

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 17 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2011～2014

課題番号：23340172

研究課題名(和文)新しい地形変化年代測定法の開発研究

研究課題名(英文)Development of new cosmic-ray exposure age measurements using cosmogenic nuclides

研究代表者

松村 宏 (MATSUMURA, Hiroshi)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・放射線科学センター・准教授

研究者番号：30328661

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：宇宙線生成核種の岩石中鉱物での蓄積量が宇宙線にさらされた時間と宇宙線の強度に依存するため、地形変化の年代指標となり、地形変化年代測定法に利用されている。本研究は、この地形変化年代測定法において、新手法につなげるための基礎研究である。

(1)速ミュー粒子核反応の研究：加速器を使った実験で、地中深くの宇宙線生成核種の生成の主要な反応である速ミュー粒子核反応を研究し、光子による核反応と酷似していることを明らかにした。

(2)マグネタイトを用いた年代測定法の開発：岩石中のマグネタイト鉱物を用いた年代測定法は十分可能性があることを証明した。汎用化につなげるための手法の簡便化・短時間化の検討も行った。

研究成果の概要(英文)：Long-lived radionuclides are produced by cosmic rays in surficial materials on Earth, and used for determinations of cosmic-ray exposure ages and erosion rates. The purpose of this study is a development of new cosmic-ray exposure age measurements using cosmogenic nuclides.

(1) Study of fast muon induced nuclear reactions: Most of radionuclides in deep underground are produced by fast-muon-induced nuclear reactions which is not known well. In this study, by muon irradiation experiments, it was found that the mechanism of the nuclear reaction induced by a fast muon is similar to by a photon.

(2) Development of cosmic-ray exposure age measurement using cosmogenic nuclides in magnetite: Quartz is routinely used as the target minerals for these geomorphological studies. In this study, it was indicated that magnetite is also available for the cosmic-ray exposure age measurement. Then, chemical experimental procedures for magnetite samples were facilitated to be used widely.

研究分野：放射化学

キーワード：ミュー粒子 核反応 宇宙線年代測定 マグネタイト

1. 研究開始当初の背景

加速器質量分析法が発達したことで、極微量の長半減期放射性核種が定量できるようになった。この強力なツールのおかげで、地表岩石中に生成する宇宙線生成核種 ^{10}Be などを測定できるようになった。宇宙線生成核種の岩石中鉱物での蓄積量が宇宙線にさらされた時間と宇宙線の強度に依存するため、地形変化の年代指標となり、地形変化年代測定法に利用されている。測定の種類を増やし、測定対象エリアを拡大すること、年代の測定精度を高くすることが期待されていた。

2. 研究の目的

(1)本研究は、地形変化プロセス研究で活躍する地表岩石中の宇宙線生成核種を利用した地形変化年代測定法に、新手法を提案・確立することを目的とする。従来よりも測定対象エリアが拡大すること、年代の測定精度が高くなることのために、具体的には次の2テーマを掲げた。

(2)速ミュー粒子核反応の研究

地中の宇宙線生成核種の深度分布は精度良い年代を与えるが、地中深くの最大寄与である速ミュー粒子による生成速度が不確定である。これは速ミュー粒子核反応がよく分かっていないことに起因し、速ミュー粒子による生成速度を実験・理論両面から研究する。

(3)マグネタイトを用いた年代測定法の開発
岩石中マグネタイト鉱物は、地形変化年代測定のための試料としての理想的要件を揃えていることに着目した。新鉱物を利用した手法としての確立を目指す。

3. 研究の方法

(1)速ミュー粒子核反応の研究

本研究では、速ミュー粒子ビームを用いた照射実験を行い、速ミュー粒子誘起の核反応生成核の生成率等を測定する。得られた結果は、他の粒子による核反応の結果や理論計算と比較する。

(2)マグネタイトを用いた年代測定法の開発
手法の開発には市販のマグネタイトを用いて、化学分離分析の検討を行う。実用化のテストには実サンプルを用いて、検討を行う。

4. 研究成果

(1)速ミュー粒子核反応の研究

速ミュー粒子核反応を研究するためには、初めに速ミュー粒子照射場を確立する必要がある。まれな反応である速ミュー粒子による核反応を観測できるほど大量にミュー粒子を得ることができ、さらに妨害となる高エネルギーハドロン等の他粒子が少ない照射場が条件となる。これに適した照射場として、米国立フェルミ加速器研究所の NuMI ビームラインに着目した。ニュートリノビーム生成

が本施設の目的であるが、副生成物である速ミュー粒子が本研究に利用可能であると考えた。中でも当該施設で公開されている設計図から考えて、ハドロンアブソーバーの直下流域 (Alcove0, Alcove1) が適当であると考えた (図1参照)。

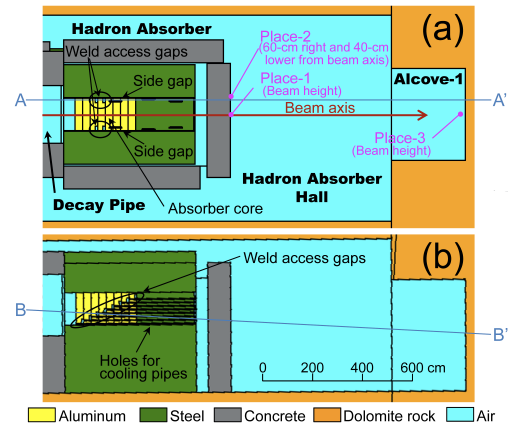


図1 NuMI ビームライン
ハドロンアブソーバー周辺図

モンテカルロコード (MARS15 コード) により、候補場所の飛来粒子スペクトルをシミュレーション計算したところ、本研究に適した場所であると判断した。そこで、標的金属を設置し、照射実験を開始した。しかしながら、初めに理論計算で予測していたよりも高い反応率で核反応が起こっていることがわかった。これに関して、速ミュー粒子が現理論より本当に高い反応率で反応が起こっているのか、あるいは別の粒子の寄与があり、過大に評価されているのかの研究が必要であった。そこで、NuMI ビームラインハドロンアブソーバーの周辺の飛来粒子が何であるかの検討を、アルミニウム、銅、金の金属中で起こる核反応について、空間的な反応率の分布、反応のエネルギー、反応生成核の運動量を分析して行った。結果、NuMI ビームラインハドロンアブソーバーの内部に、設計図には存在しないわずかな隙間があって、結果的にハドロンが漏れていることが判明した。これにより、核反応が予想より多く起こっていたことになる。この研究で判明した事実は、米国立フェルミ加速器研究所に設計時の見積もりより施設の放射化が大きくなっている事実を知らせ、加速器施設の設計精度のあり方について放射線安全管理上有益な情報となったことが良い成果となった。一方で、本研究の本来の目的においては、ハドロンアブソーバー直後の Alcove0 及び Alcove1 が照射場としてふさわしくないという悪い結果となった。当初、主に速ミュー粒子の核反応の詳細研究を Alcove0 及び Alcove1 での照射実験で予定しており、既に実験を始めていたが残念ながらあきらめることになった。

NuMI ビームラインには Alcove1 の下流に岩盤を隔てた Alcove2, 3, 4 の部屋がビーム軸

上に存在する。これら下流の部屋では Alcove0 及び Alcove1 で観測されたハドロン
の漏れの影響はない。そこで本研究では、ハ
ドロンの影響がないこれら下流の部屋を照
射場として使用することにした。当初より、
これらの部屋は、岩盤中のミュー粒子核反
応の変化を観測するために使用する予定であ
ったが、核反応の詳細な研究には Alcove0 及
び Alcove1 を使用する予定であった。速ミュー
粒子の数が格段に減り、核反応の検出感度
が下がったため、実験は難しいものとなっ
たが、速ミュー粒子核反応の観測に成功した。

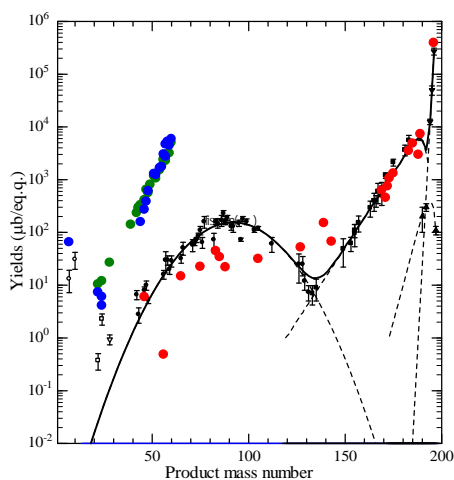


図2 銅と金標的の核反応生成核の質量分布
(青：速ミュー粒子+銅，緑：光子+銅，
赤：速ミュー粒子+金，黒：光子+金，
縦軸の単位は光核反応のもので，速ミュー粒
子核反応の結果は，銅と金で同じ係数をかけ
て光核反応と合うように調整されている。)

図2に本研究で得られた Alcove2 における銅
及び金標的における速ミュー粒子核反応によ
って生成する原子核の質量分布を示す。比
較のために最大エネルギー1GeVの制動放射
線(光子)による核反応の生成核の質量分布
もプロットした。分布は核反応の励起エネ
ルギーに依存するが、本研究で得られた速ミ
ュー粒子の分布の形は光核反応のものと同
一致している。また、銅と金標的で相対的
な反応率の関係も一致した。さらに、Thick
target catcher foil method によって、核反
応生成核の核反応の早い段階(カスケード
段階)の前方方向速度の測定にも成功した。
カスケード段階において、原子核が受け取
る前方方向速度は、入射粒子の種類とエネ
ルギーに対して特徴的である。本研究で得
られた速ミュー粒子核反応におけるカスケ
ード段階の前方方向速度もまた光反応と同
一致した。本実験で得られた速ミュー粒子
核反応の結果は、様々な点で光核反応(3,3)
共鳴領域)と一致したことになる。これに
より、速ミュー粒子核反応が光核反応様
であると結論付けた。

理論との比較を MARS15 コードにより行っ

た。図3に速ミュー粒子による銅標的にお
ける核反応生成核の質量分布の実験と計算
の比較を示す。実験で得られた結果は計
算結果と良く一致した。このコードでは、
仮想光子を発生させて核反応を起こすモ
デルを採用している。実験による光核反
応と類似しているという結果は、モデル
の妥当性を支持している。また、岩盤中
の反応率の減衰も実験と計算は一致した。
これらは、地中の核反応による放射性核
種の生成を計算により予測できることを
示す重要な知見である。

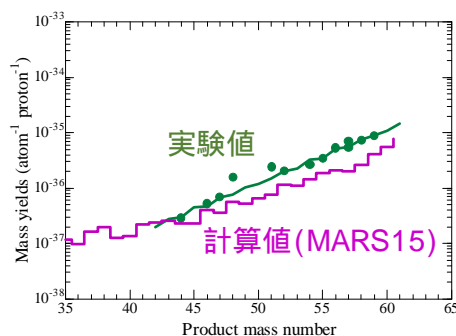


図3 速ミュー粒子による銅標的における核反
応生成核の質量分布の実験と計算の比較

(2) マグネタイトを用いた年代測定法の開発

実試料によるマグネタイトのテスト分析
を行った。宇宙線に長期間さらされている
と考えられる岩石からマグネタイトを分離
した。マグネタイト試料はシュウ酸+シュウ
酸アンモニウム溶液に溶解し、イオン交換
や沈殿法を用いて、Be, Al, Cl, Ca, Mn を分
離した。このうち Be, Al, Cl から ^{10}Be , ^{26}Al , ^{36}Cl
を測定し、宇宙線照射年代を得た。また、
化学分離に使用した残りのマグネタイト試
料について、 ^3He , ^{22}Ne の希ガス分析を行
った。

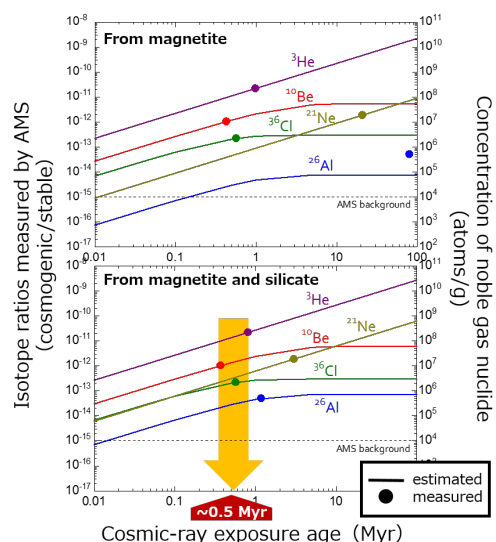


図4 マグネタイトによる年代測定結果
(上：マグネタイトからのみを考慮。
下：混入ケイ酸塩を考慮。)

図4に得られた宇宙線照射年代を示す。 ^3He , ^{10}Be , ^{36}Cl の年代は良く一致した(図4上)。マグネタイトをきれいに岩石から分離してあるがわずかながらケイ酸塩の不純物として混入があった。不純物として混入したケイ酸塩の寄与を考慮するとかなり過大評価していた ^{22}Ne , ^{26}Al の宇宙線照射年代は他の核種からの照射年代に近づいた(図4下)。核種間での一致はすなわちマグネタイトを用いた宇宙線照射年代の測定が可能であることを示している。また、従来法ではこれだけの多数の核種を同時に測定できない。半減期の異なる核種の利用は年代の精度を上げる効果もある。

マグネタイトを用いた宇宙線年代測定が可能であることがわかった。しかしながら、汎用化には化学処理の簡便化・短時間化が必要である。そこで、市販のマグネタイトを用いて、個々の化学処理の検討を行った。特に溶解にかかる時間と液量の削減は、重要な要素である。マグネタイト 1g に対してシュウ酸二水和物 5g と水 15mL だけでほぼ完全に溶解できることがわかった。シュウ酸だけの溶解は簡便化への貢献が大きい。また、図5に示す通り、温度が高いほど溶解速度が速くなり有利であることがわかった。9.2 上昇で溶解速度2倍の加速であった。一方で、溶解中に沈殿するシュウ酸鉄(II)二水和物が60を境に増加した。溶解速度と沈殿生成の許容を考慮して、70で6日間溶解するのが最適であると結論付けた。また、溶解後に紫外線を当てることでシュウ酸鉄が沈殿するので後の化学分離操作が非常に簡単になった。さらにマグネタイトの純度を上げるために、粉碎、粒径分離、磁力選鉱、NaOH

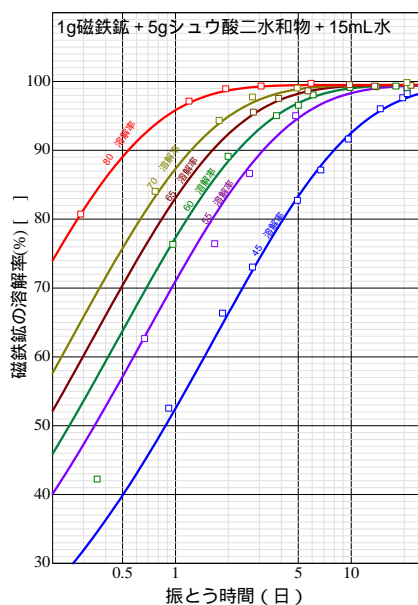


図5 温度毎のマグネタイト溶解率の時間変化

水溶液による溶解の検討を行い、十分な成果を上げることができた。硝酸による洗浄条件も決まった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計3件)

H. Matsumura, N. Matsuda, Y. Kasugai, A. Toyoda, H. Yashima, S. Sekimoto, H. Iwase, K. Oishi, Y. Sakamoto, H. Nakashima, A. Leveling, D. Boehnlein, G. Lauten, N. Mokhov, and K. Vaziri, "Material Activation Benchmark Experiments at the NuMI Hadron Absorber Hall in Fermilab," Nuclear Data Sheets, 査読あり, 120, 219-221 (2014).

N. Matsuda, Y. Kasugai, H. Matsumura, H. Iwase, A. Toyoda, H. Yashima, S. Sekimoto, K. Oishi, Y. Sakamoto, H. Nakashima, T. Nakamura, D. Boehnlein, G. Lauten, A. Leveling, N. Mokhov and K. Vaziri, "Activation detector measurements at the hadron absorber of the NuMI neutrino beam line at Fermilab," Progress in Nuclear Science and Technology, 査読あり, 4, 337-340 (2014).

H. Nakashima, N. V. Mokhov, Y. Kasugai, N. Matsuda, Y. Iwamoto, Y. Sakamoto, D. Boehnlein, A. Leveling, K. Vaziri, R. Coleman, D. Jensen, E. Ramberg, A. Soha, T. Sanami, H. Matsumura, M. Hagiwara, A. Toyoda, H. Iwase, H. Hirayama, T. Nakamura, S. Sekimoto, H. Yashima, T. Kajimoto, N. Shigyo, K. Ishibashi, N. Nakao, N. Kinoshita, Koji Oishi, H.-S. Lee and K. Niita, "Research Activities on JASMIN: Japanese and American Study of Muon Interaction and Neutron Detection," Progress in Nuclear Science and Technology, 査読あり, 4, 191-196 (2014).

〔学会発表〕(計8件)

H. Matsumura et al., "Initial Test Determination of Cosmogenic Nuclides in Magnetite," 2014 AGU Fall Meeting, December 15-19, 2014, San Francisco, CA, USA.

松村 宏, 末木啓介, 松村万寿美, 笹 公和, 西泉邦彦, 「マグネタイト中の長半減期宇宙線生成核種の分析法の検討ー加速器質量分析のための試料作製法の確立を目指すー」, 2014 年度質量分析学会・同位体比部会研究集会, 2014年11月26-28日, 筑波山温泉旅館 彩香の宿 一望, 茨城県つくば市

松村 宏, 末木啓介, 松村万寿美, 笹 公和, 西泉邦彦, 「宇宙線表面照射年代測定のためのマグネタイト試料のシュウ酸溶液への溶解方法の検討」, 2014 日本放射化学会年会・第58回放射化学討論会 2014年9月11-13日, 名古屋大学工学部 1B 館, 愛知県名古屋市

松村 宏, 「光核反応とミューオン核反応」, 東北大学電子光理学研究センター研究会「電子加速器を用いた RI 製造とその利用」, 2014年3月25日, 東北大学金属材料研究所, 宮城県仙台市

H. Matsumura et al., "Material Activation Benchmark Experiments at the NuMI Hadron Absorber Hall in Fermilab," International Conference on Nuclear Data for Science and Technology (ND2013), March 4-8, 2013, New York, USA.

N. Matsuda, H. Matsumura, et al., "Activation detector measurements at the hadron absorber of the NuMI neutrino beam line at Fermilab" 12th International Conference on Radiation Shielding (ICRS-12) and 17th Topical Meeting of the Radiation Protection and Shielding Division of the American Nuclear Society (RPSD-2012), September 2-7, 2012, Nara Prefectural New Public Hall, Nara, Nara, Japan.

H. Nakashima, H. Matsumura, et al., "Research Activities on JASMIN: Japanese and American Study of Muon Interaction and Neutron Detection," 12th International Conference on Radiation Shielding (ICRS-12) and 17th Topical Meeting of the Radiation Protection and Shielding Division of the American Nuclear Society (RPSD-2012), September 2-7, 2012, Nara Prefectural New Public Hall, Nara, Nara, Japan.

松村 宏, 「加速器質量分析による新たな年代測定手法」, 平成 23 年度 筑波大学応用加速器部門(UTTAC) プレ戦略研究報告会, 2012/3/29, 筑波大学, 茨城県つくば市

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：

出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

松村 宏 (MATSUMURA, Hiroshi)
高エネルギー加速器研究機構・共通基盤研究施設・放射線科学センター・准教授
研究者番号：30328661

(2) 研究分担者

末木 啓介 (SUEKI, Keisuke)
筑波大学・数理物質科学研究科・教授
研究者番号：90187609

(3) 連携研究者

()

研究者番号：