

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

中村俊夫	名古屋大学年代測定資料研究センター ¹⁾
池田晃子	名古屋大学年代測定資料研究センター ¹⁾
太田友子	名古屋大学年代測定資料研究センター ¹⁾
南 雅代	名古屋大学年代測定資料研究センター ¹⁾
足立 守	名古屋大学年代測定資料研究センター長 ¹⁾ (名古屋大学理学研究科地球惑星科学専攻) ²⁾

1, 2) 〒464-01 名古屋市千種区不老町

1) Tel:052-789-2578, Fax:052-789-3095

2) Tel:052-789-2530, Fax:052-789-

キーワード：加速器質量分析，タンデトロン，放射性炭素，¹⁴C年代測定

1. はじめに

名古屋大学にタンデトロン加速器質量分析計が1982年3月に導入されて、はや15年が経過した。この間、¹⁴Cをトレーサーとした環境¹⁴C濃度分布に関する研究及びさまざまな環境試料の¹⁴C年代測定に基づく研究が行われ、1996年末の測定数は6,600個を越える。タンデトロン分析計は、学内共同利用機器として研究・教育に利用され、また、国内やロシア、マレーシア、ブラジル、カナダを始めとする諸外国の研究者の共同研究の場としても盛んに利用されている。現在までの共同利用研究として、¹⁴C年代測定では、地質学、堆積学、古環境学、海洋学、地震学、活断層科学、雪氷学、水理学、考古学、人類学、文化財科学などの分野で、また環境¹⁴C濃度測定では、地球化学、環境科学、海洋科学、木材科学、保健物理学、食物科学などきわめて幅広い分野で利用されている(図1)。これらの研究成果は、名古屋大学加速器質量分析計業績報告書I(1989)、II(1991)、III(1992)、IV(1993)、V(1994)、VI(1995)、VII(1996)で報告されている。

本報では、名古屋大学タンデトロン加速器年代測定施設のこれまでの利用の概要と施設の現状について報告する。

2. 名古屋大学タンデトロン加速器質量分析計の運転・利用の状況

2. 1 専従教職員・学生

平成9年2月においてタンデトロン加速器実験室に所属する教職員・研究員及び学生を示す。カッコ内は所属、専門分野、主たる研究分野などを示す。

職員	中村 俊夫	助教授	(物理学→地球化学・地質年代学)
	池田 晃子	技官	(土壌学・同位体地球化学)
	南 雅代	非常勤研究員	(地球化学)
	太田 友子	技術パート	(6時間×12日/月)
	熊澤 加代	事務パート	(5時間×12日/月)
学生	奥野 充	D 3	(大学院人間情報学研究科：火山学・テフラ編年) (日本学術振興会特別研究員)
	小田 寛貴	D 2	(大学院理学研究科：放射化学・古文化財科学)

¹⁴C年代測定

核実験起源¹⁴Cトレーサー

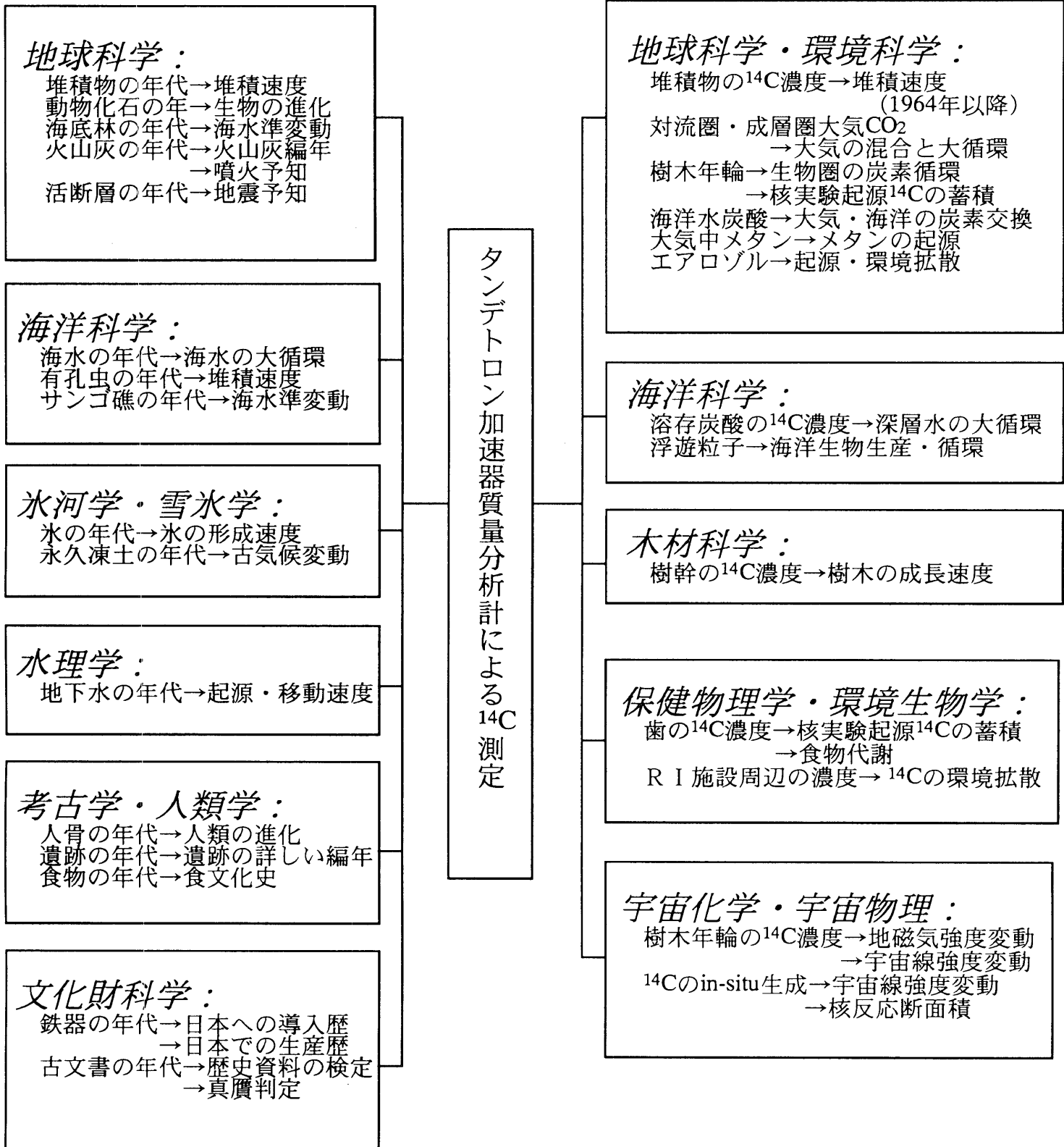


図1. タンデトロン加速器質量分析計による¹⁴C測定の学際利用

青木 浩 M2 (大学院理学研究科：地質学・同位体地球化学)
 伊藤 誠介 M1 (大学院人間情報学研究科：核物理学・環境放射能)

2. 2 共同利用体制

タンデトロン分析計は、本来学内共同機器として学内の研究者に利用されている。その利用形態としては、当センターで定期的に行われる試料調製・測定操作の講習会で利用者が操作方法を実習し、自身の試料を自身で測定する場合が大半である。少数例ではあるが、試料を当センター職員に預けて測定を依頼する場合がある。

また、学外の利用希望者についても、学内の教官と共同研究を行う形で受け入れられている。測定を依頼される場合が多いが、当センターに出向いて試料調製を実施する（測定操作は職員が実施）場合もある。

1996年度におけるタンデトロン分析計の学内共同利用の利用申請者とその研究課題名を表1に示す。学外者の試料を含めて、学内共同利用としてさまざまな研究に利用されていることがわかる。

表1. 学内共同利用研究の申請者と研究課題名 (1996年度)

大気水圏科学研究所	
松本英二	東シナ海縁辺部における堆積過程
吉田尚弘	シベリアのCH ₄ の同位体組成
中塚 武	海溝域における深層沈降粒子の起源の解明
増澤敏行	相模湾深海シロウリガイ群集の地球化学的研究
加藤喜久雄	後氷期における中央アジア地域の植生変化 (学外共同研究者：京都大学農学部 石田紀郎)
工学部	
飯田孝夫	大気中メタンの動態に関する研究
平澤政広	中世・古代鉄器の年代測定 (学外共同研究者：東北大学名誉教授 井垣謙三)
理学部	
熊谷博之	津波堆積物から探る過去の東海沖地震
小澤智生	毛サイ化石試料の年代測定
小澤智生	大阪湾海底の最上部更新統一完新統の地質学的・古環境学的研究 (学外共同研究者：琉球大学教養学部 黒田登美雄)
小澤智生	八重山層群に発達する第四系の研究
文学部	
大平明夫	沖積層の堆積過程に関する研究
大平明夫	沖積低地の地形発達および地形環境の変遷
海津正倫	完新世における沖積低地の地形発達
渡邊 誠	日韓先史・原史時代における年代比較 (学外共同研究者：韓国木浦大学博物館 李栄文) (学外共同研究者：韓国東亜大学博物館 李東注)
渡邊 誠	食文化史の実証的研究 (学外共同研究者：東北大学 須藤 隆)
中川原育子	アフガニスタンテラコッタ像の年代について
中川原育子	キジル石窟壁画の年代に関する考察
山本直人	縄文時代の植物質食糧に関する研究

山本直人 縄文時代の土器編年に関する研究

アイソトープ総合センター

西澤邦秀 人歯牙コラーゲン中の¹⁴C濃度の測定

年代測定資料研究センター

中村俊夫 大気中二酸化炭素の¹⁴C濃度測定

中村俊夫 火山噴火史の研究

中村俊夫 バイカル湖底堆積物の¹⁴C年代測定

中村俊夫 文化財試料の¹⁴C年代測定

中村俊夫 土壌有機物の¹⁴C年代測定による火山噴火史の研究

中村俊夫 尾瀬泥炭層の¹⁴C年代測定

(学外共同研究者：東京農工大 赤木 右)

中村俊夫 シベリア・永久凍土層の¹⁴C年代測定

(学外共同研究者：北海道大低温研 福田正己)

中村俊夫 海洋底堆積物の極微量炭酸塩有孔虫殻の¹⁴C年代測定

(学外共同研究者：北海道大地球環境研究科 村山雅史)

池田晃子 米国・サンフランシスコ湾周辺の活断層の挙動

学外研究者によるタンデトロン分析計の利用としては、学外研究者が名古屋大学に出向いて試料調製を行う場合(表2)と、試料調製を自身の所属研究室にて行う場合(表3)がある。当センターでは、実験室のスペースが限られており、今のところ表4に示す試料調製設備しか用意されておらず、これでは、当センターに所属する研究者・学生、および学内の利用者の利用時間でほぼ満杯の状態である。今後は、試料調製を学外研究者自身の所属研究室にて行う利用形態の普及が拡大することが望まれる。

表2 学外の利用例(その1)

1. 試料調製を名古屋大学にて行う

期 間	所 属	作 業 内 容
'94/05	北海道大学理学部	貝化石の試料調製
'94/07	金沢大学理学部	サンゴの試料調製
'95/06	東京大学原子力研究総合センター	試料処理一般の実習
'95/07	東北大学理学部	貝化石の試料調製
'95/08	京都大学理学部	木片の試料調製
'95/08	金沢大学理学部	有孔虫化石の試料調製
'95/08	東北大学理学部	湖底堆積物の試料調製
'96/05	動力炉・核燃料開発事業団東濃地科学センター	地下水の試料調製
'96/07	東京農工大・農学部	泥炭の試料調製
'96/08	ソウル国立大学・海洋学科	海水の試料調製

'96/10	日本原子力研究所 (財) 日本海洋科学振興財団	試料処理一般の実習
'96/12	大阪市立大学・理学部	地下水の試料調製
'96/12	琉球大学・理学部	有孔虫の試料調製

表3 学外の利用例 (その2)

2. 試料調製をそれぞれの研究施設にて行う

期 間	所 属	試料の種類
'94年度	北海道大学	有孔虫, 海底堆積物など
	・大学院地球環境科学 国際日本文化研究センター	湖底堆積物中の植物片
'95年度	北海道大学	有孔虫, 海底堆積物など
	・大学院地球環境科学 ・低温科学研究所	湖底堆積物中の植物片
	国際日本文化研究センター	
'96年度	北海道大学	有孔虫, 海底堆積物 など
	・大学院地球環境科学 ・低温科学研究所	湖底堆積物中の植物片
	国際日本文化研究センター	

表4 名古屋大学年代測定資料研究センターに整備されている試料調製システム

(1) 炭酸塩処理ライン (5 試料並列)	1 式
(2) 炭素試料の燃焼で生成したCO ₂ の精製ライン	2 式
(3) 大気からCO ₂ の分離ライン	1 式
(4) CO ₂ のグラファイト化ライン (2 試料並列)	1 式
(5) グラファイト化用の鉄触媒再還元ライン (9 試料並列)	1 式
(6) 有機物試料燃焼用封じきりライン (1 1 試料並列)	1 式
(7) 海水からCO ₂ の分離ライン (開発中)	1 式

2. 3 名古屋大学タンデトロン加速器質量分析質量分析計の諸性能

現在における, タンデトロン分析計の諸性能は以下のとおりである. 炭素をグラファイト化 (Kitagawa *et al.*, 1993) したターゲットを用いるようになって, グラファイト化を行うためのCO₂の量として0.2~1 mgで¹⁴C測定が可能となった. 測定可能な古い年

代の限界は4～5万年前である。測定誤差は、グラフィットターゲットを用いると、数千年前の比較的若い試料については、 $\pm 0.8 \sim \pm 1.0\%$ (^{14}C 年代値の誤差で $\pm 60 \sim \pm 80$ 年) が2～3時間の測定で達しうる。測定時間を10時間程度に延ばせば、 $\pm 0.5\%$ (± 40 年) 程度まで小さくできるが、実質的にはこれが限界であろう (中村、1995)。

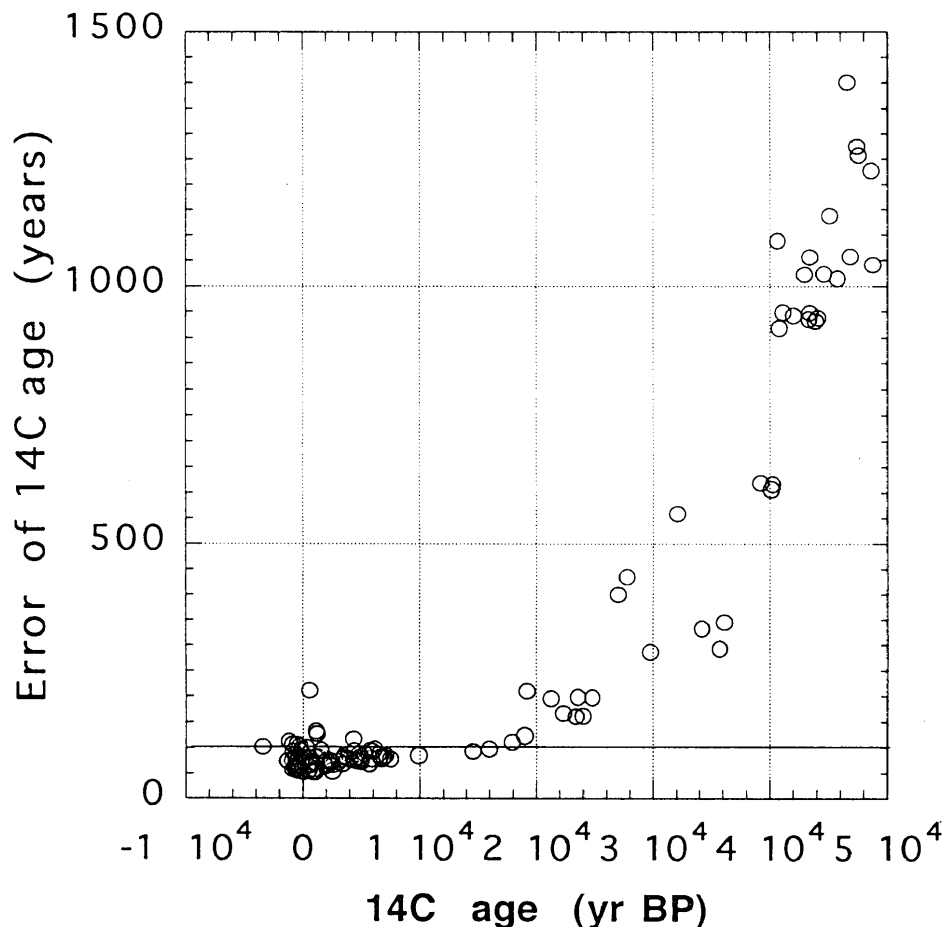


図2 タンデトロン分析計で測定した ^{14}C 年代値と誤差 ($\pm 1\sigma$) の関係

図2に、最近測定した試料について、 ^{14}C 年代値とその誤差を示した。2万年前より若い試料については、1標準偏差 ($\pm 1\sigma$) でほぼ ± 100 年以下 ($\pm 60 \sim 80$ 年) の誤差で年代測定が可能である。一方、2万年前を越える古い試料では年代値が大きくなるに従って、誤差も次第に大きくなる。

2. 4 タンデトロン分析計を用いた測定数・測定時間

^{14}C 濃度測定(NUTE-)、 ^{14}C 年代測定(NUTA-)及び分析計の調整のためのテスト測定と ^{14}C バックグラウンド測定を含めた測定試料総数の積算を図3に、毎年の測定数の変動を図4に示す。また、図5には、各年度に分析計が使用された積算日数および積算時間を示す。1995年度は、前の年度に比較して、使用日数が70日、使用時間が1400時間減少したが、この間の測定試料数はほとんど変化がない。これは、グラフィット化したターゲットの利用がルーティンに用いられて1試料あたりの測定時間が短縮されたためである。また、分析計の測定準備の立ち上げ時間に平均3時間を要する。この時間を無駄にしないように、効率よく試料の測定を進めたことが使用時間の短縮に寄与したと考えられる。以上のように、タンデトロン分析計を用いた共同利用研究は、近

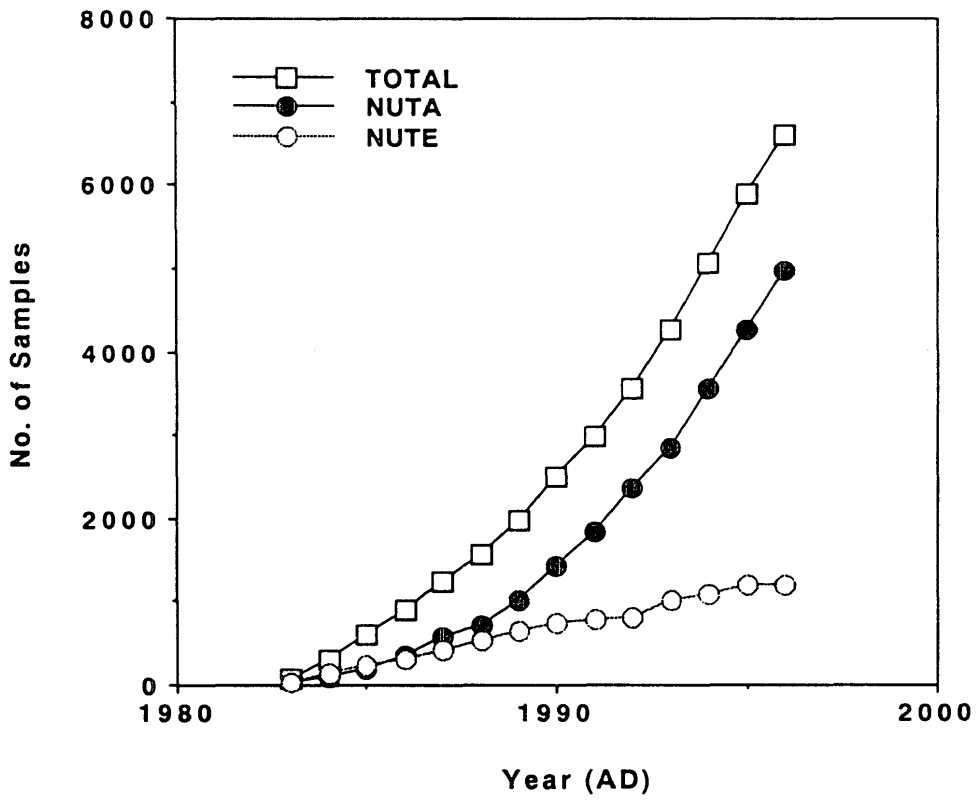


図3 タンデトロン分析計による¹⁴C測定数の積算
 NUTA：¹⁴C年代測定試料；NUTE：¹⁴C濃度測定試料；
 TOTAL：測定試料の総和

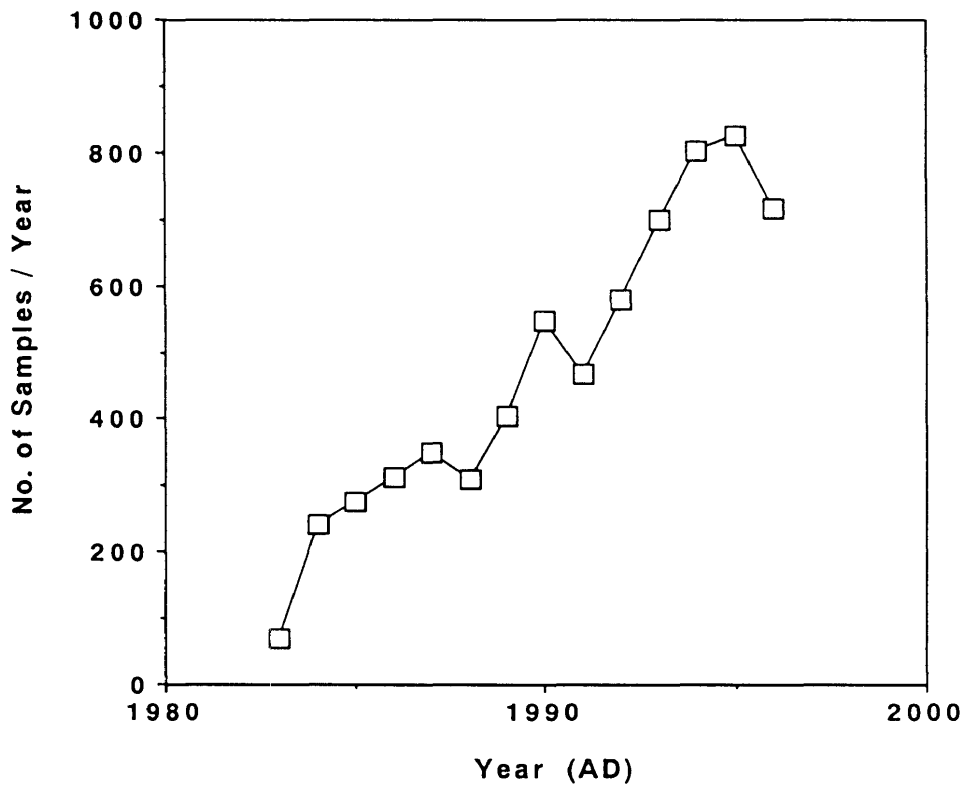


図4 タンデトロン分析計による¹⁴C測定数の経年変化

Operations of the Tandetron AMS at Nagoya Univ.

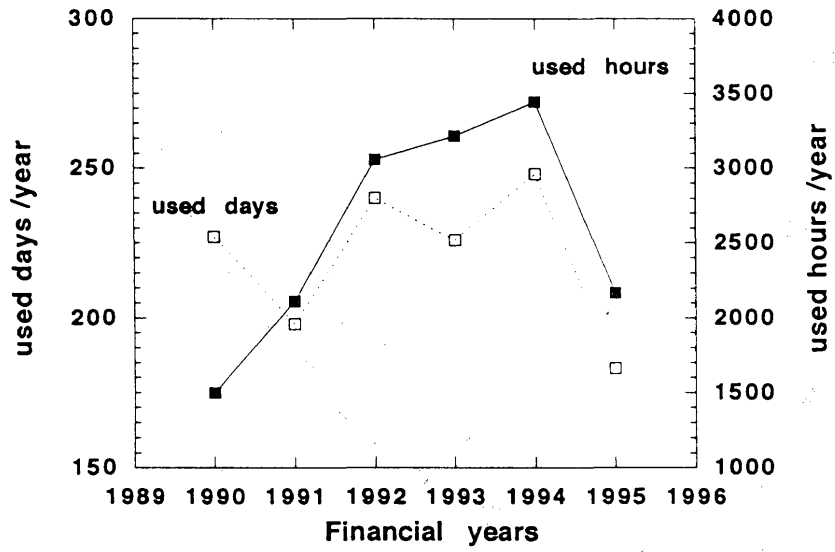


図5 タンデトロン分析計の年度毎の使用日数および使用積算時間の変化

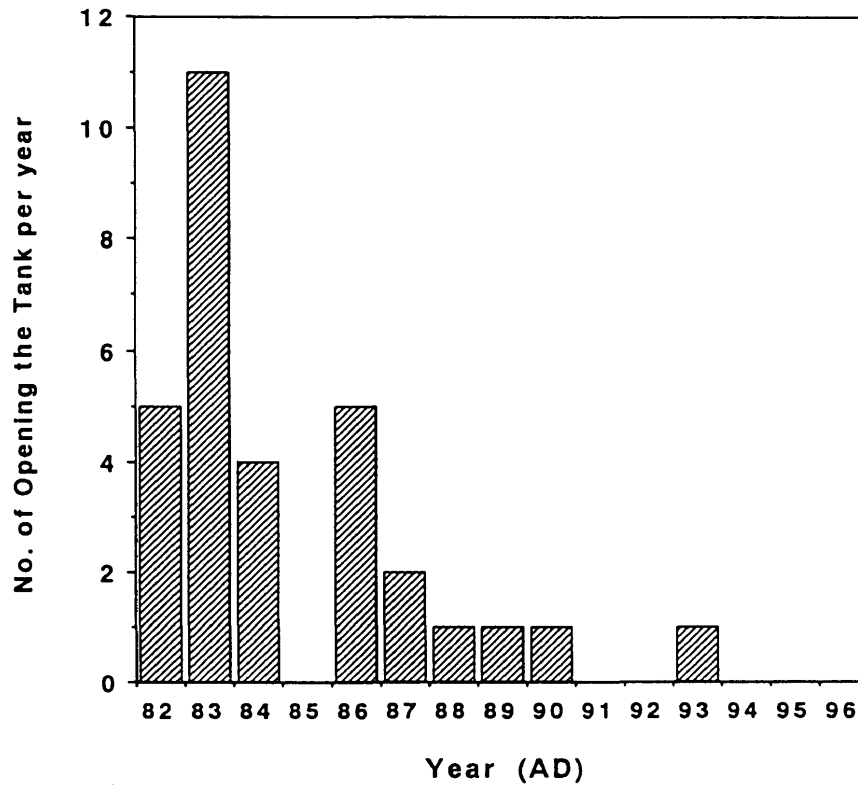


図6 タンデトロン分析計の加速器部保守のための加速器タンク開閉回数の経年変化

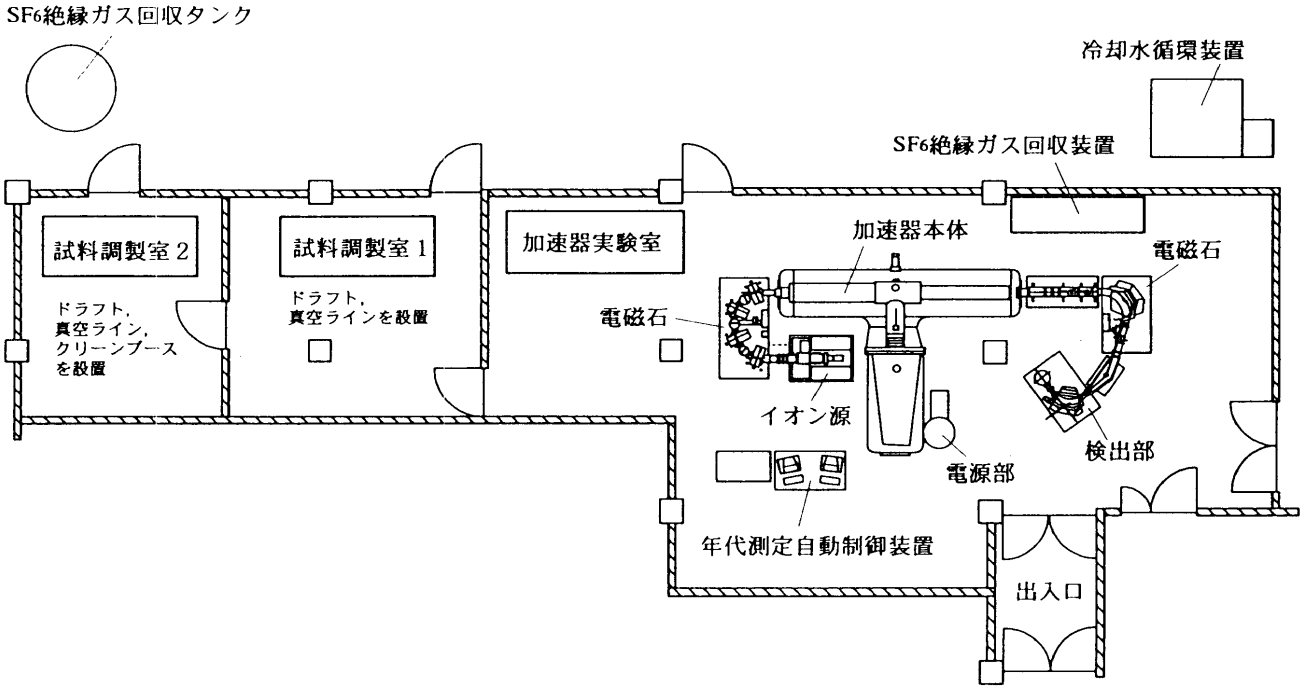


図7 名古屋大学における加速器年代測定システム（タンデトロン2号機）の設置施設および試料調製実験室の配置

加速器質量分析法によるC-14年代測定

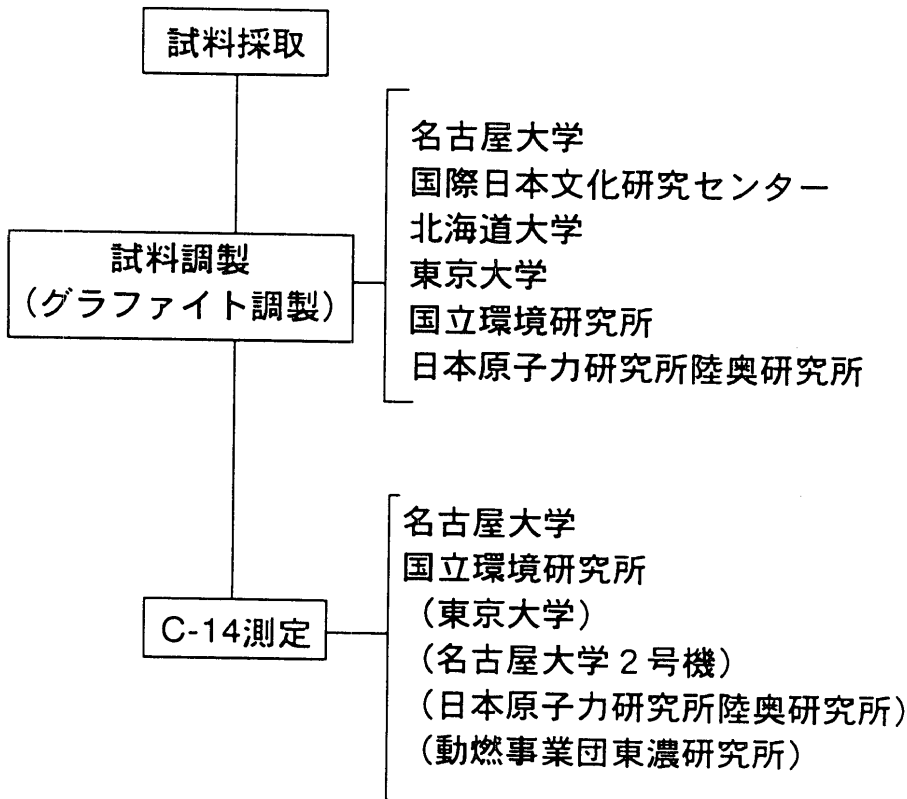


図8 日本国内において、加速器質量分析法による¹⁴C年代測定が可能な施設、及び試料調製が可能な施設

年益々活発に行われていることがわかる。また、加速器の修理・保守のために加速器のタンクを開閉した回数を図6に示す。ここ数年は加速器のタンクの開閉はほとんどなく、加速器が安定して作動していることがわかる。

これまでの年代測定の実績からすると、年間あたりの測定可能な試料数を規定するのは分析計の使用時間ではなくむしろ、試料処理、測定用ターゲットの製作に要する手間、時間である。今後処理数を増やすには、試料処理の方法や人手を確保することが不可欠である。

3. タンデトロン加速器質量分析計2号機の導入

名古屋大学では、平成7年度に新たに加速器質量分析専用の加速器を導入した(図7)。High Voltage Engineering Europa B.V. (Amsterdamseweg 63, 3812 RR, Amersfoort, the Netherlands)製のCarbon Dating System (Model 4130-AMS)で、日本の代理店は丸文株式会社である。米国wood-hole海洋研究所、オランダ・グローニンゲン大学、ドイツ・キール大学に続く世界の第4号機である。諸事情により、装置が完全に組みあがるのが1997年3月末頃であり、 $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比の測定調整が同年夏頃、 ^{14}C 年代測定のルーティンの稼働を開始するは1997年の末以降になると予想される。また、日本原子力研究所むつ事業所(青森県むつ市)では、同型のタンデトロン分析計が平成8年度末に導入される。

4. おわりに

東京大学や国立環境研究所に導入された米国NEC社製のAMS用タンデム加速器(SD-15H, Kobayashi et al, 1993)でもオランダHVEE社製のAMS専用のタンデトロン加速器(4130-AMS, Mous et al, 1993)でも、イオン源の能力が格段に強化され、グラフアイトターゲットで最大 $150\mu\text{A}$ の出力があるという。また、ビーム光学系も整備されてイオンの輸送効率も格段によくなっている。従って、AMS専用の両装置では、統計誤差は比較的簡単に $\pm 0.5\%$ 以下にできるであろう。すると、AMSによる同位体存在比の測定の精度を決めるのは、マシンの時間的安定性である。マシンの安定性は、同一試料の測定の再現性を調べることでわかるが、このテストはきわめて重要である。ルーティンの運転で、どの程度の再現性が得られるのか今後の楽しみである。

図8に、日本国内において、加速器質量分析法による ^{14}C 測定が可能な施設(カッコで示した施設は目下立ち上げの調整中)、及び試料調製が可能な施設を示した。今後、 ^{14}C 測定が可能な施設及び試料調製が可能な施設が独立して増えれば、国内における ^{14}C 測定利用・研究はますます発展するものと期待されるし、 ^{14}C データのユーザーにとっては利用がより容易になるであろう。

参考文献

アイソトープ総合センター：名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, I (1989).

Kitagawa, H., Masuzawa, T., Nakamura, T. and Matsumoto, E.: A batch preparation method of graphite targets with low background for AMS ^{14}C measurements. *Radiocarbon*, 35, 295-300 (1993)

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., Gottdang, A. and van der Plicht, J.: Status of the first HVEE ^{14}C AMS in Groningen. *Nucl. Instrum. and Methods*, B92, 12-15 (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 ^{14}C 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).

Status Report of ^{14}C Measurements with a Tandetron AMS at Nagoya University in the Year of 1996 and Installation of a Second-Generation High-Performance AMS System

Toshio NAKAMURA¹⁾, Akiko IKEDA¹⁾, Tomoko OHTA¹⁾,
Masayo Minami¹⁾ and Mamoru ADACHI^{1,2)}

Masayo Minami

- 1) Dating and Materials Research Center, Nagoya University
Chikusa, Nagoya 464-01 JAPAN
Tel:+81-52-789-2578, Fax:+81-52-789-3095
- 2) Earth and Planetary Sciences, School of Science
Nagoya University
Chikusa, Nagoya 464-01 JAPAN
Tel:+81-52-789-2530

Key words: accelerator mass spectrometry (AMS), tandetron, radiocarbon (^{14}C), ^{14}C dating

A Tandetron accelerator mass spectrometer (AMS), an apparatus dedicated to radiocarbon (^{14}C) measurements with high sensitivity, manufactured by General Ionex Corporation, USA, has been used since 1983 to measure ^{14}C concentrations of environmental samples as well as ^{14}C dates of geological and archeological materials at the Dating and Materials Research Center (DMRC), Nagoya University. No serious problem has occurred with the machine, which resulted in that 708 samples were measured in 1996, and totally 6,300 samples in various fields have been measured since the installation of the machine.

Though the Tandetron AMS has been operated intensively, the number of samples analyzed annually is rather limited to several hundreds which is far smaller than the number of samples brought to the DMRC by many users from various research fields, mainly owing to lower negative current intensity from an ion source (HICONEX-844, modified for loading 18 targets at a time), as well as a rather low throughput of the total system. We could have fortunately introduced a new-generation Tandetron which is manufactured by High Voltage Engineering Europe (HVEE) BV, the Netherlands. Two sets of similar HVEE AMS system have been installed successfully at University of Groningen, Holland, and at University of Christian-Albrechts, Kiel, Germany. They have already shown excellent performances in carbon-

isotope-ratio measurements: reproducibility of $^{12}\text{C}/^{13}\text{C}$ 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.

We are planning to perform high accuracy and high precision ^{14}C dating of mainly cultural property materials of historical age, archeological and geological samples, by using the new-generation machine.