名古屋大学タンデトロン２号機による ^{14}C 濃度既知の標準試料 (IAEA C1-C8)の測定 －測定精度と正確度の検定－

中村俊夫[1)]・小田寛貴[1)]・丹生越子[1)]・池田晃子[1)]・南　雅代[2)]・
高橋　浩[2)]・太田友子[1)]

1) 名古屋大学　年代測定総合研究センター
2) 名古屋大学　理学研究科

１．はじめに

名古屋大学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号機が 1982 年 3 月に導入されて，はや 19 年が経過した．この間，^{14}C をトレーサーとした環境 ^{14}C 濃度分布に関する研究及びさまざまな環境試料の ^{14}C 年代測定に基づく研究が行われ，2000 年 3 月末までの測定数は 8,612 個である．この間，タンデトロン年代測定システム１号機は，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きた．現在までの共同利用研究として，^{14}C 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 ^{14}C 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～XI(1989～2000)で報告されている．

新たに 1996-1997 年に導入されたタンデトロン加速器年代測定システム２号機の調整は 2000 年３月にはほぼ終了し，^{14}C 測定利用はこのタンデトロン２号機が引き継ぐこととなった．このため，タンデトロン１号機による ^{14}C 測定の利用は 2000 年３月末で停止した．代わってタンデトロン１号機では，^{10}Be 測定に向けて改造が行われている．

本報では，まず，タンデトロン加速器年代測定システム I 号機の現状についてのべる．さらに，^{14}C 測定利用を引き継ぐことになったタンデトロン２号機について，測定精度の検定や ^{14}C 濃度が既知の標準試料(IAEA C1-C8)を用いて行った正確度の検定についての結果を報告する．

２．名古屋大学タンデトロン加速器年代測定システム１号機の状況

1983 年にタンデトロン１号機を用いた ^{14}C 測定が開始された後，年間約 300-800 個の

試料が測定されてきた．その様子を図１に示す．^{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図１に示す．この図には示されていないが，2000 年は３月末までに 45 個の試料を測定した．2000 年３月末に，全測定数 8,612 個をもって ^{14}C 測定利用を停止した．この図の年間あたりの測定数の最大は，名古屋大学における試料処理能力の限界を示している．すなわち，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，高性能のタンデトロン２号機を有効に利用して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．

タンデトロン１号機の今後の利用法としては，^{14}C 以外の放射性同位体の測定である．使用されるタンデム加速器の加速電圧は最大 1.9MV であるので，とりあえずは，軽い放射性同位体である ^{10}Be を視野において改造を進めている．この改造内容や ^{10}Be の利用研究については別稿を準備している．

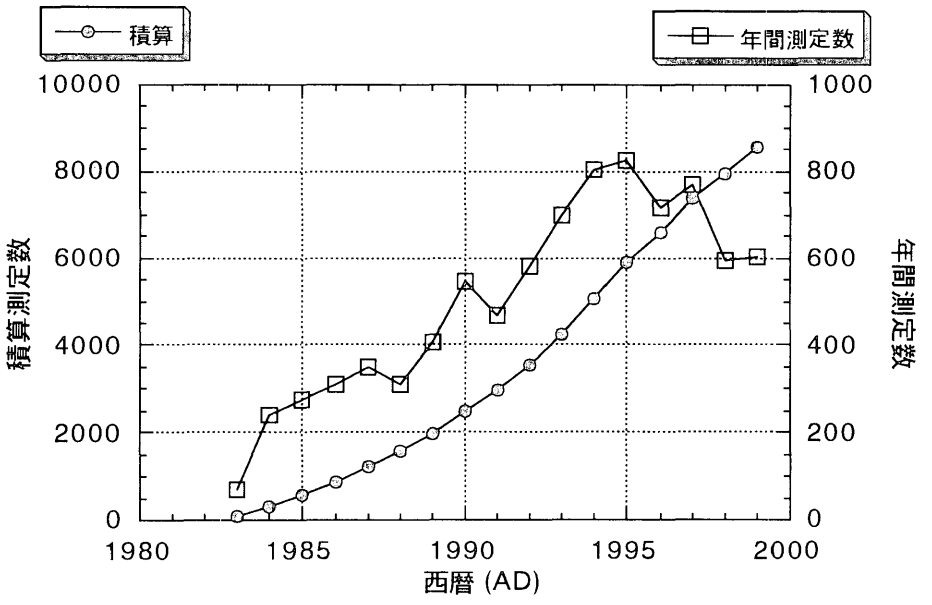


図１　タンデトロン加速器年代測定システム１号機の各年毎の測定数とその積算

３．最新型タンデトロン２号機を用いた ^{14}C 濃度の高精度測定

３．１．最新型のタンデトロン ^{14}C 測定装置の現状

名古屋大学では，1996-1997 年に新たに加速器質量分析専用の加速器を導入した．これは，High Voltage Engineering Europa B.V. (Amsterdamseweg 63, 3812 RR, Amersfoort, the Netherlands)製の Carbon Dating System (Model 4130-AMS, Mous et al., 1993)である．米国 Woods Hole 海洋研究所，オランダ・グローニンゲン大学，ドイツ・クリスティアン アルブレヒト大学に続く世界の第４号機であり，この後，日本原子力研究所むつ事業所，韓国ソウル国立大学に導入されており，本年は，イギリスのオッ

クスフォード大学に導入される予定である．

1999 年 1 月末に，装置の調整テストの第 1 段階を終了した（丹生，1999）．この基本となる試験では，HOx-II(NBS oxalic acid, RM-49)標準体から作成した Fe-graphite ターゲット 6 個を用いて，それらの測定における $^{14}C/^{12}C$，$^{13}C/^{12}C$ 比の再現性を 2 日間にわたって調べた．その結果，$^{14}C/^{12}C$ 測定の再現性は 1 標準偏差で 0.171%及び 0.162%と得られた（Nakamura et al, 2000）．その直後に，装置の重大な故障が発生し，加速器高電圧発生部の部品であるダイオードを全部取り替えることや，高電圧電源トランスなどの取り替え作業のために装置の利用はほとんどできなかった．1999 年末になってようやく初期故障がほとんど無くなり使用が可能となった．その後，再現性テストを繰り返し行ってきたが，0.4%～0.2%の再現性が得られている（丹生，2000）．

3．2．^{14}C 濃度既知試料の測定テスト

次に，^{14}C 濃度が既知の物質 8 個について測定した例を図 2 に示す．これらの 8 個の試料は，オーストリアのウイーンにある国際原子力機関（IAEA）から提供される標準物質（C1-C8）である．それぞれの標準試料は，次のように様々な炭素含有物質からできている．すなわち，C1：大理石，C2：石灰華，C3：セルロース，C4：樹木，C5：樹木，C6：ショ糖，C7：シュウ酸，C8：シュウ酸，である．図 2 には，世界各国の ^{14}C 実験室での測定結果を基に平均値と分散から求めた ^{14}C 濃度（これを既知 ^{14}C 濃度とする）とタンデトロン分析計 2 号機を用いて測定した ^{14}C 濃度を比較して示す．両者の一致は良いことがわかる．また，下図には，測定値から既知濃度を差し引いて，それを既知濃度で割った値を示した．両者は，ほぼ 0.5%のズレ幅内で一致している事がわかる．

また，^{14}C を全く含まないはずの大理石試料（C1；^{14}C 濃度：-0.02～0.02pMC）について，今回の測定では有限の ^{14}C 濃度（0.08～0.2pMC；^{14}C 年代に換算すると 47,000-50,000yr BP）を得ている．これは，試料処理の際に，現代炭素による試料炭素の汚染が無視できないためであり，この汚染をできうる限り押さえることがこれからの課題の一つである．

3．3．^{14}C 年代測定の誤差について

1981-1982 年に，名古屋大学に設置されたタンデトロン 1 号機（米国 General Ionex 社製，Model 4130 ^{14}C measuring system）は，1983 年から定常的に ^{14}C 測定に用いられてきたが，この装置による年代測定の誤差とタンデトロン 2 号機による ^{14}C 年代測定の誤差を比較して図 3 に示す．測定誤差は，図 3 の下図では ^{14}C 年代の若い部分（10000BP よりも若い部分）をクローズアップしてある．1 万年前より若い年代では，1 号機では±50～±90 年であるが，2 号機では±20～±40 年と小さくなっている．また，2 万年前を越える古い年代では，2 号機は 1 号機に比べて誤差はずっと小さい．タンデトロン 1 号機の誤差はほとんど ^{14}C 計数に基づく統計誤差である．一方，タンデトロン 2 号機の誤差としては，一緒に測定する 6 個の標準体（HoxII）の ^{14}C /^{12}C 比のばらつきによる誤差（1 標準偏差）と試料についての ^{14}C 計数の統計誤差をあわせて算出したものである．このように，2 号機で誤差が小さくなった理由は，2 号機では ^{14}C の検出効率が向上したため ^{14}C

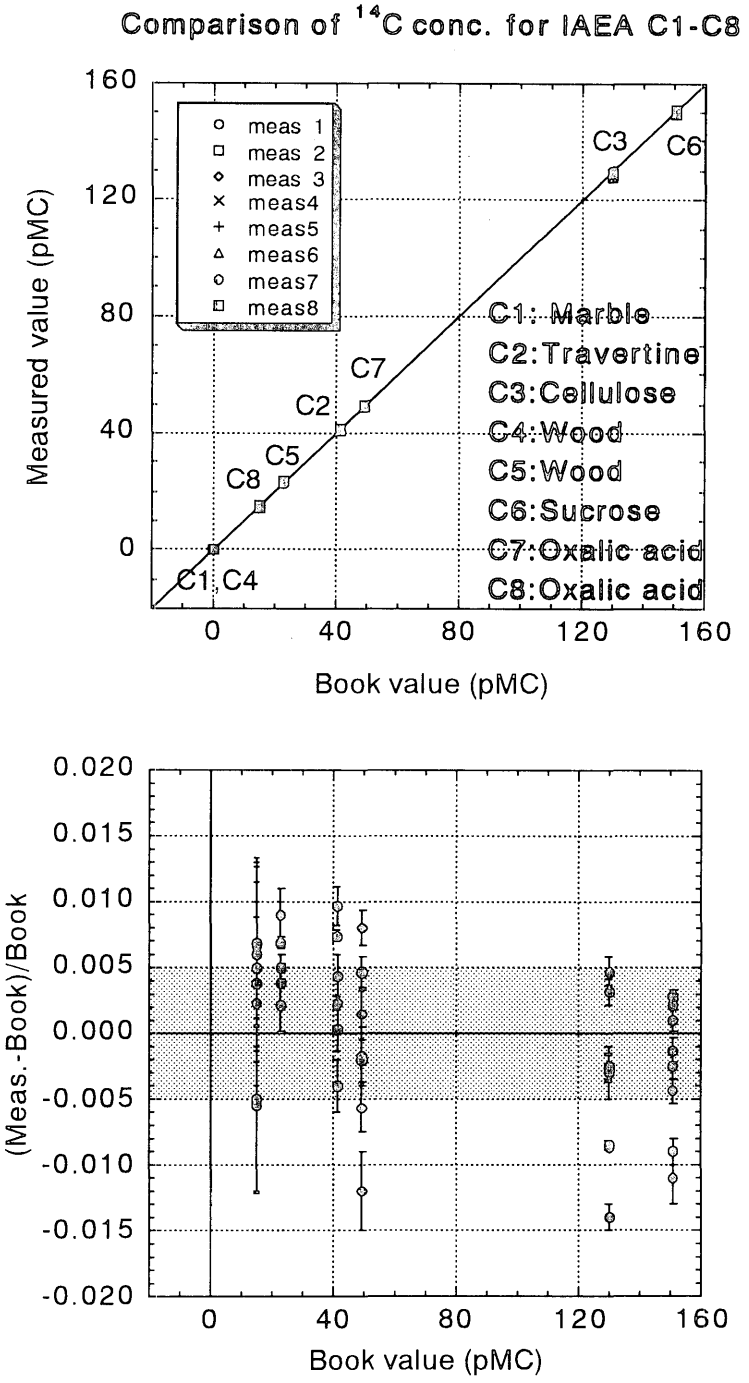
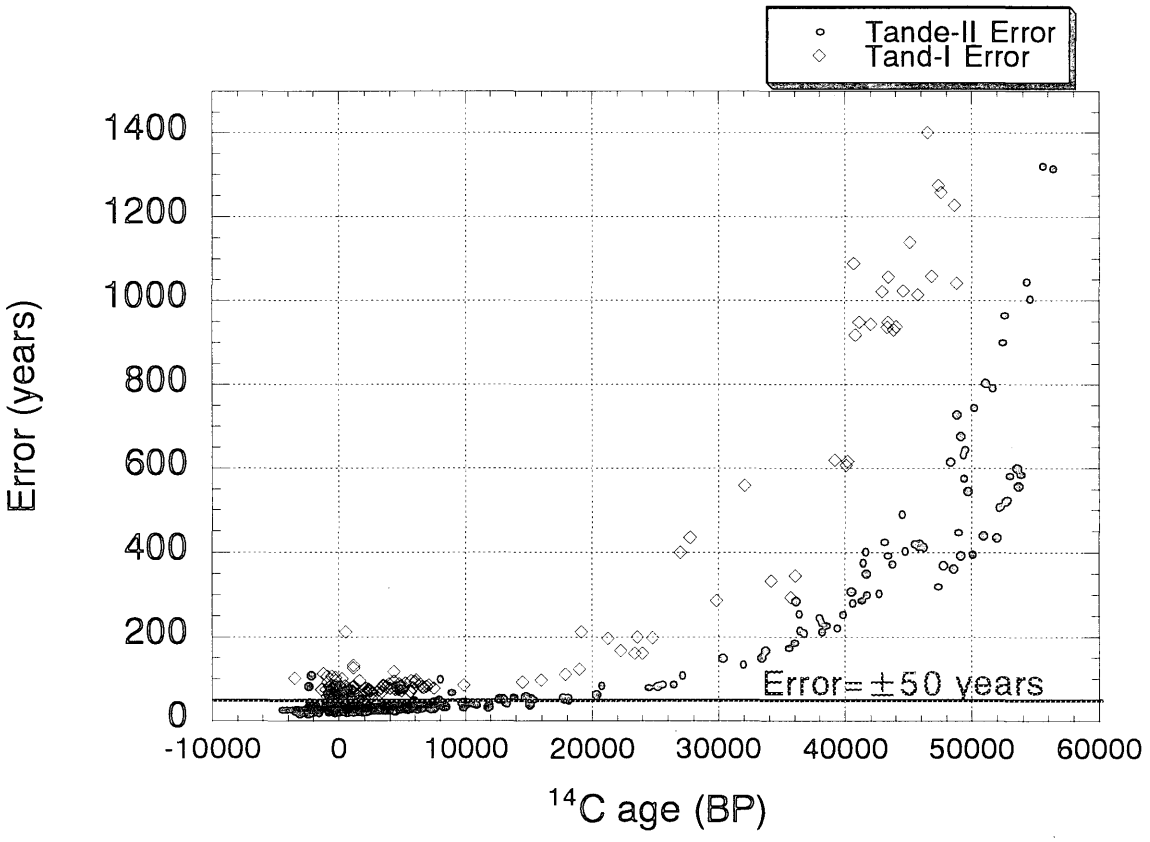


図２　^{14}C 濃度が既知の IAEA 標準試料の測定結果
上図は，横軸が既知濃度，縦軸がタンデトロン分析計を用いて測定した濃度
下図は，測定値から既知濃度を差し引いて，それを既知濃度で割った値



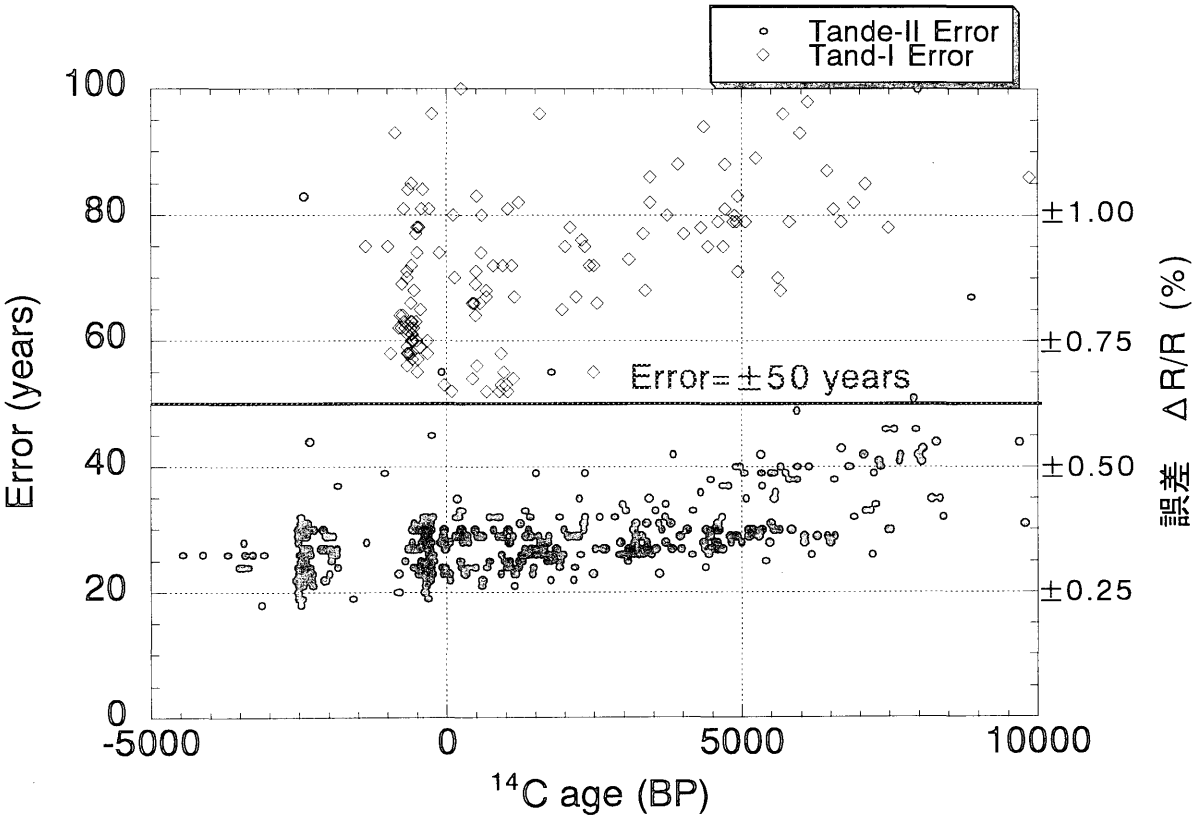


図３　タンデトロン１号機及び２号機による^{14}C年代測定の誤差の大きさの比較
測定誤差は，１号機では±50～±90年であるが，２号機では±20～±40年と小さくなっている．

計数に基づく統計誤差が小さくなったこと，及び装置が安定して ^{14}C 測定の再現性が良くなったためである．今後，この装置を利用した高精度 ^{14}C 測定のさまざまな分野への応用が期待される．

3．4．^{14}C バックグラウンドについて

日本国内で購入したグラファイト粉末を圧縮して作ったターゲットについてタンデトロン2号機を用いて ^{14}C 濃度を測定した結果を図4に示す．2000年9月4-9日にビームラインを再調整して，45度デフレクタのスリット幅，Pulse Hight Analyzer の ^{14}C ゲートの幅を狭く取るなどの変更を行った．この調整の前後において，グラファイトターゲットを用いて ^{14}C 濃度測定った場合の結果について，^{14}C 計数を見かけの ^{14}C 年代に換算して図4に示した．調整前の見かけの ^{14}C 年代が47,000-50,000 BP なのに対し，調整後は

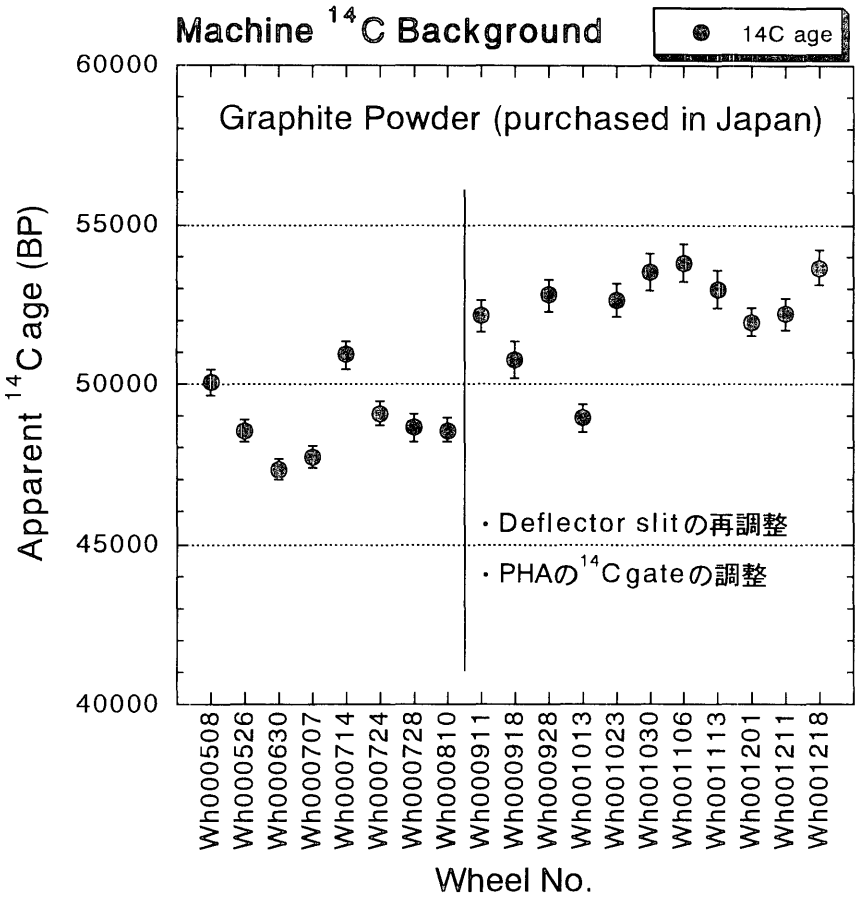


図4　市販のグラファイト粉末から作成したターゲットを用いて測定したバックグラウンド（みかけの ^{14}C 年代で表示されている）．装置の調整の前後で，^{14}C バックグラウンドレベルが変化したことがわかる．

見かけの ^{14}C 年代が52,000-53,000 BP 程度に古くなり，^{14}C バックグラウンド計数が相対的に減少している（すなわち，バックグラウンドが低い）．

タンデトロン２号機では ^{12}C, ^{13}C, ^{14}C を同時に測定しているため，イオン源からリコンビネータ部の ^{12}C, ^{13}C の軌道を通ってくるバックグラウンドイオンが多いことが予想される．ビームラインを精密に調整してこれらのバックグラウンドイオンを効果的に除去すれば，５万年前を越える古い年代の測定利用が可能になることが期待できる．

３．５．測定ターゲット数

タンデトロン２号機を用いて測定したターゲット数（試料，標準体，バックグラウンド試料を含む）の変化を図５に示す．2000 年になってから測定数は順調に増加しており，年間の測定数は 1400 個余りである．^{14}C 試料測定の進行状況については，本報告書の丹生による報告を参照されたい．

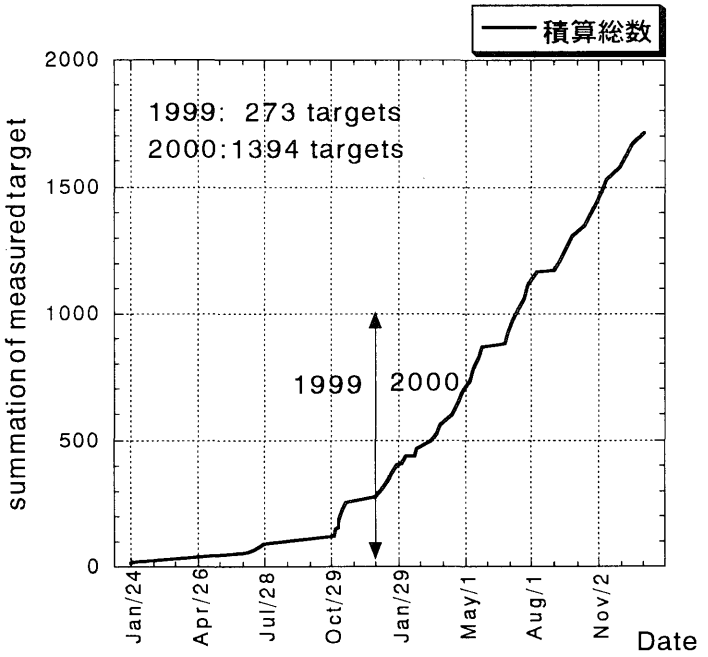


図５　1999 年，2000 年において，タンデトロン２号機を用いて測定されたターゲット数の変化

４．おわりに

タンデトロン２号機による ^{14}C 測定については，５千年前より新しい試料では，one sigma で示した測定誤差は相対誤差（ΔR/R）で±0.5%以下，^{14}C 年代の誤差にすると±40 年以下である（図３）．また，IAEA 標準試料の測定により正確度もほぼ 0.5%以下であることが示された（図２）．今後も引き続き精度や正確度の検定を行うと共に，様々な試料について ^{14}C 測定を実施し，結果の信頼性を検討したい．

参考文献

Mous, D.J.W., Gottdang, A, and van der Plicht, J (1994) Status of the first HVEE ^{14}C AMS in Groningen. Nucl. Instrum and Methods, B92, 12-15.

T. Nakamura, E. Niu, H. Oda, A. Ikeda, M. Minami, H. Takahashi, M. Adachi, L. Pals, A. Gottdang, and N. Suya (2000) The HVEE Tandetron AMS system at Nagoya University. *Nucl. Instrum and Methods in Physics Research*, B172, 52-57.

丹生越子(1999)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,18-23.

丹生越子(2000)名古屋大学タンデトロン２号機の現状．名古屋大学加速器質量分析計業績報告書，XI,51-62.

Measurement of IAEA ^{14}C Standard Materials with the 2nd Tandetron AMS Machine at Nagoya University
- Estimates of Precision and Accuracy -

Toshio NAKAMURA[1)], Hirotaka ODA[1)], Etsuko NIU[1)], Akiko IKEDA[1)], Masayo MINAMI[2)], Hiroshi Aoki TAKAHASHI[2)] and Tomoko OHTA[1)]

1) Center for Chronological Research, Nagoya University
2) Graduate School of Science, Nagoya University

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 Center for Chronological Research (CCR), Nagoya University. A so-called second generation AMS ^{14}C apparatus manufactured by High Voltage Engineering Europe, BV, the Netherlands has been installed at CCR in 1997 and has been tested of its performance on ^{14}C measurements. The authors present here a brief review of the present performance and status of the Tandetron-I and Tandetron-II AMS systems.

The ^{14}C measurement error (one sigma error) of the Tandetron-II is around +/-20 - +/- 40 years, which is clearly smaller than that of the Tandetron-I (around +/-50 - +/-90 years). In addition, the reproducibility tests of ^{14}C measurements for the IAEA C1- C8 ^{14}C standards suggests that accuracy of ^{14}C measurement can be as good as around 0.5%.