

タンデトロン加速器質量分析計による成層圏大気中CO₂の¹⁴C濃度測定

中村俊夫¹⁾
中澤高清²⁾
町田俊信²⁾
中井信之³⁾
北川浩之⁴⁾
松本英二⁵⁾
本田秀之⁶⁾
伊藤富造⁶⁾

- | | |
|-------------------------|----------------------|
| 1)名古屋大学年代測定資料研究センター | 〒464-01名古屋市千種区不老町 |
| 2)東北大学理学部大気海洋変動観測研究センター | 〒980仙台市青葉区荒巻字青葉 |
| 3)名古屋大学理学部地球科学教室 | 〒464-01名古屋市千種区不老町 |
| 4)国際日本文化研究センター | 〒610-11京都市西京区御陵大枝山町 |
| 5)名古屋大学水圏科学研究所 | 〒464-01名古屋市千種区不老町 |
| 6)宇宙科学研究所 | 〒229神奈川県相模原市由野台3-1-1 |

1. はじめに

地球を覆う大気は、図1 [1]に示されるように温度の鉛直変化により、下層から対流圏(0~11 km)、成層圏(11~50 km)、中間圏(50~80 km)、熱圏(80 km以上)におおまかに区分される。

対流圏では、さまざまな運動により圏内の空気が水平・鉛直方向に良くかき混ぜられている。この圏内では、温度は1 kmにつき6.5℃の割合で高度とともに減少する。一方、高度約11 kmにある圏界面(tropopause)より上の成層圏では、逆に温度は高度とともに増加している。このため、成層圏内では、上下の混合が起こりにくく、大気層は安定に存在すると考えられている。

オゾン層は、この成層圏内の地上約20 kmから50 kmにわたって地球全面を覆って存在し、太陽から放射される紫外線のうち320 nm以下の波長の紫外線を吸収し、これらの有害な紫外線から地表の生命体を保護している。しかし、近年になって、地表で人工的に造られたフロンガス等に含まれる塩素原子の作用により、成層圏オゾン層が破壊されつつあることが明かとなっている。すなわち、フロンガスなど、地表で放出された化学物質が、対流圏から成層圏内へと侵入し、オゾンを分解しているわけである。そこで、近年これらの化学物質の地表付近での存在量の経年変動がモニターされてきたが、さらに、成層圏大気中における高度分布や経年変化を直接調べる必要性が指摘されていた。

成層圏大気微量成分研究グループ[2]が、1980年より、大気球を用いたグラブサンプリ

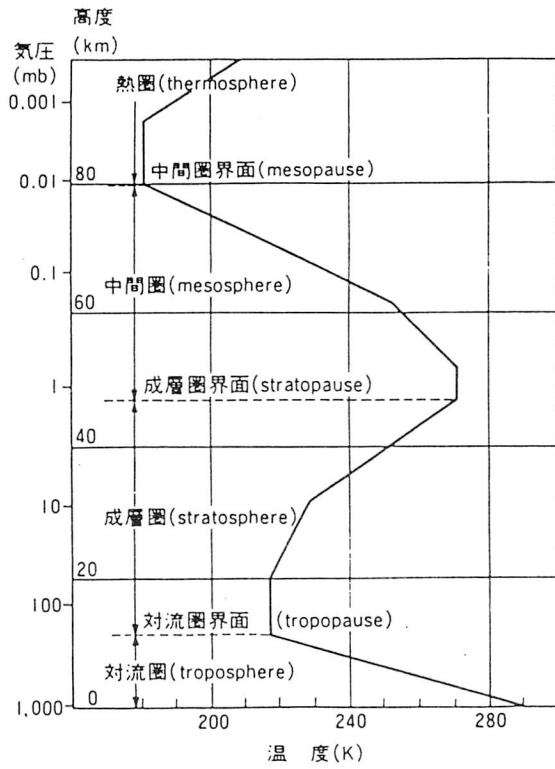


図1. 大気層の区分と温度の高度分布[1]

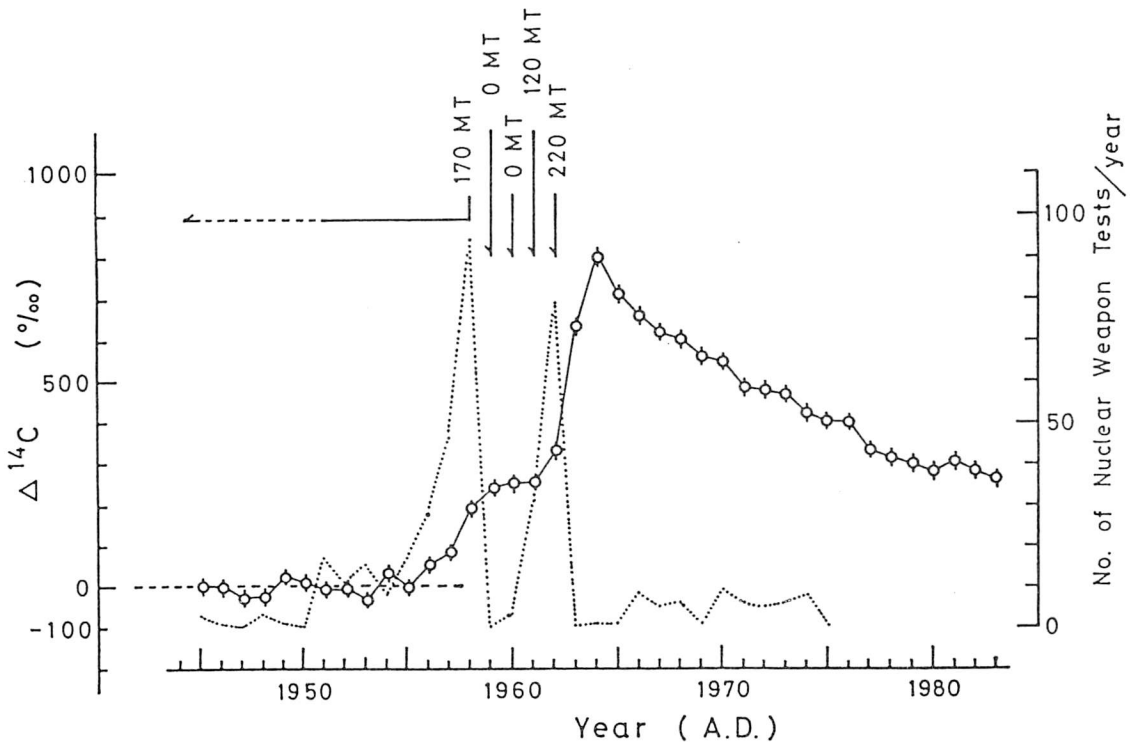


図2. 木曾ヒノキ年輪(白丸)の ^{14}C 濃度($\Delta^{14}\text{C}$: (4)式で定義). 破線は年毎の大気圏内核兵器実験の回数を示す.

ング法により、成層圏や対流圏上層において大気試料を採取し、 CCL_2F_2 、 CCL_2F 、 CO_2 、 CH_4 などの存在量や、 CO_2 の同位体組成 ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比、 $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ 比)の精密測定を行ってきた[3, 4, 5, 6]。さらに、大気試料がより大量に採取できる気球搭載用成層圏大気クライオサンプリング装置が開発され[7]、より高層の成層圏大気の採取が可能となっている。

ここでは、クライオサンプリング法により1989年9月に採取された成層圏大気(高度18.6~30.4 km)試料に含まれる CO_2 の放射性炭素 (^{14}C , 半減期5730年)の濃度を名古屋大学タンデロン加速器質量分析計で測定した結果について報告する。

2. 環境中の ^{14}C

現在環境中に存在する ^{14}C は天然起源と人工起源が考えられる。天然起源として、 ^{14}C は地球大気に降り注ぐ宇宙線によって長年月のあいだ生成されてきた。宇宙線が地球大気に入射し、大気を構成する元素と核反応を起こし二次的な放射線を生成する。この二次宇宙線に含まれる、エネルギーの低い中性子が地球大気の78%を占める窒素の原子核に捕獲され(捕獲断面積1.75 barn)て ^{14}C が造られる。この機構による ^{14}C の生成頻度は、地表面1 cm^2 あたり毎秒1.8個と見積られている。また、大気中で形成される中性子の高度分布予想から、 ^{14}C は成層圏内で60%が、対流圏内で残り40%が造られることが推定されている[8, 9]。

天然起源の ^{14}C に加えて、1945年以降は原水爆実験により人工的に多量の ^{14}C が造られた。大気圏内の核兵器実験でエネルギーの低い中性子が大気中に大量に放出され、それが大気中の窒素原子核と核反応を起こして ^{14}C が生産された。人工 ^{14}C の付加により1963年には大気 CO_2 の ^{14}C 濃度が核実験以前の平衡状態に比べて約2倍にまで増加した。このことは、木曾ヒノキ年輪の ^{14}C 濃度測定(図2)からも示されている[10]。

^{14}C は、こうして生産されると同時に、一方では放射壊変により消滅して減少する。 ^{14}C は β 線(e^-)と電子ニュートリノ(ν_e)を放出して窒素(^{14}N)に壊変する。 ^{14}C の半減期は、1949年より測定されてきたが、 5730 ± 40 年が現在のところ最も信頼できる値とされている[11]。

大気中で形成された ^{14}C は直ちに $^{14}\text{CO}_2$ に酸化され、周囲の $^{12}\text{CO}_2$ や $^{13}\text{CO}_2$ と混合されて地球表面の炭素循環に従って拡散されていく。図3に自然界の炭素循環を示す。炭素貯蔵庫での蓄積量、各貯蔵庫間の年間移動量、および蓄積量を入れ換えるのに要する時間(平均滞留時間)が示されている。大気と海洋表層水との CO_2 交換速度は比較的速く、原水爆実験で生成された大気中の ^{14}C は、海洋表層水へ移行し、大気 CO_2 の ^{14}C 濃度は年々減少しつつある(図2)。

3. 成層圏大気の採取と調製

1989年9月1日に、三陸大気球実験場(39.2 N, 141.8 W)にて、クライオサンプラーを用いて成層圏大気の採集が行われた。採取した大気量は10~20 リットルSTPである。

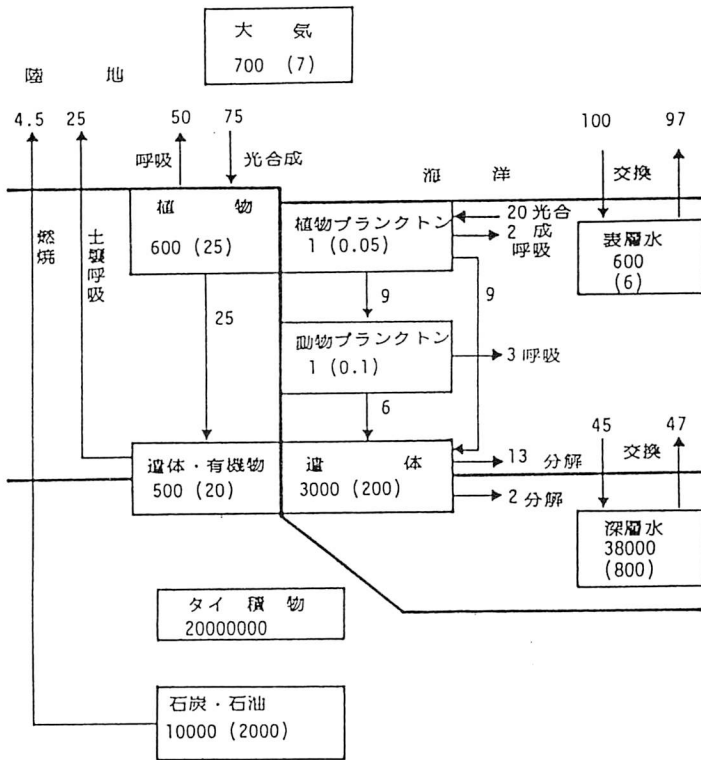


図3. 自然界の炭素循環. 各炭素貯蔵庫内の数値は炭素の存在量 ($Bt \times 10^{15} g$) を, カッコ付きの数値は炭素の平均滞留時間 (年) を表わす. 矢印の数値は炭素の年平均移動量 ($Bt/年$) である.

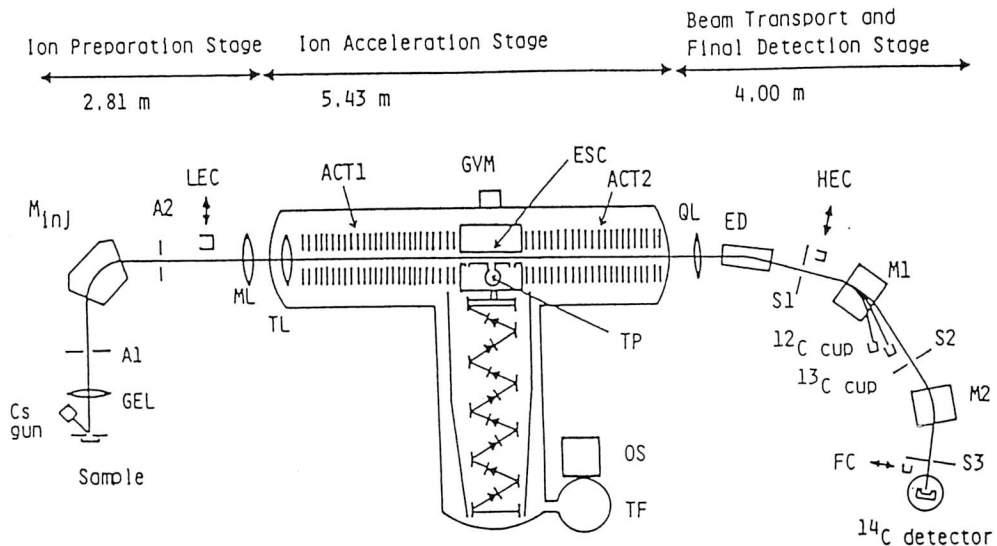


図4. ^{14}C 測定用タンデロン加速器質量分析計の全体図. A1, A2, S1, S2, S3: ビームスリット, GEL, ML, TL, QL: 静電レンズ系, LEC, HEC, ^{12}C cup, ^{13}C cup, FC: 電流計測用ファラデイカップ, Cs gun: セシウムスツパタ負イオン源, M_{inj} , M1, M2: 質量分析用電磁石, ACT1, ACT2: 加速管, GVM: 発電型高電圧計, ESC: 荷電変換チャンネル, TP: 荷電変換ガス (アルゴンガス) のトラップ用ターボ分子真空ポンプ, OS: 高電圧発生用の発振器, TF: 高電圧発生用のステップアップトランス, ED: 静電型 15° デフレクター.

高度は、高い順に①30.4～30.2, ②28.7～28.5, ③27.1～26.8, ④25.7～25.5, ⑤24.0～23.8, ⑥22.6～22.3, ⑦21.3～21.1, ⑧20.1～19.8, ⑨19.0～18.6 kmの9点である。これらの大気試料について、フロンガス, CH₄, CO₂の存在量やCO₂の $\delta^{13}\text{C}$, $\delta^{18}\text{O}$ などのルーティンの測定が行なわれている。今回の大気試料については、さらに、タンデトロン加速器質量分析計を用いてCO₂の¹⁴C濃度の測定を行なった。¹⁴C測定のために必要な炭素量を確保するために、今回は、②-③, ④-⑤, ⑥-⑦, ⑧-⑨について混合し、①を含めて合計5試料について分析した。

対流圏における¹⁴C濃度との比較のため、宮城県仙台市の東北大学構内で1989年12月12日, 13日, および19日採取した12.6～18.9リットルの大気から抽出されたCO₂ (試料名T1, T2, T3)の¹⁴C濃度を測定した。さらに1990年6月21日に、同所で、ほぼ同時に大気6リットルを2本採取し、それぞれの大気試料から回収したCO₂ (試料名T4, T5)の¹⁴C濃度を測定した。

大気試料からCO₂を回収する操作は、東北大学理学部大気海洋変動観測研究センターにて、次の様にして行なわれた。ガラスの細管をたくさん入れて、ガラス管を通過する試料大気のガスが衝突する表面積を大きくし捕獲効率を良くしたトラップを2段取り付けた真空ラインを用いる。初段のトラップをエチルアルコール-液体窒素の混合で-100℃に、2段目のトラップを液体窒素で冷却し、1 torrに減圧した大気試料を40 ml/minの流量で流し、試料中のH₂OおよびCO₂を完全にトラップする。次に2段目のトラップについて、-100℃の寒剤を用いて、H₂OとCO₂とを分離し、CO₂を6 mmφのバイレックスアンプルに封入する。名古屋大学にて、このCO₂試料を北川ほか[12]の方法で固体の炭素に変える。すなわち、CO₂を純度99.9%以上の粉末状の鉄約1 mgをバイコール管に詰め、CO₂と過剰量のH₂を導入して封じ込め、反応容器の下部を650℃で4～6時間加熱すると、鉄粉表面にグラファイト状の固体炭素が析出する。これを専用のターゲットホルダーに詰め、タンデトロン加速器質量分析計を用いて¹⁴C濃度を測定した。

4. 名古屋大学タンデトロン加速器質量分析計による¹⁴C濃度測定

環境中の炭素試料の¹⁴C濃度は、通常放射能測定法により測定されている。すなわち、¹⁴Cが放射壊変して窒素に変わる際に放出されるエネルギーの低い β 線を、ガス比例計数管や液体シンチレーション計数装置などの低バックグラウンド放射能測定装置を用いて計測することにより、¹⁴C濃度が定量されている。しかし、¹⁴Cの半減期は比較的長いいため、放射能測定法は¹⁴Cの定量には効率があまり良くない。すなわち、¹⁴C測定用の標準体(炭素同位体組成は¹²C:¹³C:¹⁴C=0.989:0.011:1.2 $\times 10^{-12}$)の炭素1 mgには6 $\times 10^7$ 個もの¹⁴Cが含まれているが、¹⁴Cの半減期は5730年と長いので、1時間あたりに崩壊する¹⁴Cの個数は計算上わずか0.8個にすぎない。このため、放射能測定法では、炭素試料の量を増やすことにより、限られた時間内に崩壊する¹⁴Cの個数の増加を図る。

これに対し、加速器質量分析法では、炭素1 mgにつき6 $\times 10^7$ 個もある¹⁴Cそのものが、

崩壊を待つのではなく直接計数される。すなわち、加速器法とは、加速器の技術を駆使して、試料の炭素を原子ごとにバラバラに分離して負イオンに変え、それを高エネルギーに加速し、エネルギー・質量の分析を行い、最終的には重イオン粒子検出器を用いて ^{14}C イオンの個数を直接数える方法である[13]。

名古屋大学年代測定試料研究センターに設置されているタンデトロン加速器質量分析計は、この新方式に基づいて作製された ^{14}C 測定専用の装置(図4)であり、従来の方法に比較して次の利点を持っている。

- ①炭素試料の量が従来の千分の一ですむ。従来の測定法では1~5 gの炭素が必要とされるが、タンデトロン分析計では1~7 mgの炭素で測定できる。従って、採取できる炭素の量が少なく従来方法では測定できない試料についても、この分析計を用いると測定が可能となる。
- ②測定可能な低い ^{14}C 濃度の限度は、従来の方法では ^{14}C 年代値に換算して3~4万年前までが限界となっているが、タンデトロン分析計では5~6万年前に遡って測定できる。
- ③従来の方法では1試料を約24時間かけて測定している。一方、タンデトロン分析計では、1試料の測定時間は3~5時間であり、1日あたり5~6個の試料の測定が原理的に可能である。

タンデトロン分析計による ^{14}C 測定の誤差は、現在のところ、従来の方法と同程度で、ほぼ±1%(one sigma)である。

タンデトロン分析計では、未知試料の $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ 比が、この比が既知の標準体に対する比として

$$R = (^{14}\text{C}/^{13}\text{C})_{\text{sample}} / (^{14}\text{C}/^{13}\text{C})_{\text{standard}} \quad (1)$$

で与えられる。そこで試料の ^{14}C 濃度は、千分率で

$$\delta^{14}\text{C}(13) (\%) = (R-1) \times 1000 \quad (2)$$

と表示される。さらに、炭素の同位体分別の効果を考慮して、その補正を炭素安定同位体比

$$\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}} (\%) = [(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{sample}} / (^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{PDB}} - 1] \times 1000 \quad (3)$$

を用いて行い、試料の ^{14}C 濃度は最終的に次式で与えられる。

$$\Delta^{14}\text{C} (\%) = \delta^{14}\text{C}(13) - (\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}} + 25) \times (\delta^{14}\text{C}(13) / 1000 + 1) \quad (4)$$

5. 結果および考察

地表(東北大学構内)で採取された大気中、および成層圏で採取され大気中の CO_2 の ^{14}C 濃度の測定結果が図5および表1に示される。

図5からわかるように、地上の CO_2 の ^{14}C 濃度($\Delta^{14}\text{C}$)が100~150%。(核実験開始以前の平衡状態の ^{14}C 濃度の1.10~1.15倍)であるのに対し、成層圏大気中の CO_2 の $\Delta^{14}\text{C}$ は約300%を示す。もっとも、成層圏でも最下層の試料の $\Delta^{14}\text{C}$ は134%と、対流圏大気 CO_2 の $\Delta^{14}\text{C}$ と同様な値が得られており、成層圏の下層部は対流圏大気と良く混合され

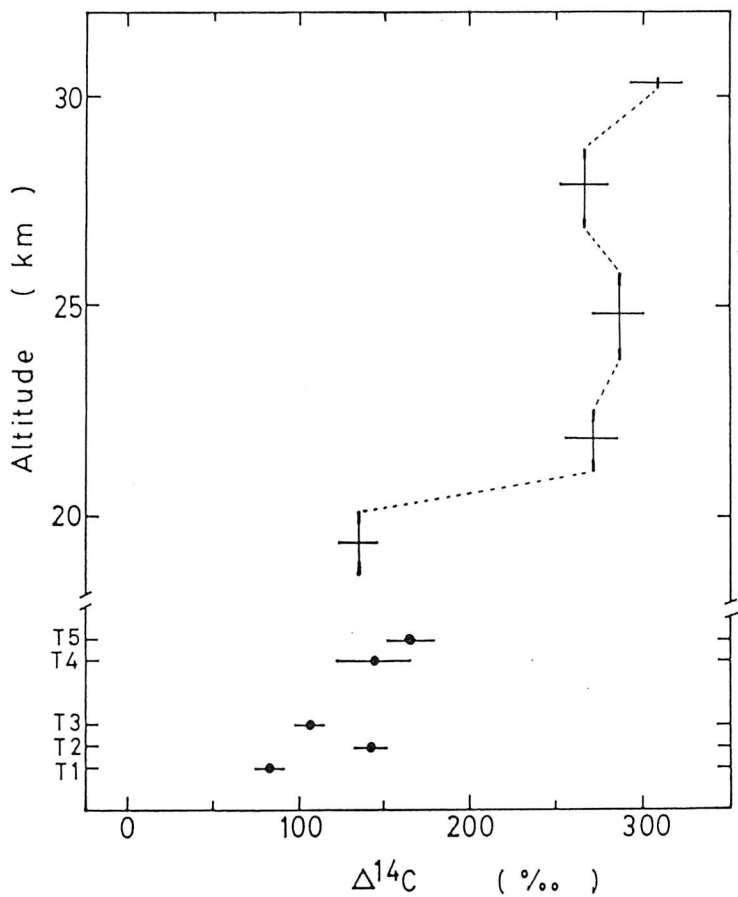


図5. 対流圏および成層圏大気のCO₂の¹⁴C濃度

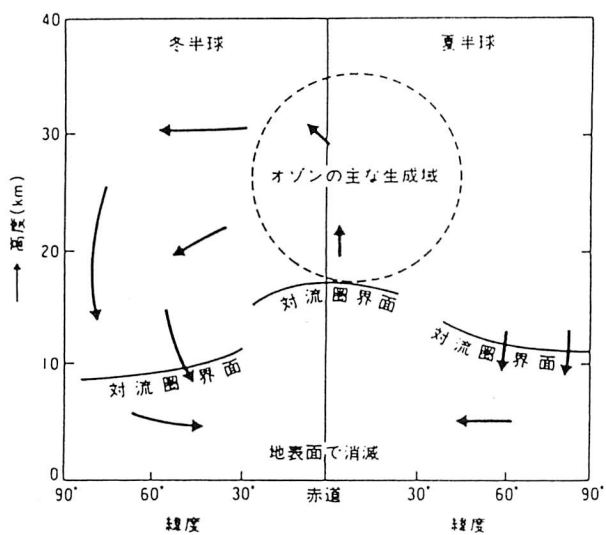


図6. 成層圏と対流圏内で大気の流れによりオゾンが運搬されることを示す模式図[1]

Table 1. Values of $\Delta^{14}\text{C}$ and $\delta^{13}\text{C}$ for CO_2 collected from stratosphere at different altitudes.

sample name	Altitude (km)	R_{sample}^* $R_{\text{AD 1950}}$	$\Delta^{14}\text{C}$ (‰)	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)
T1	地上	$1.1001 \pm 0.0086^{**}$	$82.2 \pm 8.6^{**}$	-8.74
T2	地上	1.1612 ± 0.0098	142.1 ± 9.8	-8.59
T3	地上	1.1247 ± 0.0092	105.8 ± 9.2	-8.23
T4	地上	1.1635 ± 0.0224	143.6 ± 22.4	-7.9
T5	地上	1.1843 ± 0.0139	164.0 ± 13.9	-7.9
CRY1	30.4-30.2	1.3322 ± 0.0142	309.2 ± 14.2	-7.7
CRY2	28.7-28.5 27.1-26.8	1.2896 ± 0.0146	267.2 ± 14.6	-7.6
CRY3	25.7-25.5 24.0-23.8	1.3093 ± 0.0143	286.8 ± 14.3	-7.8
CRY4	22.6-22.3 21.3-21.1	1.2932 ± 0.0161	271.1 ± 16.1	-
CRY5	20.1-19.8 19.0-18.6	1.1537 ± 0.0126	134.1 ± 12.6	-8.0

*) $R = ^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$

***) Errors are from one sigma.

ていることが示唆される。これは、ハロカーボン類やCO₂の濃度、またCO₂を構成する炭素、酸素の安定同位対比などの高度分布が高度20 kmあたりで大きく変化していること[6]と関連すると思われる。すなわち、ハロカーボン類の濃度は地表から高度20 kmあたりまでは、一定であるがそれより高くなると濃度は急激に減少している。これらのことは、赤道域において対流圏から成層圏内に入り込んで混合した大気が、子午線面内の運動により、中緯度まで輸送されたものを観測していると考えてよいであろう(図6)。

地上の大気CO₂試料のうちT1, T3の $\Delta^{14}\text{C}$ がやや低くなっているのは、大気の採集時期が冬季であることから、暖房のために周囲の環境で化石燃料(^{14}C を全く含まない)が使用されたことによる ^{14}C 濃度の希釈効果によるものと推察される。一方、6月に採集された大気CO₂試料T4, T5の $\Delta^{14}\text{C}$ は約150%。で互いに良く一致している。

^{14}C 濃度が、ハロカーボン類とは逆に、成層圏大気中で高くなる理由の一つは、成層圏が ^{14}C 生成の主要な場の1つであることによるとと思われる。§2で述べたように、宇宙線により地表で生成される ^{14}C の約60%は成層圏内と考えられている。しかも成層圏では大気の上層混合はそれほど活発ではないため、高濃度を維持していると考えられる。

さらに別の理由として、成層圏大気の ^{14}C 濃度が高いのは、1960年代前半の大気圏内の核兵器実験に依ることも考えられる。核兵器実験の際に形成される核反応の熱雲は成層圏中層域まで達しており、そこで大量の ^{14}C が生成されている[14]。成層圏の中・下層で生成された大量の ^{14}C は、成層圏-対流圏間の大気混合により次第に拡散されていくが、成層圏大気混合速度が遅いため、生成された ^{14}C の一部が約30年後の今日でも生成現場に残っている可能性がある。

6. まとめ

クライオサンプリング法により1989年9月に採取された成層圏大気に含まれるCO₂の ^{14}C 濃度を測定したところ、対流圏大気中のCO₂の ^{14}C 濃度より高い値が得られた。すなわち、対流圏大気CO₂の $\Delta^{14}\text{C}$ が100~150%。であるのに対し、成層圏大気CO₂の $\Delta^{14}\text{C}$ は約300%。である。

成層圏は、対流圏とともに天然の ^{14}C の生産の場であり、さらに1960年代前半の核兵器実験により成層圏内で ^{14}C が大量に生成された。成層圏大気が安定で混合が比較的ゆっくりと行なわれることを考えると、 ^{14}C 濃度が対流圏よりも高くても不思議ではない。 ^{14}C の生産は、高度にも、また緯度にも大きく依存する。今後、定点観測はもちろんのこと、緯度を変えた観測を含めて長期的に観測データを蓄積する事が強く望まれる。

参考文献

- [1]小倉義光(1984)一般気象学. 314p. 東京大学出版会
- [2]本田秀之・伊藤富造(1982)気球搭載用成層圏大気採取装置. 宇宙科学研究所報告, 4, p.107-125.

- [3]Makide, Y., et al.(1987) Vertical profiles of CCl_3F , CCl_2F_2 and CH_4 in the stratosphere and troposphere over Japan observed by grab-sampling and gaschromatographic analysis. Bull Chem Soc. Japan, 60, p.1540-1542.
- [4]卷出義紘ほか(1988)成層圏大気中の超微量ハロカーボン. 大気球シンポジウム報告集, 宇宙科学研究所, p.82-88.
- [5]Gamo, T., et al.(1989)Carbon and oxygen isotopic ratios of carbon dioxide of a stratospheric profile over Japan. Tellus, 41B, p.127-133.
- [6]伊藤富造ほか(1989)成層圏大気中の微量気体の高度分布の観測. 宇宙科学研究所報告, 24, p.49-61.
- [7]本田秀之ほか(1987)クライオサンプリング法による成層圏大気試料採取装置の開発. 宇宙科学研究所報告, 20, p.73-107.
- [8]小田 稔(1972)宇宙線. 物理学選書 5, 412p. 裳華房.
- [9]O'Brien, K.(1979) Secular variations in the producyion of cosmogenic isotopes in the earth's atmosphere. J. Geophys. Res., 88, p.3621-3642.
- [10]中村俊夫ほか(1987)樹木年輪(1945-1983)の ^{14}C 濃度変動. 地球化学, 21, 7-12.
- [11]中村俊夫・中井信之(1988)放射性炭素年代測定法の基礎-加速器質量分析法に重点をおいて-. 地質学論集, 29, p.83-106.
- [12]北川浩之ほか(1990)微量試料 ^{14}C 測定-加速器質量分析用ターゲットの作成法-. 日本地球化学会講演要旨集, p.10.
- [13]Nakamura, T. et al.(1985) Direct detection of radiocarbon using accelerator techniques and its application to age measurements. Jpn. J. Appl. Phys., 24, p.1716-1723.
- [14]Hagemann, F., et al.(1959) Stratospheric carbon-14, carbon dioxide, and tritium. Science, 130, p.542-552.

MEASUREMENTS OF ^{14}C CONCENTRATIONS OF STRATOSPHERIC CO_2
USING A TANDETRON ACCELERATOR MASS SPECTROMETER

T. Nakamura¹⁾, T. Nakazawa²⁾, T. Machida²⁾, N. Nakai³⁾,
H. Kitagawa⁴⁾, E. Matsumoto⁵⁾, H. Honda⁶⁾ and T. Itoh⁶⁾

- 1) Dating and Materials Research Center, Nagoya Univ., Chikusa, Nagoya 464-01 Japan.
- 2) Faculty of Science, Tohoku Univ., Katahira, Sendai 980 Japan.
- 3) Department of Earth Sciences, School of Science, Nagoya Univ.
- 4) Int. Res. Center for Japanese Studies, Oeyama, Kyoto 611-11.
- 5) Water Research Institute, Nagoya Univ.
- 6) Institute of Space and Astronautical Science, Yunodai, Sagami-hara, 229 Japan.

Air samples of about 16 liter in STP were collected from the stratosphere at altitudes of 18, 20, 21, 23, 24, 26, 27, 29, 30 km, by a cryogenic-sampling apparatus with a liquid helium cooling system, on 1 September 1989, off Sanriku-Shore, Miyagi Prefecture, Northeastern part of Japan. The sampling apparatus was flown up to the stratosphere by a balloon at the Sanriku balloon station (39.2 N, 141.8 W) of the Institute of Space and Astronautical Science. Carbon dioxide of a few mg of carbon was separated from air samples with a cryogenic method at Tohoku University, and ^{14}C concentrations of the CO_2 were measured with a Tandetron accelerator mass spectrometer at Nagoya University for a Fe-graphite target prepared by reducing CO_2 on Fe-powder with hydrogen in a Vycor tube at 500 C.

The ^{14}C concentrations, $\Delta^{14}\text{C}$, of CO_2 were 270- 310 ‰ at altitudes of 21-30 km, and 130 ‰ at 18-20 km. The $\Delta^{14}\text{C}$ values at 21- 30 km were higher than the $\Delta^{14}\text{C}$ of the current tropospheric CO_2 of around 100-150 ‰ .

口頭発表

- 1) 中村俊夫・中澤高清・北川浩之・本田秀之・伊藤富造・中井信之 (1990) 成層圏大気中の二酸化炭素の加速器による ^{14}C 濃度測定. 宇宙科学研究所第5回大気圏シンポジウム (於宇宙科学研究所), 平成2年12月.
- 2) Nakamura, T., Nakazawa, T., Nakai, N., Kitagawa, H., Honda, H., Itoh, T., Machida, T. and Matsumoto, E. (1991) Measurement of ^{14}C concentrations of stratospheric CO_2 by accelerator mass spectrometry. 14th International Radiocarbon Conference, held at Tucson, Arizona, USA., May 20-24.
- 3) 中村俊夫・中澤高清・北川浩之・本田秀之・伊藤富造・中井信之 (1991) 成層圏大気中の二酸化炭素の ^{14}C 濃度測定 (加速器質量分析法を用いた環境試料の ^{14}C 濃度の測定 VI). 理工学における同位元素研究発表会 (於国立教育会館), 平成3年7月.
- 4) 中村俊夫・中井信之・中澤高清・町田敏信・北川浩之・本田秀之・伊藤富造・松本英二 (1991) 日本上空の成層圏大気中二酸化炭素の ^{14}C 濃度鉛直分布. 日本地球化学会年會 (於愛媛大学), 平成3年9月.
- 5) 中村俊夫 (1991) 成層圏大気中 CO_2 の ^{14}C 濃度測定. 名古屋大学シンポジウム [加速器質量分析と炭素安定同位体の学際的応用] (於名古屋大学)

学会誌等

- 1) 中村俊夫・中澤高清・北川浩之・本田秀之・伊藤富造・中井信之 (1990) 成層圏大気中の二酸化炭素の加速器による ^{14}C 濃度測定. 宇宙科学研究所第5回大気圏シンポジウム報告書, p. 111-117.
- 2) Nakamura, T., Nakazawa, T., Nakai, N., Kitagawa, H., Honda, H., Itoh, T., Machida, T. and Matsumoto, E. (1991) Measurement of ^{14}C concentrations of stratospheric CO_2 by accelerator mass spectrometry. Radiocarbon (in press).
- 5) 中村俊夫 (1991) タンデム加速器質量分析計による成層圏大気 CO_2 の ^{14}C 濃度測定. 名古屋大学シンポジウム [加速器質量分析と炭素安定同位体の学際的応用] 報告集. (名古屋大学年代測定資料研究センター刊) (印刷中).