

## タンデトロン加速器質量分析計の導入と今後の問題

中井 信之

名古屋大学理学部地球科学科

〒464 名古屋市千種区不老町

### 1. 名古屋大学 加速器質量分析計の導入と実用化

思いおこすと 10 年も前の 1977 年のことである。Science に加速器による微量放射性核種の定量と年代測定の可能性に関する 3 編の論文が発表された。丁度、年代尺度の不正確さを痛感し、何とかしなければと悩んでいた時であった。そして、少量試料で比較的短時間に数多くの年代測定が可能である加速器質量分析技術 (Accelerator Mass Spectrometry: AMS) が、必ずや望む年代尺度を作り出してくれるであろうし、また放射線によらず放射性核種を直接計数するこの高感度測定技術は定量法の革命ともいえると確信した。そこで、この技術を名古屋大学に導入し学際的な年代測定と核種定量への利用に貢献させる目的で、アイソトープ総合センターに設置する計画を立てることになった。

1977 年暮、名古屋大学理学部とアイソトープ総合センターの協力で加速器質量分析計の設置準備をはじめた。まず学内共同利用の立場から関連 8 部局の代表者から成る天然放射能測定装置設置準備委員会（当時はまだ“加速器質量分析”という名がなかった）と 4 部局の代表者から成る技術小委員会を発足させた。そして、<sup>14</sup>C 測定用の AMS を導入することにし、機種として世界で唯一の General Ionex 社製のタンデトロン加速器質量分析計を選んだ。センター長をはじめセンターの皆さん、そして委員会のメンバーの皆さんのお理解と努力により 1980 年度に予算化され、1980-1981 年度に建屋の新築、装置の搬入と組立てが行なわれた。そして、付属設備も含めて 1982 年 3 月に <sup>14</sup>C 年代測定用加速器質量分析計の世界第 2 号機として完成した。

新しい原理に基づく開発間もない装置だけに思わぬ障礙に出くわしながら、測定装置の調整と試料調製法の検討・調製装置の組立てを行なった。1983 年 9 月には精度は不充ではあったが天然レベルの <sup>14</sup>C 測定が可能になり、1 万年以下の若い試料についての年代測定まで漕ぎ着くことができた。その後、加速ターミナル電圧安定化のための大改造を行ない、また 1985 年 3 月にはクリーン・ルームを設置した試料調製実験棟が新たに増築され試料調製システムもすべて完成した。この整備期間中も学内外の要望をかなえるべく共同研究の形で <sup>14</sup>C の測定を続けてきた。

以上のようにして、測定室・実験室も整備され、2~5mg の炭素試料を用いて 5 時間の測定で ±1% 以内の精度で測定でき、また年代測定は従来の  $\beta$  線計数法よりもかなり古い 60,000 年 BP まで可能になった。

### 2. AMS の国際的動向と名古屋大学 AMS

AMS による <sup>14</sup>C の測定が広く利用して頂ける状態にするまでには、国内外の多くの研究者・技術者の方々の協力があった。装置搬入以前には高田健三教授（現アイソトープ総合センター長）と西沢邦秀講師は訪米の途中 General Ionex 社や Arizona 大学に立寄り打合せをして下さった。また、測定装置の調整段階には Toronto 大学の Litherland 教授、

Rucklidge 博士をはじめ，Rochester 大学の Elmore 博士，Arizona 大学の Zabel 博士が次々と来学し有益な助言を頂いた。筆者は1984年に，本学と同型の<sup>14</sup>C 測定用加速器質量分析計第一号機を設置した Arizona 大学を訪問し，装置の常時運転や試料調製法に関して意見交換をした。さらに，アイソトープ総合センターの中村俊夫氏は1987年にToronto 大学を訪問し，約2週間技術面の勉強をした。

一方，名古屋大学にAMSを導入する準備をはじめた直後の1978年春に第1回 AMS 国際会議が開かれ，それ以後3年に1回開催されてきた。そして，1987年4月に第4回 AMS 国際会議が10周年記念として盛大に開かれた。

- 第1回 1978年4月 於 ロチェスター大学(USA)
- 第2回 1981年5月 於 アルゴンヌ国立研究所(USA)
- 第3回 1984年4月 於 チューリッヒ工科大学(スイス)
- 第4回 1987年4月 於 ナイアガラ・オン・ザ・レイク(カナダ)

本学のAMSも世界的レベルを維持し，技術的に仲間入りするためできる限り早い機会に国際会議の場へ名乗りをあげねばならなかった。そこで，第2回 AMS 会議には当時在米中であった吉川路明助教授にお願いして名古屋大学のAMS設置計画を報告して頂いた。そして，次の第3回国際会議には筆者が“Accelerator Mass Spectrometry of <sup>14</sup>C at Nagoya University”と題して，初めて我々の生々しいデータを紹介した。さらに第4回国際会議には地質学・環境科学への応用に関して2編の論文を報告した。

ここで，上に述べた4回の国際会議の話題の移り変わり眺めてみると，AMSの発展の歴史がよく理解できる。まず，第1回国際会議でAMSによる天然レベルの<sup>14</sup>C・<sup>10</sup>Be・<sup>36</sup>Cl 等の微量核種測定の可能性が，第2回国際会議には主に測定精度の向上と大学・研究所などのAMS導入計画が，第3回目には主に測定試料の調製法による精度の向上が話題となつた。そして昨年1987年に開かれた第4回国際会議になって，主として広い学問分野への応用例とその可能性が紹介され討議の中心となつた。このように，名大のAMSも世界的な動きに追随することができた。そして，1987年の国際会議でいよいよ応用の場が登上してきたが，これは後に述べるように奇しくも名大加速器の正式な学内共同利用開始(1987年1月)の年と一致したのである。

### 3. 共同利用への歩みと現況

本学における<sup>14</sup>C 測定に満足できる精度がえられ，試料調製実験室も完備した1986年4月に共同利用を名実共に実現する目的で，設置準備のための2委員会を解散し12月に天然放射能測定利用委員会と技術小委員会が新たに発足し，利用内規が作られた。これらの新委員会の前者はアイソトープ総合センター，理，工，農，医，文，教養，水研の代表者で構成し，利用申込の調整と予算面の立案をすることになった。後者はアイソトープ総合センターと工学部の代表者で構成し，測定装置の技術的な改良を立案するものとした。そして，1987年1月から学内共内利用が正式に開始される運びとなつた。そして，AMS導入後1987年12月までの<sup>14</sup>C 年代測定及び現代<sup>14</sup>C 濃度測定の総数は1,250に達した。

ここで，学内の地質学・地球化学・海洋学・氷河学・地理学・考古学・人類学の多様な研究分野での利用が実現し，しかも円滑に進められるようになつた。一方，学外からの利用の希望も数多く，現在では学内に共同研究者がある場合だけ要望に沿え

るようにしている。このようにせざるをえないのは、測定経費の受入体制がないためであるが；この受入体制の整備もアイソトープ総合センター長の御努力により実現の方向に進んでいる。

共同利用に関して、もう一つの問題がある。それは試料調整・測定すべてを依頼される場合の要員不足である。現況は独自で試料調整・測定を希望する利用者に技術的指導をするのが精一杯というのが正直なところである。そして、今年4月からは天然放射能測定室と試料調製実験室合わせて職員は1名だけになる。1名の職員で大型の加速器を維持管理することだけでも大仕事である。大学院学生を動員して何とかしのいでいる。しかし、共同利用を円滑に運営し、名大AMSを有効に生かすためには、これらの難問を乗り越えなければならない。そして、全国共同利用体制を整えることにより、充実を計るべく努力が重ねられつつある。

#### 4. 名古屋大学 AMS の将来

本学のAMS技術の将来への道は大きく分けて3つある。(1)現在の<sup>14</sup>C測定技術の質向上、(2)<sup>14</sup>C以外の核種の測定、(3)全国共同利用の加速器年代測定施設への拡張が挙げられる。

##### 4-1. <sup>14</sup>C測定の精度の向上

<sup>14</sup>C測定の精度を上げるには、測定と試料調製の両面の改良がある。

###### (a) 加速器質量分析計の改良

① 加速器ターミナル電圧の高圧化と安定化が必要である。

② 現在の<sup>13</sup>Cイオンと<sup>14</sup>Cイオンの交互測定を改め、それぞれのイオンをFaraday cupとHeavy-ion detectorで同時に計測して<sup>14</sup>C/<sup>13</sup>C比を測定する方式を検討する。これによって、現在の測定誤差( $\pm 1\%$ )をかなり小さくできるであろう。

③ <sup>14</sup>C年代測定限界(現在は60,000年BP)を拡張するために測定器自体のバックグラウンドを低くする。

①～②の改良を実行するには長期間の測定中止が問題である。したがって、共同利用を中断することなく実行するには測定法検討のための加速器が必要となるであろう。

###### (b) 試料調製法の改良

① AMS測定時に使用する試料ターゲットとして〔非晶質炭素+Ag粉〕ペレットを用いている。しかし、石墨ターゲットを用いることにより測定時のイオンビーム強度が3～4倍向上することが知られている。従って、試料の石墨化を検討し、測定時間の短縮と精度の向上が期待できる。

② 試料調製に使用する試薬のブランクを少さくする。これは<sup>14</sup>C年代測定限界の拡張ともつながる。

##### 4-2. 他核種の測定

<sup>14</sup>C以外にもAMS測定技術は利用されている。1981年にRochester大学のGove教授は表1のような核種が測定可能であるとしている。したがって、<sup>14</sup>Cの他に長寿命核種の測定を計画すべきと思う。現在の我々の技術からすると、<sup>10</sup>Beと<sup>36</sup>Clが適当である。この他核種の測定は次項の全国共同利用施設への拡充とも関連することもあり、今後委員会で討議を重ねることになるであろう。

表 1

放射性核種	半減期(年)	安定同位体	妨害同重体	測定試料の形	電荷	エネルギー(MeV)	検出限界
<sup>10</sup> Be	$1.6 \times 10^6$	<sup>9</sup> Be	<sup>10</sup> B	BeO	3+	33	$7 \times 10^{-15}$
<sup>14</sup> C	5730	<sup>13,15</sup> C	<sup>14</sup> N*	C	4+	40	$0.3 \times 10^{-15}$
<sup>26</sup> Al	$7.2 \times 10^5$	<sup>27</sup> Al	<sup>26</sup> Mg*	Al	5+	48	$10 \times 10^{-15}$
<sup>33</sup> Si	108	<sup>28,29,30</sup> Si	<sup>33</sup> S	SiO <sub>2</sub>	5+	55	$7 \times 10^{-15}$
<sup>36</sup> Cl	$3.0 \times 10^5$	<sup>35,37</sup> Cl	<sup>36</sup> Ar*, <sup>36</sup> S	AgCl	7+	80	$0.2 \times 10^{-15}$
<sup>129</sup> I	$15.9 \times 10^6$	<sup>127</sup> I	<sup>129</sup> Xe*	AgI	5+	30	$0.3 \times 10^{-15}$

\* 負イオンを作らない

#### 4 - 3. 全国共同利用への拡張

最近、日本の全国的なAMSの利用に対する要望が急増し、多くの学会からの全国共同利用施設への拡張が要請されている。このことに関しては名古屋大学・アイソトープ総合センター・その他関係部局、そして全国の利用希望者の御意見をうかがいながら実現を計りたい。これは、私の全くの私見であるが夢物語に終らせたくないものである。

#### 5. おわりに

名古屋大学天然放射能測定装置を利用して頂き、ここに初めての成果集が発刊されることになった。そして、この10年間の思い出と実用化までの歩みと将来について思いつくまま筆を走らせてしまった。今後の皆さんの有効な利用を願うばかりである。