

名古屋大学タンデトロン1号機の共同利用実績と現状

中村俊夫¹⁾・小田寛貴¹⁾・池田晃子¹⁾・丹生越子¹⁾・南 雅代²⁾・吉岡茂雄¹⁾
太田友子¹⁾・高橋 浩²⁾・足立 守²⁾

- 1) 名古屋大学年代測定資料研究センター
〒464-8602 名古屋市千種区不老町
Tel:052-789-2578, Fax:052-789-3095
中村の e-mail : g44466a@nucc.cc.nagoya-u.ac.jp
home page:<http://dmrc1.eps.nagoya-u.ac.jp>
- 2) 名古屋大学理学研究科地球惑星科学専攻
〒464-8602 名古屋市千種区不老町
Tel:052-789-2527, Fax:052-789-3092

1. はじめに

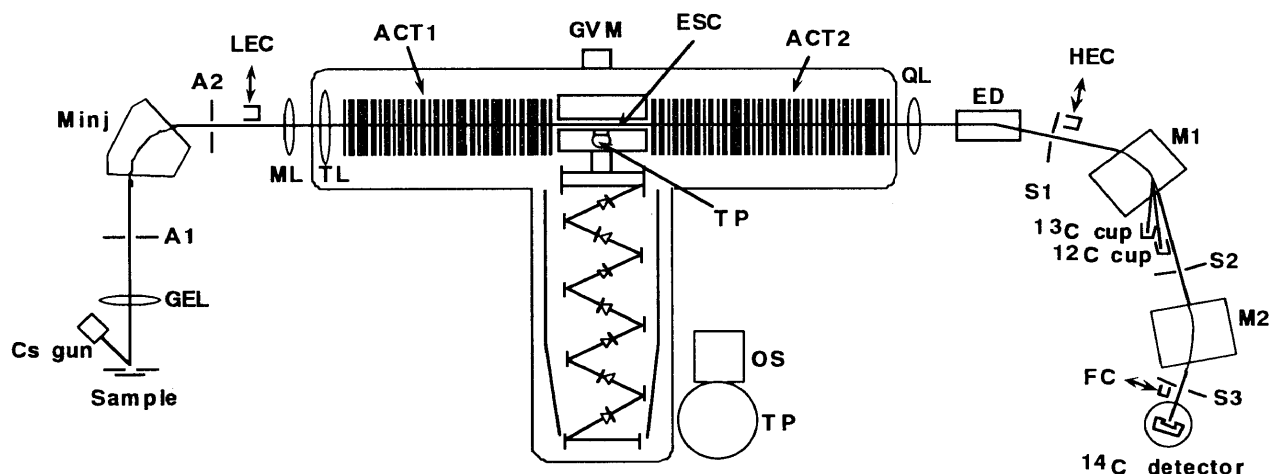
タンデトロン加速器年代測定システム（加速器質量分析計）1号機は名古屋大学に1982年3月に導入された。その後、¹⁴Cをトレーサーとした環境¹⁴C濃度分布に関する研究及びさまざまな環境試料の¹⁴C年代測定に基づく研究が行われてきた。タンデトロン年代測定システムは、学内共同利用機器として研究・教育に利用され、また、国内や中国、韓国、ロシア、マレーシア、ブラジル、カナダ、スーダンを始めとする諸外国の研究者の共同研究の場としても盛んに利用されている。現在までの共同利用研究として、¹⁴C年代測定では、地質学、堆積学、古環境学、海洋学、地震学、活断層科学、雪氷学、水理学、考古学、人類学、文化財科学などの分野で、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。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)、Ⅷ(1997)、Ⅸ(1998)、Ⅹ(1999)で報告されている。

また、最近導入されたタンデトロン加速器年代測定システム2号機は再現性のテストと共に試料のテスト測定が行われている。本報では、名古屋大学タンデトロン加速器年代測定装置1号機のこれまでの利用の概要と施設の現状、および将来の利用構想について報告

する。最新型 2 号機の現状については、丹生の報告を参照されたい。

2. 名古屋大学タンデトロン加速器年代測定システム 1 号機の運転・利用の状況

名古屋大学に 1981-1982 年に設置されたタンデトロン加速器年代測定システム（加速器質量分析計）1 号機の構成を図 1 に示す。



- A1, A2, S1, S2, S3: beam slit
- GEL, ML, TL, QL: electrostatic lens
- LEC, HEC, 12C cup, 13C cup, FC: Faraday cup to measure ion beam current
- Cs gun: HICONEX 844 cesium sputter negative ion source with 18 cathodes
- Minj, M1, M2: mass-analyzing magnet
- ACT1, ACT2: acceleration tube
- GVM: generating volt meter
- ESC: Ar-gas charge-exchange canal
- TP: turbo molecular pump to condense Ar gas
- OS: generator of high frequency AC power (40Khz)
- TF: step-up transformer to generate high voltage AC power
- ED: 15 degree electrostatic deflector

図 1 米国 GIC 社製のタンデトロン加速器質量分析計の構成

イオン源は GIC 社製の HICONEX-844 であり 18 個のターゲットが充填できるように改造されている。 ^{12}C の引き出し電圧は 23.5 kV, ターミナル電圧は 1800 kV で定常的な運転をしている。現在の主たる問題点は、電磁石の磁場の不安定である。特に、加速器入射前の電磁石（図 1 の M_{inj} ）の磁場が変動して、 $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ 比が統計的な変動幅以上に有為に変動することである。この変動の 1 つの要因は室温の変動である。NMR 磁場測定器で磁場の値をモニターしつつ、変動を手動で修正している。安定度の高い電源の導入を検討しているところである。

2. 1 タンデトロン年代測定システム1号機を用いた測定数・測定時間

図2, 3に, それぞれ各年度ごと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にはほとんど変化はない. これは, グラファイト化(Kitagwa et al., 1993)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時間を要するが, 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. 1997, 1998年は使用日数, 使用時間が減少しているが, これはタンデトロン年代測定システム2号機(最新型機)が導入されたためである. 2号機の調整に携わる時間が増えるほど, 逆に1号機の稼働時間は減少する. しかし1号機は今なお, ^{14}C 年代測定システムとして定常的に安定して稼働しており, 1号機を用いた共同利用研究は益々活発に行われている.

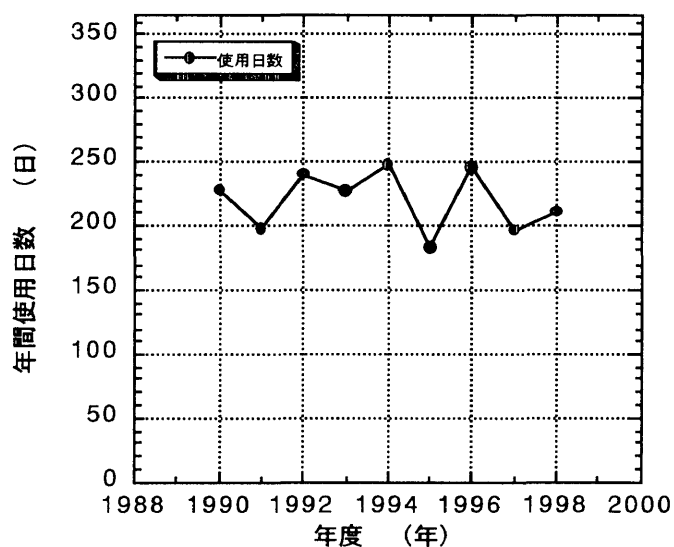


図2 タンデトロン年代測定システム1号機の年度毎の使用日数の変化

図2, 3の縦軸は, それぞれ, ほぼ1年の日数, 1年の時間数を表す. 年間使用日数は1年の2/3, 年間使用時間は1年の1/3であることがわかる.

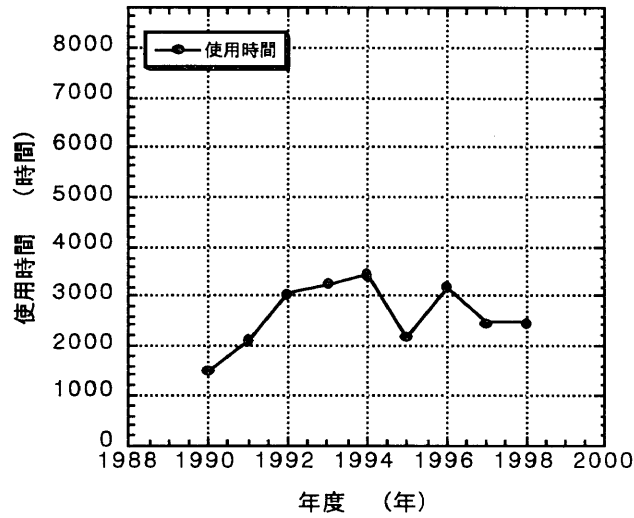


図3 タンデトロン年代測定システム1号機の年度毎の使用積算時間の変化

^{14}C 濃度測定、 ^{14}C 年代測定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と毎年の測定数の変動をそれぞれ図4及び5に示す。

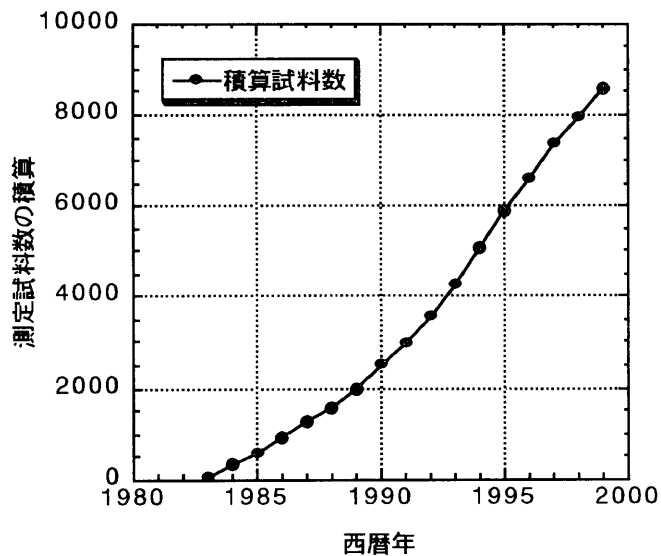


図4 タンデトロン加速器年代測定システム1号機による測定試料の1999年末までの積算総数

1998, 1999 年は、センター職員の業務がタンデトロン加速器質量分析計 2 号機の調整や準備に費やされ、このため結果的に測定された試料数は減ってしまった。しかし、年末、年始は順調に稼働し、学内・外の学生の卒業論文、修士論文のまとめに大いに役立てられた

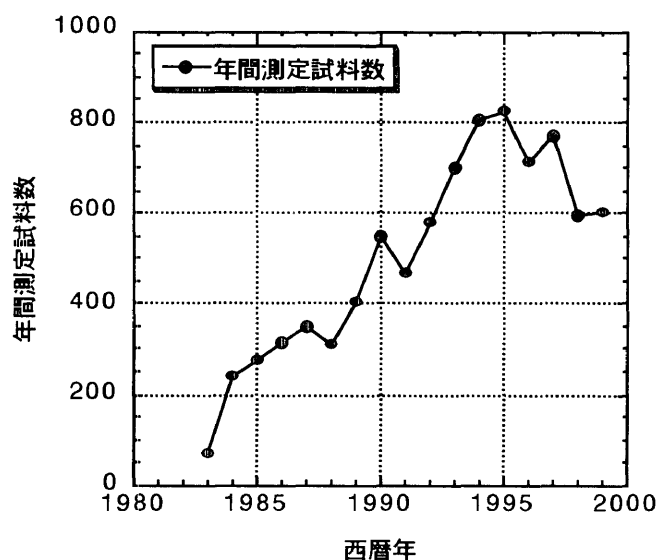


図5 タンデトロン加速器年代測定システム 1 号機の各年毎の測定試料数

2. 2 共同利用体制

タンデトロン分析計は、学内共同利用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開催される試料調製・測定操作の講習会などにより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。

センター利用のための各種講習会の開催状況を表 1 にまとめた。1999 年度には、これまで定期的に行ってきた 1 号機の運転講習会を 4 回（6 月 7 日～15 日受講者 6 名及び 10 月 25 日～29 日受講者 4 名の定例 2 回、9 月 29 日及び 2000 年 1 月 17 日～18 日各受講者 1 名の臨時 2 回）実施した。

表1 1998年度におけるセンター主催の各種講習会の開催状況

講習会名	実施日	受講者数	内容の概略
放射線取扱年次教育	1999/4/26	17名	放射線取り扱いに関わる再教育
タンデ運転	1999/6/7-15	6名	タンデトロン運転技術に関する講習
タンデ運転（臨時）	1999/9/29	1名	タンデトロン運転技術に関する講習
タンデ運転	1998/10/25-29	4名	タンデトロン運転技術に関する講習
タンデ運転（臨時）	1999/3/17-18	1名	タンデトロン運転技術に関する講習

1998年度においても、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た。表2に、学内共同利用研究の申請者と研究課題名を示す。

表2 学内共同利用研究の申請者と研究課題名（1999年度）

大気水圏科学研究所

- 1) 松本英二 石垣島サンゴの $\Delta^{14}\text{C}$ 変化
- 2) 加藤喜久雄
- 3) 増澤敏行 相模湾深海シウリガイ群集の地球化学的研究
- 4) 吉岡崇仁 琵琶湖溶存有機物の起源の解明

工学部

- 5) 森泉 純 大気中 CO_2 及び一酸化炭素の動態に関する研究

農学部

- 6) 竹田泰雄 湖底堆積物を用いた流域の侵食速度の推定

文学部

- 7) 渡邊 誠 食文化史の実証的研究
- 8) 海津正倫 沖積層の形成過程に関する研究
- 9) 海津正倫 沖積低地の地形発達と沖積層の形成
- 10) 山本直人 縄文土器のAMS ^{14}C 年代
- 11) 山本直人 弥生土器のAMS ^{14}C 年代
- 12) 中川原育子 アフガニスタン出土土器の製作年代について

太陽地球環境研究所

13)増田公明 屋久杉年輪中の ^{14}C 濃度較正

年代測定資料研究センター

- 14)森 忍 岐阜県高富町に分布する第四紀層の年代測定
(学外共同研究者：愛知教育大学・森山昭雄)
- 15)中村俊夫 バイカル湖底堆積物の ^{14}C 年代測定
- 16)中村俊夫 古代鉄器の年代測定による起源の研究
- 17)中村俊夫 大気中二酸化炭素及びメタンの ^{14}C 濃度測定
- 18)中村俊夫 琵琶湖湖水及び堆積物の ^{14}C 濃度測定と炭素循環の研究
- 19)中村俊夫 骨化石の ^{14}C 年代
- 20)中村俊夫 国指定史跡山王冢遺跡出土試料の年代測定
- 21)中村俊夫 大気中 CO_2 の ^{14}C 濃度測定
(学外共同研究者：東北大学理学研究科・中澤高清)
- 22)中村俊夫 南極湖沼試料の ^{14}C 年代・ ^{14}C 濃度測定
(学外共同研究者：京都教育大学・坂東忠司)
- 23)中村俊夫 海底堆積物中の有穴虫の年代測定
(学外共同研究者：北大地球環境研究科・村山雅史)
- 24)中村俊夫 沖縄津波試料の年代測定
(学外共同研究者：東北大学理学研究科・箕浦幸治)
- 25)中村俊夫 中国レス堆積物試料の年代測定
(学外共同研究者：福岡大学理学部・奥野 充)
- 26)小田寛貴 文化財資料の AMS ^{14}C 年代測定
- 27)小田寛貴 年代既知試料(樹木年輪, 古文書)の ^{14}C 年代測定
- 28)池田晃子 コラーゲンを含む試料の調製法について
- 29)南 雅代 隕石の落下年代の推定
- 30)南 雅代 化石骨のアミノ酸抽出と ^{14}C 年代測定

4. ^{10}Be 測定利用

タンデトロン1号機の今後の利用方法として、 ^{14}C だけではなく、 ^{10}Be 測定を計画している。以下では、 ^{10}Be 測定に向けて、 ^{10}Be 測定利用研究の概要を紹介する。

^{10}Be は、 ^{14}C と同様に宇宙線により生成される放射性同位体であるが、半減期が ^{14}C の 5730 年に比べて、150 万年と長い。ベリリウムは人体に対して毒性があり、炭素と違って生物にはほとんど含まれない。従って、主たる利用は地質学的な年代測定の応用である。

また、 ^{14}C でも、厳密に言えば測定試料に含まれていた初期濃度は個々の場合や年代と共に変動しているが、 ^{10}Be では、その変動はより顕著である。 ^{14}C では、大気中で生成された ^{14}C は二酸化炭素となり、周囲の二酸化炭素とよく混合されたあと、植物による光合成で生体内に固定され食物循環で生物体に行き渡り、それらが死んで ^{14}C 年代測定試料となる。大気中の二酸化炭素の混合は短期間で達成され、 ^{14}C 濃度はほぼ一定となるため、 ^{14}C 年代は、暦年代と大きくは違わない。しかし、 ^{14}C 年代測定では、試料の年代に関するより正確な議論のためには、国際的に用いられている INTCAL98- ^{14}C 年代 Δ 暦年代校正曲線 (Stuiver et al, 1998) を用いて ^{14}C 年代から暦年代へ換算する必要がある。一方、 ^{10}Be の場合には、大気中で生成された後、大気中のエアロゾルに吸着し、雨水や大気塵として地表に降下する。大気中で生成されてから試料中に含まれるまでの ^{10}Be の移行プロセスは雨量、大気循環、地表での化学的な性質に依存して複雑であることが予想される。従って、 ^{10}Be を年代測定に用いる場合には、 ^{14}C 以上に、初期濃度をきちんと検討する必要がある。

以下に、 ^{10}Be を利用した研究項目を列挙する。

1) 岩石の露出年代や岩石表面の風化速度の推定

氷河の後退時期の年代測定に最近用いられるようになってきた。青木・今村 (1999) は、ネパールヒマラヤ・クンプ氷河をフィールドとして、ターミナルモレーンの堆積物に含まれている石英試料に ^{10}Be 表面照射年代測定を適用し、クンプ氷河下流のペリチェに分布するターミナルモレーンは 17ka~13ka の最終氷期極相期に形成されたと結論した。また、青木 (2000) は、この年代測定法を日本の木曾山脈千畳敷カールにも適用している。

この年代測定法では、宇宙線由来の中性子と岩石に含まれる石英粒子中の酸素原子との核反応で生成される ^{10}Be の蓄積量を測定する。石英は物理的、化学的な風化に対して耐性が強く、生成された ^{10}Be を安定して保持する。 ^{10}Be の蓄積量と石英粒子中での ^{10}Be の生成速度がわかれば、それまで氷河に覆われていた岩石が地表に露出し、宇宙線にさらされて ^{10}Be 生成を開始した年代が算出できる。 ^{10}Be の蓄積量がごく微量なため、 ^{14}C 法に比べて誤差が大きいですが、今後、応用例が増加すれば測定された年代値の正確度が向上するものと期待される。

2) 火山帯のマグマの起源

日本などの島弧火山から噴出される火山岩中の ^{10}Be 濃度の測定から、プレート運動により島弧の下に沈み込んだ、宇宙線起源の ^{10}Be を含んでいる海洋底プレート物質が、島弧火山のマグマ形成に寄与する割合やそのプロセスが明らかにできる (Brown, et al 1982 ; Imamura et al 1984; 島岡ほか, 1998) 。

3) 氷床堆積物や海洋底堆積物中の ^{10}Be 濃度と ^{10}Be 生成の経年変動

宇宙線生成放射性同位体である ^{10}Be の生成率は、 ^{14}C でも見られるように経年変動を示す。生成率の経年変動は、宇宙線強度変動、地球磁場強度変動、太陽活動の変動などの情報を含んでおり、これらの知識は、年代測定の正確度を向上させるためには不可欠である。南北両極の氷床コアの解析が行われている。氷を構成する H_2O の $\delta^{13}\text{C}$ 変動から推定される年代(酸素アイソトープステージ)と ^{10}Be 濃度を比較すると、例えば、南極 Vostok ice core に見られる ^{10}Be の濃度変化は 37ka と 60ka の年代でピークを示す事が報告されている (Raisbeck, et al, 1987)。しかし、こうした ^{10}Be 濃度のピークにはまだ不明確な点が多く、 ^{14}C 濃度変動の比較と合わせて、今後の研究継続が必要である (McHargue et al, 1995; Castagnoli, et al, 1995; 北川, 2000)。

4) 堆積物中の ^{10}Be 濃度と年代測定

村山ほか (1998) は、北太平洋のシャツキーライズ上 ($33^\circ 21.75 \text{ N}$, $159^\circ 07.70 \text{ E}$) で採取された海底堆積物コア (SKY-S2 コア) の ^{10}Be 濃度を測定し、最終氷期 (約 1.8ka) に、表層に比べて 4 倍の ^{10}Be フラックスをみている。しかし、これは、Al, Ti, ^{232}Th , ^9Be , Fe などの元素の海底堆積物へのフラックスと類似の深度変動を示しているため、宇宙線による ^{10}Be の生成の増減によるものではなく、海水中の生物生産に関連するものと推察されている。また、Horiuchi et al. (1999) は、バイカル湖底から採取された 200m 長の堆積物コア中の ^{10}Be 濃度を測定した。 ^{10}Be 濃度は、長期変動としては半減期に従ってコアの深度と共に減衰しているものの、細かい濃度変動を示している。 ^{10}Be 濃度の変動は、生成量の変動よりもむしろ堆積過程の変化によると解析されている。研究の継続が必要である。

5) ^{10}Be 濃度による土器分類

Imamura, et al (1999) は、琉球列島から南九州に産する土器の台土に含まれる ^{10}Be の濃度を用いて土器の分類を試みている。 ^{10}Be 測定は破壊検査ではあるが、0.1g 程度の台土を使用すれば良いため、考古学者の理解は得やすい。研究の手始めとして、 $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比による土器台土の産地同定が研究が進められている。

5. これからの予定について

表 3 に、最新型タンデトロン加速器質量分析計、および放射能測定法の一つであるガス比例計数装置を用いた場合と比較して、旧型タンデトロン加速器質量分析計の性能を示した。最新型機の兄弟機が設置されているドイツ・クリスティアン アルブレヒト大学の経験によると、ターゲットさえ準備できれば、年間 2000~3000 個の測定が可能とされる。そこで、当面は、両装置を用いて ^{14}C 測定を進めるが、 ^{14}C 年代は高精度で測定できる最新型タンデトロンに任せて、旧型 1 号機は放射性ベリリウム (^{10}Be) の測定に利用することを計画している。 ^{10}Be の測定に切り替えるためには、イオン源の出力を強化しなければならない。炭素と違って、ベリリウムは負イオンを作りにくい。そこで、酸化ベリリウムの負

イオン (BeO) を生成して加速することが行われている。また、硼素 (^{10}B) のバックグラウンドレベルが高くなることが予想され、このためには、分解能の高い ^{10}Be 検出システムの導入が不可欠である。幸いにも改造の予算を得ており、来年度中には改造を行う予定である。

表3 AMS と放射能測定による ^{14}C 年代測定の比較

Item	New Tandetron AMS from HVEE	Tandetron AMS at Nagoya Univ.	CO2 gas proportional counter at Isotope Asso. of Japan
Amount of carbon 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	$\pm 20-30$ yr	$\pm 60-80$ yr	± 80 yr
Counting time	20 - 40 min.	2~4 hr	16-20 hr
	(both sample and standard)		(sample only)
No. of samples per year	ca. 2500	700-800 (limited by sample preparation)	

謝辞

2台の加速器年代測定システムの保守・管理・運転は容易なことではない。理学部装置開発室の増田忠志技官を始めとして、松下幸司技官に大変お世話になっている。ここに篤く感謝の意を表す。

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).
 青木賢人： ^{10}Be 露出年代法を用いた氷成堆積物の形成年代の測定。第四紀研究(印刷中)
 Brown, L., Klein, J., Middleton, R., Sacks, I.S., and Tera, F.: ^{10}Be in island-arc volcanoes and implications for subduction. *Nature*, 299, 718-720 (1982).
 Castagnoli, G.C., Albrecht, A., Beer, J., Bonino, G., Shen, C., Callegari, E., Tarico, G., Dittrich-Hannen, B, Kubik, P., Suter, M., and Zhu, G.M. (1995) Evidence for enhanced ^{10}Be deposition in Mediterranean sediments 35 kyr BP, *Geophys. Res.*

Lett., 22(6), 707-710.

Horiuchi, K., Minoura, K., Kobayashi, K., Nakamura, T., Hatori, S., Matsuzaki, H., Kawai, T. (1999) Last-glacial to post-glacial ^{10}Be fluctuations in a sediment core from the Academician Ridge, Lake Baikal. *Geophysical Res. Lett.*, Vol.26, No.8, 1047-1050.

Imamura, M., Hashimoto, Y., Yoshida, K., Yamane, I., Yamashita, H., Inoue, T., Tanaka, S., Nagai, H., Honda, M., Kobayashi, K., Takaoka, N., and Ohba, Y.: Tandem accelerator mass spectrometry of ^{10}Be with internal beam monitor method. *Nucl. Instrum. Methods*, B5, 211-216 (1984).

Imamura, M., Sakamoto, M., Saito, T., Nishitani, M., and Kobayashi, T. (1999) ^{10}Be application to archaeology: Proveniencing ancient earthenwares. Proc. of the Int. Workshop on Frontiers in AMS, January 6-8, 1999, NIES, Tuskuba, Japan, p.149-150.

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).

北川浩之 (2000) 湖沼堆積物の宇宙線起源同位体分析による宇宙・太陽・地球環境変動の解説. 月刊地球, 22, 3, 177-180.

McHargue, L.R., Damon, P.E., and Donahue, D.J. (1995) *Geophys. Res. Lett.*, 22, 659-662.

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).

村山雅史・林一宏・成田尚史・永井尚生・小林紘一・平朝彦 (1998) 海底堆積物中の ^{10}Be フラックス変動とその意義. 加速器質量分析シンポジウム報告集. 加速器質量分析法 (AMS) の世界と我が国における AMS 研究, 東大山上会館, 11月17日, 97-101.

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~IX (1991~1998)

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).

中村俊夫: 加速器質量分析 (AMS) による宇宙線生成放射性同位体の測定と若い地質年代測定への応用. 地質学論集, 49, 121-136(1998).

丹生越子: 名古屋大学タンデトロン2号機のアクセプタンステスト結果. 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, X, (1999) (本報告書)

Raisbeck, G.M., Yiou, F., Bourles, D., Lorius, C, Jouzel, J., and Barkov, N.I. (1987) Evidence for two intervals of enhanced ^{10}Be deposition in Antarctic ice during the

last glacial period, *Nature*, 326, 273-

島岡晶子・今村峯雄・永井尚生・兼岡一郎：Be 同意体比から見た島弧マグマの起源に関する一考．加速器質量分析シンポジウム報告書，日本大学文理学部自然科学研究所，155-158 (1998).

The ^{14}C AMS facility of the Nagoya University: achievements and present status of the Tandetron-I

Toshio NAKAMURA^{*.1)}, Hiroataka ODA¹⁾, Akiko IKEDA¹⁾, Etsuko NIU¹⁾,
Masayo MINAMI²⁾, Shigeo YOSHIOKA¹⁾, Tomoko OHTA¹⁾, Hiroshi TAKAHASHI²⁾,
Mamoru ADACHI²⁾

1) Dating and Materials Research Center, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-8602 Japan

2) Graduate School for Earth and Planetary Sciences, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-8602 Japan

*1) e-mail address: g44466a@nucc.cc.nagoya-u.ac.jp

Keywords: radiocarbon, ^{14}C dating, AMS, a Tandetron AMS, ^{10}Be

Abstract:

A Tandetron accelerator mass spectrometer, an apparatus dedicated to high sensitivity radiocarbon (^{14}C) measurements, manufactured by General Ionex Corporation, USA, has been used since 1983 to measure the ^{14}C concentrations of environmental samples as well as ^{14}C dates of geological and archaeological materials, at the Dating and Materials Research Center, Nagoya University. The authors present here a brief review of the present performance and some archaeological and geological applications of the Tandetron-I AMS, as well as a brief introduction to application fields of ^{10}Be measurements. After the second AMS machine goes into routine operation, the main purpose of the Tandetron-I AMS will be shifted towards ^{10}Be measurements. Some hardware and software tools are in preparation now for the ^{10}Be measurements.