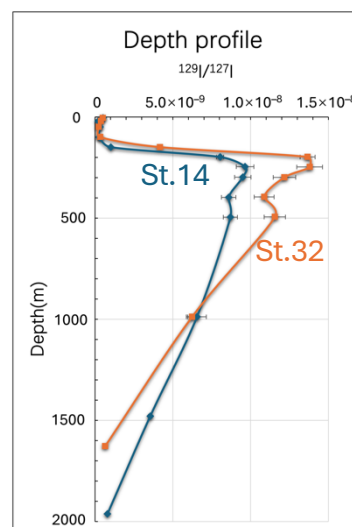


Figure 2. Depth profile of $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ in linear form