

名古屋大学タンデトロン2号機の性能と運用

中村 俊夫

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
(Tel:052-789-2578)
(Fax:052-789-3095)
(E-mail:g44466a@nucc.cc.nagoya-u.ac.jp)

キーワード：加速器質量分析，タンデトロン，高輝度負イオン源，同位体同時入射システム，リコンビネーター

1. はじめに

1995-1996年度に名古屋大学年代測定資料研究センターに導入された加速器年代測定システム (Carbon Dating System, Model 4130-AMS, 本報告では第2世代タンデトロンと呼ぶ) とほとんど同一のシステムが, オランダのグローニンゲン大学, ドイツのクリスティアン・アルブレヒト大学 (通称はキール大学) に設置されており, 既に本格的な運用が開始されている (Andrews et al. 1995; van der Plicht et al. 1995; Nadeau et al. 1996). 名古屋大学でも総合調整がまもなく開始され, 今秋にはルーティンの稼働を開始する予定である.

ここでは, 第2世代タンデトロンの特徴を第1世代タンデトロンと比較して紹介すると共に, 第2世代タンデトロンの運用のあり方について述べる.

2. 第2世代タンデトロンAMSシステム

2. 1. 加速器質量分析法の発展の歴史

加速器質量分析法の発展の流れの概略を図1に示す. 1977年に, サイクロトロン加速器の分解能の高い質量弁別効果を利用して, ^{10}Be や ^{14}C の測定が計画された (Muller, 1977). 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加速器質量分析法により初めて ^{14}C 測定 (Nelson et al., 1977; Bennett et al., 1977) が行われた. その後約17年間にわたって, 原子核物理学の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) を改造して加速器質量分析に利用することで, 既に全世界で30を越える施設で加速器質量分析が利用可能となっている. 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2~3MV) を用いた加速器質量分析専用のシステム (タンデトロン加速器質量分析計) 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 (表1). 名古屋大学のタンデトロン分析計はその1台である (Nakamura et al., 1985; 名古屋大学年代測定資料研究センター, 1991~1995; 中村, 1995). この加速器質量分析の専用機はきわめて安定した性能を持ち, これらの数台で全世界の加速器質量分析による ^{14}C 測定データの過半数を生み出していると言って過言ではない. さらに, 1991年以降は, 形状

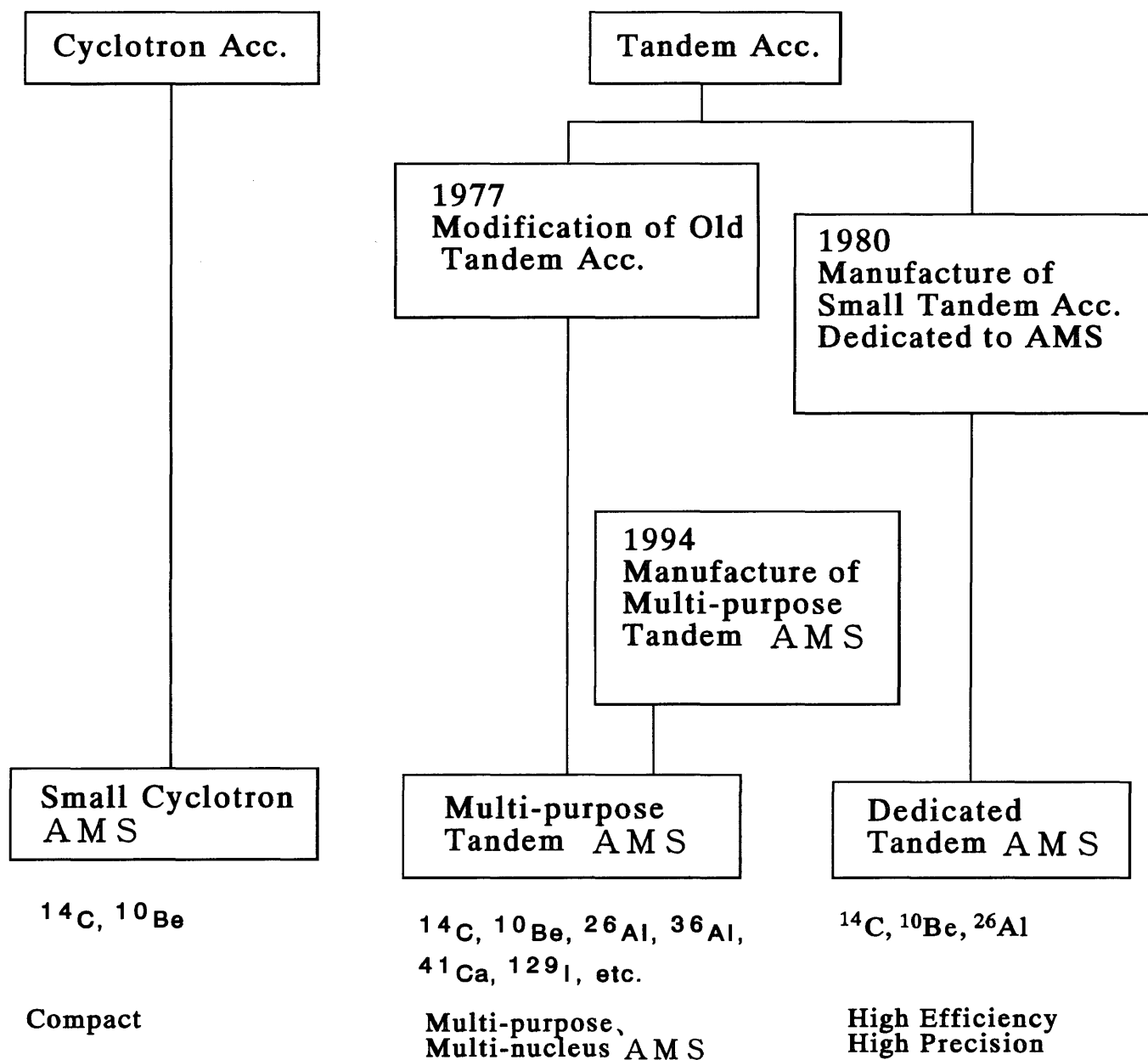


図1 加速器質量分析法の発展の流れ

Figure 1 Development of AMS System

表1 世界におけるタンデトロン加速器質量分析計の設置状況
 Table 2 Tandetron AMS system in the world

1st Generation Tandetron

No.	Installation	Organization	Nuclides measured	Manufactured by
1st	1980	Univ of Arizona, USA	^{14}C	G.I.C.
2nd	1981-82	Nagoya Univ., JAPAN	^{14}C	G.I.C.
3rd	1982	Oxford Univ., ENGLAND	^{14}C	G.I.C.
4th	1982	Univ. of Toronto, CANADA	$^{14}\text{C}, (^{26}\text{Al}), ^{129}\text{I}$	G.I.C.
5th	1983	Gif-Sur-Yvette, FRANCE	$^{10}\text{Be}, ^{14}\text{C}, ^{26}\text{Al}$	G.I.C.

2nd Generation Tandetron

No.	Installation	Organization	Nuclides Measured	Manufactured by
1st	1991	Woods Hole Insti., USA	$^{14}\text{C}, (^{10}\text{Be}, ^{26}\text{Al})$	US-AMS
2nd	1993	Univ. of Groningen, Holland	^{14}C	HVEE
3rd	1995	Univ. of Kiel, Germany	^{14}C	HVEE
4th	1996	Nagoya Univ, JAPAN	^{14}C	HVEE
5th	1997	JAERI, JAPAN	$^{14}\text{C}, ^{129}\text{I}$	HVEE
6th	1998	Seoul Nati. Univ., Korea	^{14}C	HVEE

こそ従来のタンデトロン分析計と同程度の大きさであるが、最新のコンピューター、電気・機械制御の技術を取り入れた高性能の新型タンデトロン分析計（第2世代タンデトロン）が開発されている。

新型機は現在、米国ウッズホール海洋研究所 (Reden *et al.*, 1994)、オランダのグローニンゲン大学 (Mous *et al.*, 1994)、ドイツのキール大学に設置されており、1996年3月末には名古屋大学に設置されたが諸事情により本格的運用が遅れている（表1、写真1）。

また、多目的利用のタンデム加速器においても、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、加速器質量分析を主たる目的として設計・製作されており、 ^{10}Be 、 ^{14}C 、 ^{26}Al 以外にも、 ^{36}Cl 、 ^{41}Ca 、 ^{129}I などさまざまな放射性同位体の測定が計画されている。これは、図1に示した多目的タンデム加速器質量分析計の流れに他ならない。東京大学は、1982年ごろタンデム・バンデグラーフ加速器を改良した加速器質量分析計が開発され、 ^{10}Be 、 ^{14}C 、 ^{26}Al の測定が1991年までルーティンに行われていた。その後1991～1993年にかけて、加速電圧5MVの新型タンデム加速器に更新された (Kobayashi *et al.*, 1994)。この装置は多目的利用の加速器ではあるが、加速器質量分析を主たる目的として設計・製作されたものであり、近々稼働を開始する予定である。日本国内のその他の研究機関による加速器質量分析の研究の進展状況としては、東京大学と同型の加速器質量分析計が国立環境研究所に1995年の秋に設置され、1996年早々からビーム加速テストが開始されている。ごく最近では、 ^{14}C 濃度の測定において0.7%の再現度が達成されており (柴田康行氏からの私信による、1997)、間もなくルーティンの運用が開始されるであろう。また日本原子力研究所では、名古屋大学と同機種のタンデトロン加速器質量分析計の設置を1997年に予定している。このほか、筑波大学 (Nagashima *et al.*, 1994)、京都大学、九州大学でも既存のタンデム加速器を用いた加速器質量分析の研究が推進されており、日本における加速器質量分析の利用は今後一層進展するものと期待される。

3. タンデトロン2号機の特徴

3. 1 高輝度イオン源

イオンビーム入射装置のイオン源は、フィールドにおいて採取されたさまざまな種類の生試料、 ^{14}C 濃度標準体、および ^{14}C を含まない古い炭素試料から調製されたグラファイトターゲットについて、全部で59個が同時に装着できる高輝度セシウムスパッター負イオン源である。59個のターゲットは半径25cmの円盤

(ターゲットホイール)の円周上に装填される (写真2)。グラファイトターゲットから ^{12}C -イオンを $150\mu\text{A}$ 以上のイオン電流強度で出力できるが、通常の測定では、加速器からの漏洩放射線量を押さえるため $20\sim 30\mu\text{A}$ の ^{12}C -電流強度が用いられている。また、直径2mmの試料ターゲットを照射するセシウムイオンビームが、試料ターゲット表面を走査できるように (一カ所だけを長く照射すると、その点に直径0.1mm程度の深い穴がえぐられ、イオンビーム電流出力が次第に弱くなるため)、試料台が上下、左右方向に $\pm 5\text{mm}$ の幅で移動可能であり、その移動はコンピューターで自動制御される。測定の際には、直径2mmの円形のターゲット面上の8点を順に走査して計測が行われる。

こうして、輝度の高い炭素の負イオンが利用できるため ^{14}C の計数率を高くして1試料あたりの測定時間を30分程度に短縮できるし、また59個のターゲットを連続して測定できるため、測定の効率が大幅に向上する。

3. 2 炭素同位体 (^{12}C , ^{13}C , ^{14}C) の同時入射系 (Recombinator)

本システムでは、炭素の安定同位体 ^{12}C 、 ^{13}C 、および放射性同位体 ^{14}C が同時に

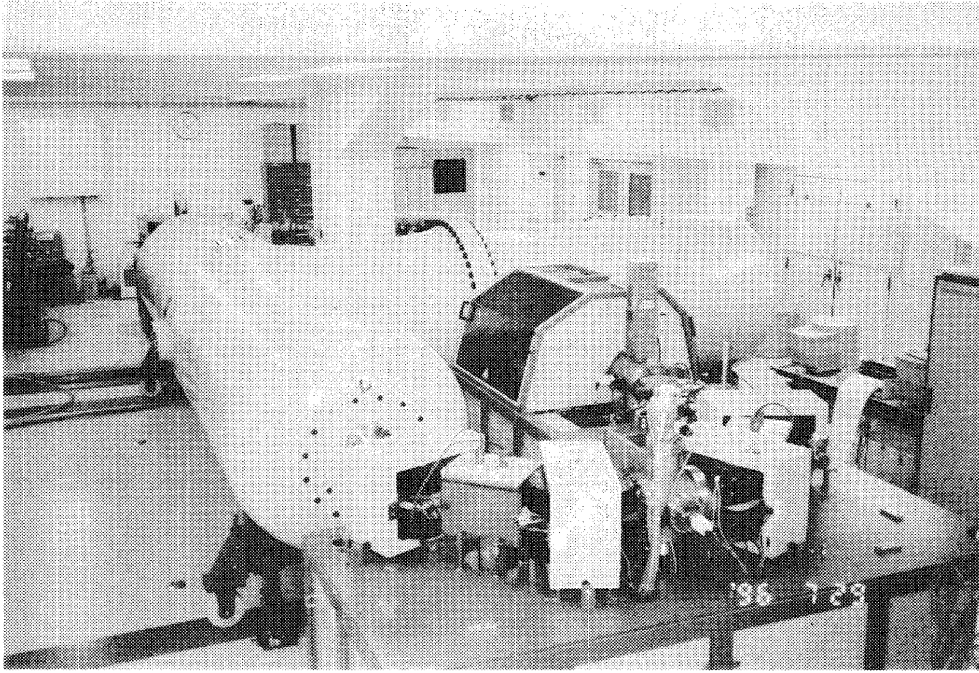


写真1 名古屋大学に設置された第2世代タンデトロン

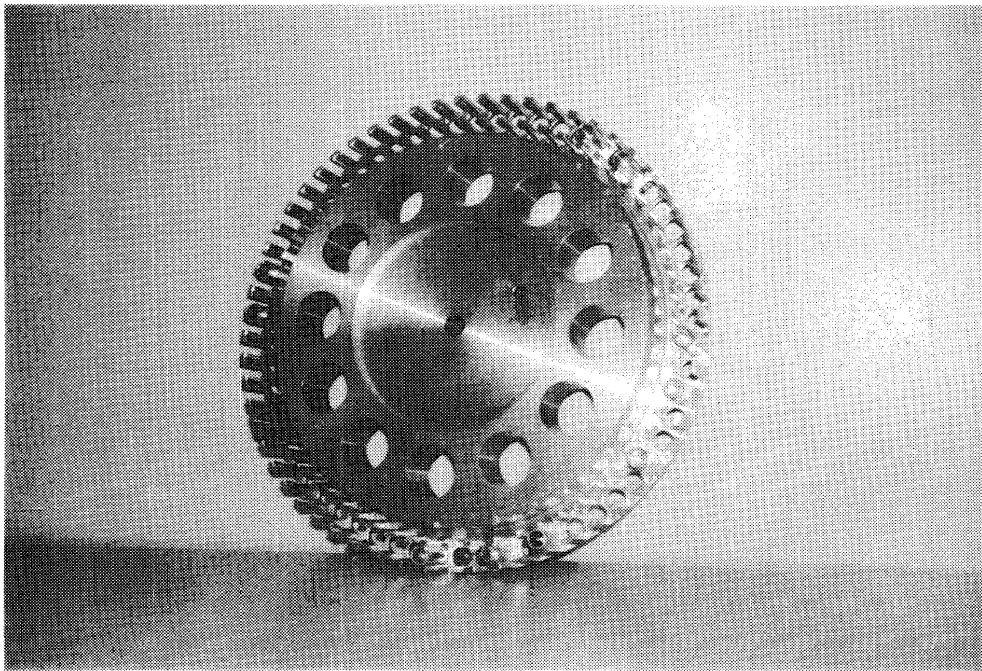


写真2 59個のターゲットが装填できるターゲットホイール

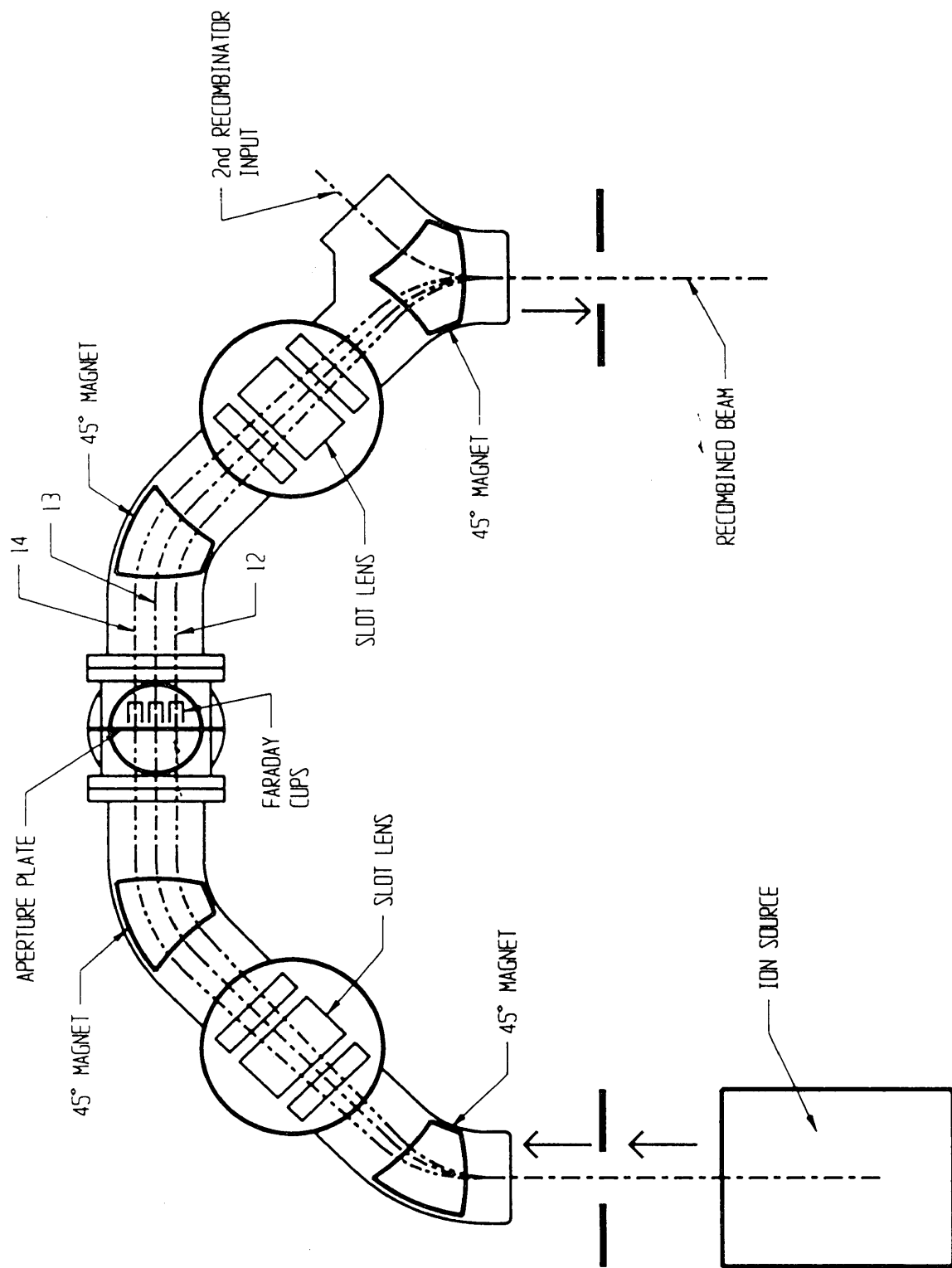


図2 炭素同位体 (12C, 13C, 14C) の同時入射系 (Recombinator)

測定される。すなわち2台の電磁石を一組にして、2組を線対称に配置した "recombinator system"を用いる(図2)。まず2台の電磁石を用いて、イオン源から射出されるイオンビームを質量によって分割し、 ^{12}C -、 ^{13}C -、 ^{14}C -を別々の軌道に分ける。通常 ^{12}C の存在量は ^{13}C の存在量の100倍であり、イオン源で形成された炭素イオンをそのまま加速器に導入すると、加速器の高電圧発生装置に過度の負担がかかり、また加速器からの漏洩線量も増加する。そこで、"recombinator system"を用いるシステムでは、 ^{12}C -、 ^{13}C -、 ^{14}C -の軌道が分かれたあとで、回転円盤スリットを用いて ^{12}C -のビームのみを百分の一の強度に弱める機構 (beam chopper) を用いる。

このように複数の同位体を同時に測定することは、分析装置全体の安定性の変動による同位体比の変動を打ち消すためにきわめて有効であると考えられる。従来一般的な方式では、イオン源の引き出し電圧を高速に切り替えることで、 ^{12}C -、 ^{13}C -、 ^{14}C -の測定が同時にではなく、時間分割法により数ミリ~数百ミリ秒の間隔で交互に測定されている。しかし、同位体比をより正確に測定するには"recombinator system"を用いる同位体の同時測定法が優れている。

測定される炭素同位体比のうち、 $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比は試料ターゲットの炭素同位体分別の効果の補正のために、また試料調製における炭素同位体分別の効果の程度を調査するために、さらに補正された $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比は試料の ^{14}C 年代値の算出のために用いられる。

こうして、本システムでは正確度・安定性の高い ^{14}C 年代測定が可能である。

3. 3 加速器高電圧

加速器の高電圧の発生は、コッククロフト・ワルトン型の交流電源を整流する方式で行われる。従来は、高電圧の高周波交流 (40 kHz) を発生させるために大型の真空管が用いられていたが、本システムではソリッドステート方式となっている。そこで2.5MVの加速電圧を安定して供給できる。2.5MVの加速電圧は、加速された負イオンから正イオンを作る荷電変換において、3価の正イオンが形成される効率が最も高い。従って、 ^{14}C の検出効率が高く、測定時間の短縮が期待できる。

高電圧のコントロールは、発電型高電圧計を用いて高電圧を直接読み取りフィードバックする方式と共に、ビーム位置の読み取りができるファラディカップを分析電磁石の直後に設置して、 $^{13}\text{C}^{3+}$ ビームの位置の変動から高電圧の変動を検出しそれを高電圧の安定化に利用するスリットフィードバックシステムを装備している。こうして、加速電圧がきわめて安定に保たれる ($\Delta V/V \sim 6 \times 10^{-4}$, Mous *et al.*, 1994) ため、 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比測定の再現性や精度の向上が期待できる。

3. 4 重イオン検出器

重イオン検出器は、シリコン表面障壁型検出器とイソブタンガス電離箱型検出器の組み合わせで、検出器へ入射するイオンの全エネルギーおよびエネルギー損失率の測定が高精度でできる。すなわち、検出器に入射するさまざまなバックグラウンドイオンから $^{14}\text{C}^{3+}$ イオンを正確に区別し計数することができる。このため、6万年前を越える古い年代の試料の測定の可能性が期待できる。

3. 5 計算機自動制御

加速器質量分析計は、2台のコンピューターにより遠隔操作・制御される。電源装置のつまみを直接さわることは全くない。2台のコンピューターはそれぞれ、(1)装置の各部に供給される電源電圧・電流の制御、真空装置の制御、真空

バルブの開閉，真空度のモニター，電源電圧・電流モニター，および(2)測定操作の制御や測定データの収集の役割を分担する。また，測定の効率化・省力化を図るために，システムは自動制御でオペレータが居なくても自動運転ができるようになっている。自動運転の際には，各種のインターロック機構が設けられており，不慮の事故が発生した場合，システムの状態を記録したのち，自動的に停止し，さらに電話回線などでオペレーターにサービス要求コールをかける機能が付加できるようになっている。こうして，測定の省力化や高能率化が期待される。以上述べた第2世代タンデトロンの特徴を表1にまとめる。

表2. 第2世代タンデトロンの特徴

-
1. 強力イオン源を装備
 - * 炭素負イオン出力が従来の10倍以上⇒計数率の増大・測定時間の短縮
 - * 59個のターゲットの連続測定が可能⇒測定の効率化

 2. 炭素同位体の同時入射系を装備
 - * Recombinatorを用いた同時入射⇒炭素同位体組成測定の時間的安定性
 - * ^{12}C , ^{13}C , ^{14}C の同時測定 ⇒炭素同位体分別効果の補正が可能となり ^{14}C 濃度測定の正確度が向上

 3. 加速器高電圧
 - * 2.5MVまで付加可能 (C^- ⇒ C^{3+} の収率が最大になる最適電圧) ⇒検出効率の向上，測定の効率化
 - * スリットフィールドバックによる高電圧の安定化 ⇒測定の再現性・精度の向上

 4. 重イオン検出器
 - * $\Delta E - E_{\text{residual}}$ 測定による正確な ^{14}C 識別⇒バックグラウンドの低減による6万年前を越える古い年代の測定

 5. 計算機自動制御
 - * 制御系は光ケーブルを使用⇒高電圧サージによる弱電機器の破損を防止.
 - * 自動測定 ⇒測定の省力化・高能率化

 6. 総合性能
 - * 測定誤差 ⇒ $\pm 20 \sim \pm 30$ 年
 - * 測定能率 ⇒ 3000個/年
-

3. 2. 5. システム全体としての性能

^{14}C 年代測定の諸性能について，第2世代タンデトロン，既存のタンデトロン加速器質量分析計（第1世代タンデトロン），また，放射能測定法による方法を比較して表3に示す。グローニンゲン大学に導入されている第2世代タンデトロンでは，第1世代タンデトロンに比較してイオン源の出力が一桁大きく，かつ ^{14}C の検出効率が高いため，現代のショ糖から調製されたグラフィイトターゲットについて，約20分間の測定で20万個を越える ^{14}C が計数される。従って，年代

値にして±20年の統計誤差は容易に達成できる。

また、コンピューターによる測定操作の自動化が安心して行えるようになれば、年間3000個程度の試料の¹⁴C測定が可能であるとされている (Mous *et al.*, 1994) .

表3 第1世代, 第2世代タンデトロンと放射能測定による¹⁴C年代測定の性能比較
Table 3 Comparison of performances on ¹⁴C dating with the 1st- and 2nd-Generation Tandetron systems and radioactivity measurements

Item	2nd-Gen. Tandetron AMS at Nagoya Univ.*	1st-Gen. Tandetron AMS at Nagoya Univ.	CO ₂ gas proportional counter at Isotope Association of Japan
Amount of C necessary	0.05~1 mg	0.2~1 mg	2.2 g
Measurable oldest age	ca. 60,000 yr BP	ca. 60,000 yr BP	35,000~40,000 yr BP
Precision	±20~±30 yr	±60~±80 yr	±80 yr
Counting time	20~40 min. (both sample and standard)	2~4 hr	16~20 hr (sample only)

*) Expected performances of the second-generation Tandetron.

4. 第2世代タンデトロンの運用案

本稿で紹介したように、第2世代タンデトロンが年間3000個の試料の¹⁴C測定的能力を持つとはいっても、それだけの個数の試料調製の実施は容易なことではない。採取された生試料の処理には最低でも一週間を要する。この処理を慎重に行っておかないと測定結果として得られる¹⁴C濃度あるいは¹⁴C年代値が意味するものが不明確になる。当センターにおける現状の試料調製施設およびマンパワーでは、処理可能な試料数はせいぜい年間1000個程度であろう。学内の利用機関で年間1000個程度の試料調製が行われるとしても、残り1000個分は、学外に門戸を開くことが考えられる。すなわち、フィールドで採取された生試料ではなく、試料調製が終わったグラファイトターゲットに限って、ある条件のもとに、他の機関からの測定依頼を受け入れることが検討されることになろう。

実際、第1世代タンデトロンの利用において、共同研究として、学外の研究機関において調製されたグラファイトターゲットが測定されている。学外者の共同研究利用の詳細については、本報告に掲載されている中村ほかによる報告「名古屋大学タンデトロン加速器質量分析計の現状(1996年度)とタンデトロン2号機の設置」を参照されたい。

参考文献

- Bennett, C.L., Beukens, R.P., Clover, M.R., Gove, H.E., Libbert, R.B., Litherland, A.E., Purser, K.H. and Sondheim, W.E.: Radiocarbon dating using electrostatic accelerators: negative ions provide the key. *Science*, **198**, 508-510 (1977)
- Kobayashi, K., Hatori, S. and Nakano, C.: AMS system at the University of Tokyo. *Nucl. Instrum. and Methods*, **B92**, 31-34 (1994)
- Mous, D.J.W., Gott dang, A. and van der Plicht, J.: Status of the first HVEE 14C AMS in Groningen. *Nucl. Instrum. and Methods*, **B92**, 12-15 (1994)
- Muller, R.A.: Radioisotope dating with a cyclotron. *Science*, **196**, 489-494 (1977)
- Nagashima, Y., Shioya, H., Tajima, Y., Takahashi, T., Kaikura, T., Yoshizawa, N., Aoki, T. and Furuno, K.: An accelerator mass spectrometry system with the 12 UD Pelletron at the University of Tsukuba. *Nucl. Instrum. and Methods*, **B92**, 55-57 (1994)
- 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～VI** (1991～1995)
- 中村俊夫：加速器質量分析（AMS）法による¹⁴C年代測定の高精度化および正確度向上の検討. 第四紀研究, **34**, 173-185 (1995).
- Nakamura, T., Nakai, N., Sakase, T., Kimura, M., Ohishi, S., Taniguchi, M. and Yoshioka, S.: Direct detection of radiocarbon using accelerator techniques and its application to age measurements. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **24**, 1716-1723 (1985)
- Nelson, D.E., Korteling, R.G. and Stott, W.R.: Carbon-14: direct detection at natural concentrations. *Science*, **198**, 507-508 (1977).
- Reden, K.F., Schneider, R.J., Cohen, G.J. and Jones, C.G.: Performance characteristics of the 3MV tandetron AMS system at the National Ocean Sciences AMS facility. *Nucl. Instrum. and Methods*, **B92**, 7-11 (1994)

Performance of the Second-Generation Tandetron AMS and Its Usage for Researches

Toshio NAKAMURA¹⁾

- 1) Dating and Materials Research Center, Nagoya University
Chikusa, Nagoya 464-01 Japan
Tel:+81-52-789-2578
Fax:+81-52-789-3095
E-mail:g44466a@nucc.cc.nagoya-u.ac.jp

Key words:accelerator mass spectrometry (AMS), tandetron,
high-intensity cesium sputter negative ion source,
simultaneous injection system of isotopes,
recombinator system

We have introduced a second-generation Tandetron (carbon dating system, Model 4130-AMS) which was manufactured by High Voltage Engineering Europe (HVEE) BV, the Netherlands. Two sets of the similar HVEE AMS system have been installed successfully at University of Groningen, Holland, and at University of Christian-Albrechts, Kiel, Germany. They have already proved excellent performances in carbon-isotope-ratio measurements: reproducibility of $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratio as $\pm 0.1\%$; error and reproducibility of $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratio as $\pm 0.15-0.22\%$ and $\pm 0.3\%$, respectively.

Main improvements of the 2nd-generation Tandetron compared with the old Tandetron are: (1) a high intensity cesium sputter ion source is equipped with the new system, so that the ^{14}C counting rate is almost one order higher than that for the old system. In addition, since up to 59 targets can be loaded at a time, measurements can be conducted more efficiently. (2) carbon isotopes $^{12}\text{C}^-$, $^{13}\text{C}^-$ and $^{14}\text{C}^-$ can be injected into a tandem accelerator

simultaneously, by using a recombinator system, which will archive high accuracy measurements of the carbon isotope ratio. (3) the terminal voltage of the accelerator is 2.5 MV, which gives the maximum yield in producing C^{3+} from C^- in the charge exchange process of the tandem accelerator. In addition, a slit feedback system with a position sensitive Faraday cup to monitor the energy of accelerated $^{13}C^{3+}$ ions stabilizes terminal voltage, which provides us highly stable isotope-ratio measurement. (4) a heavy ion detector measures E and E_{residual} of incoming ions, to separate $^{14}C^{3+}$ ions from various background ions. Provided that the background ions are rejected efficiently, ^{14}C ages older than 60,000 will be measurable with this system. (5) A computer program is equipped with the system which controls the carbon-isotope-ratio measurement for multi-samples automatically. This provides us a high-efficient measurement without any hard works of operation staff.

As the results of those improvements stated above, the highest performances in the ^{14}C measurements with the new Tandetron is: (1) a measurement error of ^{14}C age can be as small as ± 20 years with a measurement time of a few tens of minutes for a carbon sample of less than 1 mg; (2) a full automatic measurement can be routinely performed; (3) more than 3,000 samples can be measured annually.

The new system will be used efficiently and speedy by many domestic researchers as well as by those outside of the university, if graphite targets are provided to us which are prepared from raw carbonaceous materials by researchers themselves.