

名古屋大学タンデトロン AMS  $^{14}\text{C}$  システムの現状と利用 (2010)  
Status and Applications of a Tandetron AMS System at Nagoya University in 2010

中村俊夫<sup>1\*</sup>・南 雅代<sup>1</sup>・小田寛貴<sup>1</sup>・池田晃子<sup>1</sup>・宮田佳樹<sup>1</sup>・太田友子<sup>1</sup>・西田真砂美<sup>1</sup>・  
大森貴之<sup>2</sup>・西本 寛<sup>2</sup>・本庄浩司<sup>2</sup>・松本佳納<sup>2</sup>・城森由佳<sup>2</sup>・  
近藤宏樹<sup>2</sup>・吉光貴裕<sup>2</sup>・坂田 健<sup>2</sup>・森 健太<sup>3</sup>・オヨンバザル エンフツォルモン<sup>2</sup>  
Toshio Nakamura<sup>1</sup>, Masayo Minami<sup>1</sup>, Hirotaka Oda<sup>1</sup>, Akiko Ikeda<sup>1</sup>, Yoshiki Miyata<sup>1</sup>,  
Tomoko Ohta<sup>1</sup>, Masami Nishida<sup>1</sup>, Takayuki Omori<sup>2</sup>, Hiroshi Nishimoto<sup>2</sup>, Koji Honjyo<sup>2</sup>,  
Kana Matsumoto<sup>2</sup>, Yuka Jyomori<sup>2</sup>, Hiroki Kondo<sup>2</sup>, Takahiro Yoshimitsu<sup>2</sup>, Ken Sakata<sup>2</sup>,  
Kenta Mori<sup>3</sup>, Oyunbazar Enkhtsolmon<sup>2</sup>

<sup>1</sup>名古屋大学年代測定総合研究センター

<sup>2</sup>名古屋大学大学院環境学研究科

<sup>3</sup>名古屋大学理学部地球惑星科学科

<sup>1</sup> Center for Chronological Research, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-8602 Japan

<sup>2</sup> Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-8602  
Japan

<sup>3</sup> Department of Earth and Planetary Science, Faculty of Science, Nagoya University, Chikusa,  
Nagoya 464-8602 Japan

\*Corresponding author. E-mail: [nakamura@nendai.nagoya-u.ac.jp](mailto:nakamura@nendai.nagoya-u.ac.jp)

### Abstract

An AMS system (Model 4130-AMS) dedicated to  $^{14}\text{C}$  measurements, built by High Voltage Engineering Europe (HVEE), B.V., The Netherlands, was delivered to Nagoya University in 1996/97. Acceptance tests of its performance on carbon isotope measurements were completed in January of 1999, and routine measurements began in mid-2000. Since completion of the acceptance tests in early 1999, we have encountered a lot of troubles with the machine, particularly in 2002. Since the end of 2002, the machine has worked relatively well, expect for minor problems. The standard deviation (one sigma) of the  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  ratio is around  $\pm 0.3\%$  to  $\pm 0.4\%$  (a bit larger than the uncertainty of about  $\pm 0.3\%$  calculated from  $^{14}\text{C}$  counting statistics) and that of the corresponding  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  ratio is  $\pm 0.03\%$  to  $\pm 0.07\%$ , as are tested for HOxII targets. The number of targets measured was 330, 1430, 2077, 1003, 1,979, 1679, 1771, 1115, 1339, 866, 1300, 1701 in each year from 1999 to 2010, respectively, and total number of target measured by the end of 2010 is 16,591.

The Tandetron AMS system worked well in 2010, without serious troubles. From February 24<sup>th</sup> to March 17<sup>th</sup>, 2010, the AMS operating system was replaced from the one based on Windows 3.11 to the modified one based on Windows XP. The new operating system has several improvements that benefit the  $^{14}\text{C}$  measurement operation easier than the old system. In addition, we have been trouble a lot by high voltage sparks of the accelerator since 2006. To overcome this we have installed a water absorption system to remove water vapor from high voltage insulation gas,  $\text{SF}_6$ , since 2008, immediately after the reinforcement work of the Furukawa Memorial Hall. We have operated the  $\text{SF}_6$  drying system as long as possible to keep the accelerator in good condition. Owing to this work, we have experienced only one high

voltage spark on February 22<sup>nd</sup>, in full 2010. The total number of graphite targets measured was 1701 in 2010.

**Keywords:** accelerator mass spectrometry, radiocarbon, aerosol particle, fossil fuel, environmental tracer

キーワード：加速器質量分析，放射性炭素，エアロゾル粒子，化石燃料，環境トレーサー

## 1. はじめに

名古屋大学年代測定総合研究センターに、1997年3月に完納して設置された High Voltage Engineering (HVEE)社製 Tandetron (Model 4130-AMS)は、放射性炭素測定専用のシステムである。Cs スパッタ負イオン源 (Model 864B)、リコンビネーター、3MV ベースのタンデム加速器、110 度および 90 度曲げ角度の質量分析電磁石 2 台、33 度曲げ角度の静電デフレクタ、およびイソブタンガスを用いる電離箱型重イオン検出器からなる。リコンビネーターシステムにより、まず  $^{12}\text{C}$ 、 $^{13}\text{C}$ 、 $^{14}\text{C}$  ビームを分離させ、このときに Chopper を用いて  $^{12}\text{C}$  ビーム強度を約百分の一に減衰させ、その後、再集合して加速器に入射する。こうして炭素  $^{14}\text{C}$ 、 $^{13}\text{C}$ 、 $^{12}\text{C}$  の同時測定を行い、炭素の同位体比を高精度に測定できる。1999 年 1 月に  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 、 $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  比測定の性能検収を終了し、2000 年度から学内共同利用を開始した(Nakamura et al. 2000; 2004)。

2010 年には、念願の制御パソコンシステムの更新を行うことができた。2009 年度の学内補正予算で手当をして頂いたおかげである。本システムを設置した 1997 年当時は、High Voltage Engineering (HVEE)社の制御システムは windows 3.11 をベースに組まれていた。パソコンは、既に windows 95 が動いていたが、当社の対応が間に合わず windows 3.11 で組まれた制御システムが使われていた。このパソコンシステムの代替品は既に無く、万一壊れた場合には、新システムの導入しか無く、多大な費用と長期間の停止が予想されていた。この取り替え作業が 2010 年 2 月 24 日から 3 月 16 日にかけて、すなわち 1 年の始めの段階で行われたため、新たに導入された制御システムの利便性、また大きな故障が発生しなかったことも重なって、2010 年には、ターゲット総数で 1701 個を測定することができた。

本稿では、2010 年 1 月から 2010 年 12 月末までの 1 年間の故障例など、運転の状況をまとめる。また、この期間に行われた  $^{14}\text{C}$  測定研究の一部を紹介する。共同利用研究の成果については本報告書に寄稿されている報告を参照されたい。

## 2. 2010 年の一年間の運転状況の概要

AMS 施設建物の耐震工事が 2007 年 11 月 1 日～2008 年 4 月 30 日の間に行われたが、その工事完了後に、SF<sub>6</sub> 循環脱水システムの導入を行った。この脱水システムの導入は大成功であった。それまでの 1 年間で 31 回も発生した加速器高電圧の放電回数は、このシステムの導入 (2008 年 5 月 19 日～6 月 9 日) から 2010 年 12 月 31 日までには計 3 回と激減している。

2010 年 2 月 24 日から 3 月 16 日にかけてパソコンの制御システムの更新が行われた。Windows 3.11 から windows XP への基本 OS の更新である。ハードウェアの更新もあり、CPU の処理速度は 3.4GHz に、ハードディスクは 2GB から 80GB に増加した。AMS 装置の制御は 3 台のディスプレイを用いて行い、AMS システム全体図による装置の監視ができるようになった。また、装置を構成する電源の電圧や電流、真空モニターなどについて、同時に 5 つのパラメータを設定して装置の監視ができるようになった。これまでに比べて装置の運転操作がずっとやりやすくなったといえる。

このような制御システムの更新により測定は比較的順調に進行し、12月末までの1年間に1701個のターゲットを測定することができた。また、これまでに測定したターゲットの総数は16,591個である。 $^{14}\text{C}$ 測定を開始した1999年からこれまでににおける $^{14}\text{C}$ 測定の経緯を表1に示す。

表1 年間のターゲット測定数と測定時間（1999年の測定開始から2010/12/31まで）

年	測定ターゲット（個）			測定時間（時間）	
	年間	月平均	積算数	年間	月平均
1999	330	28	330	352	29
2000	1,430	119	1,760	2,234	186
2001	2,077	173	3,837	3,161	263
2002	1,003	84	4,840	1,545	129
2003	1,979	165	6,819	3,219	268
2004	1,679	140	8,498	2,837	239
2005	1,771	148	10,269	3,456	288
2006	1,115	159	11,384	1,584	264
2007*	1,339	134	12,724	2,136	214 <sup>1)</sup>
2008*	866	144	13,590	1,488	248 <sup>2)</sup>
2009	1,300	186	14,890	2,470	350 <sup>3)</sup>
2010	1,701	155	16,591	3,027	279 <sup>4)</sup>

1) 耐震工事（実質的には2007/11/1-2008/06/20）の間は、年代測定装置は停止した。

2) 有効使用月：6ヶ月

2) 有効使用月：7ヶ月

4) 有効使用月：11ヶ月

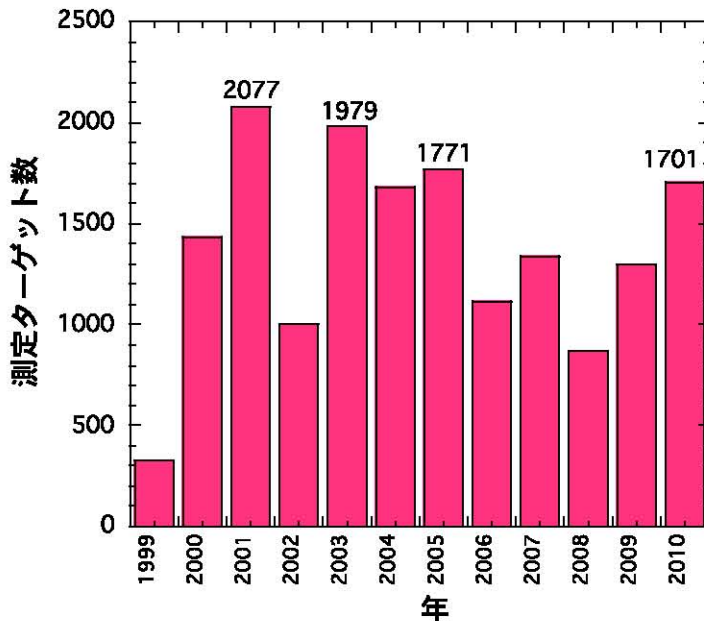


図1 1999年から2010年末までの年ごとのターゲット測定数

### 3. HVEE タンデトロン加速器質量分析計の故障の詳細

表2に、2010年における各月あたりのターゲット測定数及びタンデトロン2号機の不具合

の状況を示す。

表2 2010年における月あたりのターゲット測定数

月	測定番号 (14796～)	測定 数	batch数	コメ ント
1	15009	213	15	
2	15147	138	9	2/22 高電圧スパーク 2/24-3/16 制御パソコンシステムの更新作業
3	15147	0	0	3/7 SF6脱水蒸気 (16Hr.) 3/16 制御パソコンシステム更新の作業完了
4	15167	20	3	4/18 SF6脱水蒸気 (10Hr.) 4/22 クライオポンプ再生 4/23 SF6をボンベ (1本) からタンクへ充填 (+0.5bar) 4/28-5/1 電磁石電源冷却水パイプの目詰まりを洗浄
5	15352	185	13	5/2 <sup>14</sup> C測定 of テストランを再開 5/5 実資料の測定再開 5月末頃 <sup>14</sup> C計数の数え落とし (最終的にメインアンプを交換)
6	15609	257	17	
7	15843	234	17	
8	15937	94	7	8/5 検出器のメインアンプを交換
9	16008	71	8	9/10-9/12 SF6脱水蒸気 (30Hr.) 9/13 油回転ポンプのオイル交換 (2006/10以来)
10	16245	273	17	10/20 冷却水チラー突然停止 (冷却水不足)
11	16322	77	8	11/21 停電・断水 11/24 クライオポンプの再生と圧縮機のアドソーバー交換
12	16497	175	14	12/5 SF6脱水蒸気 (20Hr.) 12/10 イオン源試料交換メカの不良, 圧縮空気の制御不良
		合計 1701		

SF<sub>6</sub>循環脱水システムを導入し作動させ始めてから3回目の加速器放電が2010年2月22日に発生した。2月24日から3月16日にかけて制御パソコンシステムの更新を実施した。5月末頃に原因不明の<sup>14</sup>C計数における数え落としが発生した。最終的には、<sup>14</sup>Cを識別し計数する重イオン検出器の信号系のメインアンプを交換すると、数え落としの症状はなくなった。9月13日に、油回転ポンプ4台につきオイル交換を行った。このオイル交換は、2006年10月に行って以来のものであるが、交換したオイルの汚れはそれほどひどくはなかった。11月に予定されていた停電・断水の際に、クライオポンプの再生とクライオポンプ圧縮機のアドソーバー交換を行った。2010年には、SF<sub>6</sub>の脱水を心がけ、年間に4回を時間をかけてSF<sub>6</sub>循環脱水システムを作動させた。現在の問題点は、イオン源試料交換における電磁バルブの動作不良である。電磁バルブが老朽化して、圧縮空気が抜けてしまうため試料交換がで

きなくなりエラーを表示して停止する。エアコンプレッサーにも負担がかかるため、早めに新品の電磁バルブと交換する必要がある。さいわいにも、日本原子力機構むつからお借りすることができ、近々交換する予定である。

#### 4. SF<sub>6</sub> ガスの露点の監視

名古屋大学では2008年5月19日から6月9日にかけて、SF<sub>6</sub>循環脱水システムの導入を行っており、この脱水システムの導入が大成功であったことを述べた。2010年には、4回SF<sub>6</sub>循環脱水システムを稼働させ、脱水を行った。このようなこまめな努力が功を奏しているようである。図2に示すように、SF<sub>6</sub>用の脱水装置を取り付けたあとに発生した高電圧放電の回数は3回のみである(2008/6/24、2008/12/8、2010/02/22)。

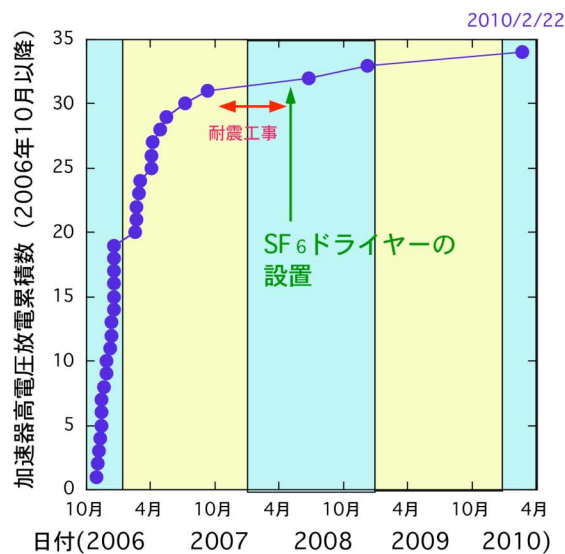


図2 加速器高電圧用の絶縁ガスSF<sub>6</sub>の露点(水分含有率を示す)の経年変動  
加速器高電圧の放電は、2008年に発生した2回、2010年に1回発生した。

#### 5. <sup>14</sup>C 測定の実用研究

名古屋大学タンデロン加速器年代測定システムによる<sup>14</sup>C年代測定では、約5千年前よりも若い試料について、ほぼ定常的に±20～±30年の誤差(1標準偏差)で年代測定が可能である(Nakamura et al. 2004; 2007)ため、文化財科学や考古学関連のさまざまな資料の年代測定についての利用が期待されている。また、年代測定に限らず、環境研究などにも幅広く利用されている(名古屋大学加速器質量分析計業績報告書1988-2010)。これらの応用研究は、今回のシンポジウムでも報告された。

今回のシンポジウムで、本庄氏や池森氏から報告された、大気中エアロゾル粒子中に含まれる炭素成分の<sup>14</sup>C濃度は、粒径を区分しない全エアロゾルについて、2009年7月から2010年6月までの1年間の平均で50.4±8.1pMCと得られた。エアロゾル粒子中に含まれる炭素成分を単純に現生生物起源の炭素と化石燃料燃焼による煤煙や自動車の排気ガスからもたらされたものの2成分に区分できるとすると、化石燃料起源の炭素が約50%寄与していることになる。また粒径が2.5μm以下の粒子からなるPM2.5と称されるエアロゾル粒子については、2005年4月から2006年3月までの1年間の平均で37.1±9.2pMCと得られた。この結果は、

粒径の小さいエアロゾル粒子の方が化石起源燃料の炭素の割合が 15%程度大きいことを意味する。PM2.5 については、環境の濃度基準が設けられているが名古屋市はまだこの基準を達成できていない。大気中エアロゾル粒子を極力減らすためには、粒子の起源を調べておく必要があり、 $^{14}\text{C}$  測定の利用が大いに役立っている。

これに合わせて大気中の炭素のガス成分である二酸化炭素の  $^{14}\text{C}$  濃度の研究も進められている（中村・太田、2010）。ここでは、大気中の二酸化炭素が植物に固定されたものを  $^{14}\text{C}$  測定試料として用いる。2008 年に名古屋市の東部丘陵地帯にある名古屋大学東山キャンパス内、及び周辺の道路沿いに生育する松の木の葉を採取してその  $^{14}\text{C}$  濃度を測定した。交通量の多い交差点に生育している松の葉の  $^{14}\text{C}$  濃度は  $98.0 \pm 0.3 \text{ pMC}$ 、それ以外の東山キャンパス内にて生育した松の葉の  $^{14}\text{C}$  濃度の平均値は  $101.6 \pm 0.5 \text{ pMC}$  と得られている。一方、人里離れた、人工汚染が少ないと思われる地域に生えた松の葉を 2008 年に採取した試料では  $^{14}\text{C}$  濃度は、表 3 に示すように、平均すると  $104.1 \pm 0.9 \text{ pMC}$  と得られている。このように、名古屋市内の東山キャンパス内では、約 2.5% の化石燃料起源の二酸化炭素の寄与があり、交差点では約 6.1% の寄与が見られることになる。

大気中の二酸化炭素では、元々多量に存在する二酸化炭素に化石燃料起源の二酸化炭素が加わることになるが、大気中エアロゾル粒子はそのものが大気中で形成されるため  $^{14}\text{C}$  濃度の変化は大きい。1970-80 年代の大気汚染が酷かった時期に比べて現在は、ずっときれいになっているが、大気汚染の研究は、世界市民にとって重要な健康問題であり、 $^{14}\text{C}$  は環境トレーサーとして役立っている。

表 3 人里離れた地域に生えた松の葉の  $^{14}\text{C}$  濃度 (2007 年に形成されたもの)

試料採取場所	$\delta^{13}\text{C}(\text{‰})$	$^{14}\text{C}$ 濃度(pMC)	Lab. Code #
高知市桂浜	-27.1	$103.6 \pm 0.3$	13866
高知県室戸岬	-27.9	$105.1 \pm 0.3$	13865
薩摩硫黄島	-30.2	$104.8 \pm 0.3$	13863
高知県黒潮町	-31.8	$104.3 \pm 0.4$	13862
屋久島-1	-29.2	$106.6 \pm 0.3$	13721
屋久島-2	-28.9	$105.0 \pm 0.3$	13860
屋久島-3	-31.0	$104.3 \pm 0.3$	13861

## 謝辞

タンデム加速器質量分析計の改造や保守、さらに運転のための消耗品類の開発などで、名古屋大学全学技術支援センターの教育・研究技術支援室の皆様には大変お世話になっていきます。特に、鈴木和司、鳥居龍晴、松下幸司の 3 氏には、当センターを担当し様々に支援して頂いています。また、ガラス工作室の野田敏昭、夏目秀子、岡本久和の 3 氏には、試料調製のガラス真空装置の修理など、日本原子力研究開発機構むつ事務所の関 武雄・甲 昭二・田中孝幸の 3 氏には、同事業所で準備されている保守用の部品類をお貸し頂くなど、便宜を図って頂いています。さらに、装置の故障の際には、放射線医学総合研究所基盤技術センター研究基盤技術部の酢屋徳啓、株式会社エリコンのシステム部所属の関野達也の両氏には多大なご支援を頂いています。ここに、記して関係者の皆様には深く感謝致します。

**参考文献**

- 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書(1988～2010)名古屋大学年代測定総合センター. (I～XXI).
- Nakamura, T., E. Niu, H. Oda, A. Ikeda, M. Minami, H. Takahashi, M. Adachi, L. Pals, A. Gott dang, and N. Suya (2000) The HVEE Tandetron AMS system at Nagoya University. *Nucl. Instru. and Meth. in Phys. Res.*, B172, 52-57.
- Nakamura, Toshio, Etsuko Niu, Hirotaka Oda, Akiko Ikeda, Masayo Minami, Tomoko Ohta and Takefumi Oda (2004) High precision  $^{14}\text{C}$  measurement with the HVEE Tandetron AMS system at Nagoya University. *Nucl. Instru. and Meth. in Phys. Res.* B223-224, 124-129.
- Nakamura, T., Miyahara, H., Masuda, K., Menjo, H., Kuwana, K., Kimura, K., Okuno, M., Minami, M., Oda, H., Rakowski, A., Ohta, T., Ikeda, A., and Niu, E. (2007) High precision  $^{14}\text{C}$  measurements and wiggle-match dating of tree rings at Nagoya University, *Nucl. Instru. and Meth. in Phys. Res.*, B259, 408-413.
- 中村俊夫・太田友子 (2010) 環境試料の  $^{14}\text{C}$  濃度変動 - 名古屋大学東山キャンパスに生育する松の葉の  $^{14}\text{C}$  濃度の経年変動と生育場所依存性. 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, XXI, 126-135.