

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 (2012)  
Status and Applications of a Tandetron AMS System at Nagoya University in 2012

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>・一木絵理<sup>1</sup>・伊藤一充<sup>1</sup>・宮田佳樹<sup>1</sup>・  
箱崎真隆<sup>1</sup>・太田友子<sup>1</sup>・西田真砂美<sup>1</sup>・池盛文数<sup>2</sup>・城森由佳<sup>2</sup>・  
加藤ともみ<sup>2</sup>・早田 葵<sup>2</sup>・長谷和磨<sup>2</sup>・富山慎二<sup>3</sup>

Toshio Nakamura<sup>1</sup>, Masayo Minami<sup>1</sup>, Hiroataka Oda<sup>1</sup>, Akiko Ikeda<sup>1</sup>, Eri Hitoki<sup>1</sup>, Kazumi Itoh<sup>1</sup>,  
Masataka Hakozaiki<sup>1</sup>, Yoshiki Miyata<sup>1</sup>, Tomoko Ohta<sup>1</sup>, Masami Nishida<sup>1</sup>, Kazufumi Ikemori<sup>2</sup>,  
Yuka Jyomori<sup>2</sup>, Tomomi Kato<sup>2</sup>, Aoi Soda<sup>2</sup>, Kazuma Hase<sup>2</sup>, Shinji Tomiyama<sup>3</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, 1772, 1115, 1339, 866, 1300, 1701, 1449, 1634 in each year from 1999 to 2012, respectively, and total number of targets measured by the end of 2012 is 19,674.

The Tandetron AMS system worked well in the early half of 2012, with only minor failures. In September, a noise became large from the  $^{12}\text{C}$  beam chopper, in the recombinator system, owing to the problem of a ferro-fluid-feedthrough, which had been used since June, 2008. We have replaced the ferro-fluid feedthrough to a new one. Soon after the chopper problem, the turbo molecular pump (TMP) in the recombinator system was damaged with the bearing of the rotating fan. We sent the pump to the supplier for repair. Because of the broken bearing, the rotating fan was seriously damaged, and we must purchase a new one. On 24<sup>th</sup> October, a large noise was generated from inside of the accelerator tank. We decided to open the tank and check the parts inside. The problem was also a bearing mounted in the power generator that supplies electric power to a terminal turbo-pump mounted inside the tank. We can get a new generator in a few weeks, because HVEE possessed one for spare by chance. We

purchased it and replaced the damage generator on November. After tank opening, inner surfaces of the accelerator tank absorbed water in the atmosphere, we spent much time to remove water vapor from SF<sub>6</sub> insulator gas. We had experienced twice of high voltage sparks, but no detectable damage occurred with the accelerator system. We could have restarted <sup>14</sup>C measurements at around mid of December. Owing to these difficulties with the machine, the total number of graphite targets measured was 1634 in 2012, smaller in number than that in 2010 (1701), but a larger than in 2011 (1449).

*Keywords: accelerator mass spectrometry, radiocarbon, ferro-fluid feedthrough, turbo molecular vacuum pump, accelerator terminal pump, generator, 14C wiggle matching*

キーワード：加速器質量分析、放射性炭素、磁気流体軸受、ターボ分子真空ポンプ、加速器ターミナルポンプ、発電機、14C ウィグルマッチング

## 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 <sup>12</sup>C、<sup>13</sup>C、<sup>14</sup>C ビームを分離させ、このときに chopper wheel を用いて <sup>12</sup>C ビーム強度を約百分の一に減衰させ、その後3つのビームを再び結合して加速器に入射する。こうして炭素 <sup>14</sup>C、<sup>13</sup>C、<sup>12</sup>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 <sup>14</sup>C/<sup>12</sup>C、<sup>13</sup>C/<sup>12</sup>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 windows3.11 をベースに組まれていた。パソコンは、既に windows95 が発売されていたが、当社の対応が間に合わず windows3.11 をベースにし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ハードウェア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、多大な費用の出費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、また他には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。

一方、2011年は重大な故障こそなかったものの、測定中にイオン源におけるターゲット交換のトラブル、高エネルギー側の質量分析電磁石電源冷却水パイプの定常的な目詰まりなど、定常的な故障が頻発したこと、さらに制御パソコンのオペレーティング・システムの突然停止の頻発が発生し、8~9月、12月は <sup>14</sup>C 測定に大きな支障をきたし、年間の測定ターゲット数は1449個にとどまった。2012年は、2011年と同様な定常的なトラブルがあったものの、10月中旬までは順調に測定は進んだ。しかし、2012年10月25日に、加速器本体からの雑音がひどくなり、加速器タンクを開けたところ、タンク内に設置してある発電機の故障が判明した。発電機の交換に1ヶ月以上を要し、再測定を始めたのが12月15日となった。このため2012年の測定総数は1634個にとどまった。2012年末における測定されたターゲット総数は19,674個でおわり、20,000個を年内に達成することは出来なかった。

本稿では、2012年1月から2012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。共同利用研究による成果については本報告書に寄稿されているさまざまな分野における研究事例報告を参照されたい。

## 2. 2012年の一年間の運転状況の概要

2012年の前半は、イオン源のターゲット交換機能の不具合、高エネルギー側の質量分析電磁石の電源冷却水パイプの目詰まりによる電源の温度上昇、などのこれまでと同様な定常的なトラブルがあったものの、ほぼ順調に測定が進んだ。この間、4月17日及び8月5日の両日に、2010年2月22日以来久しぶりに加速器高電圧の放電が発生した。絶縁ガス $\text{SF}_6$ の露点は定期的に監視しており、特に悪化は見られていない。放電後にも露点測定を行ったが、特段の悪化は見られなかった。加速器高電圧の放電の原因は特定出来ていない。2012年の後半には、機器のトラブルが多発した。9月19日に $^{12}\text{C}$ イオンチョッパー駆動系の ferro-fluid feedthrough を交換した。10月18日にはイオン源のドライポンプを交換した。9月28日にはリコンビネーターのターボ分子真空ポンプを交換した。10月25日から11月30日にかけて加速器タンク内に設置してあるターボ分子真空ポンプ駆動用の電源を発生させる発電機の交換を行った。この作業で、加速器のタンクを開放したため、加速器タンク内の機器に付着した水分が絶縁ガス $\text{SF}_6$ の露点を著しく悪化させたため、 $\text{SF}_6$ ガスからの脱水作業をこまめに行った。高電圧付加テストの際に、12月13日及び12月24日に加速器高電圧の放電が発生したため、更に念入りに脱水を行った。12月15日から12月16日にかけて、 $^{14}\text{C}$ 測定テスト実験を行いほぼ満足出来る結果が得られたため、引き続き $\text{SF}_6$ ガスの脱水を実施しながら、12月20日から試料の $^{14}\text{C}$ 測定を始めた。また、発電機の修理の間に、イオン源の洗浄を実施し、新たにセシウム1gをイオン源に充填した。このように10月後半から12月前半にかけて $^{14}\text{C}$ 測定が不可能な状況が続き、最終的に12月末までの1年間に1,634個のターゲットを測定することとなった。一昨年の実績に比較すると67個少ないが、昨年よりも200個程度増加した。2012年末までに測定したターゲットの総数は19,674個である。後326個の測定で20,000個になり、この数値を2012年の目標としたが届かなかった。 $^{14}\text{C}$ 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及び図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2011/12/31まで）

年	項目	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		1,772	148	10,270	3,456	288
2006		1,115	159	11,385	1,584	264
2007*		1,339	134 <sup>1)</sup>	12,724	2,136	214 <sup>1)</sup>
2008*		866	144 <sup>2)</sup>	13,590	1,488	248 <sup>2)</sup>
2009		1,300	186 <sup>3)</sup>	14,890	2,470	350 <sup>3)</sup>
2010		1,701	155 <sup>4)</sup>	16,591	3,027	279 <sup>4)</sup>
2011		1,449	140 <sup>5)</sup>	18,040	2,856	286 <sup>5)</sup>
2012		1,634	163 <sup>5)</sup>	19,674	3,204	320 <sup>6)</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

3) 有効使用月：7ヶ月

4) 有効使用月：11ヶ月

5) 有効使用月：10ヶ月

6) 有効使用月：10ヶ月

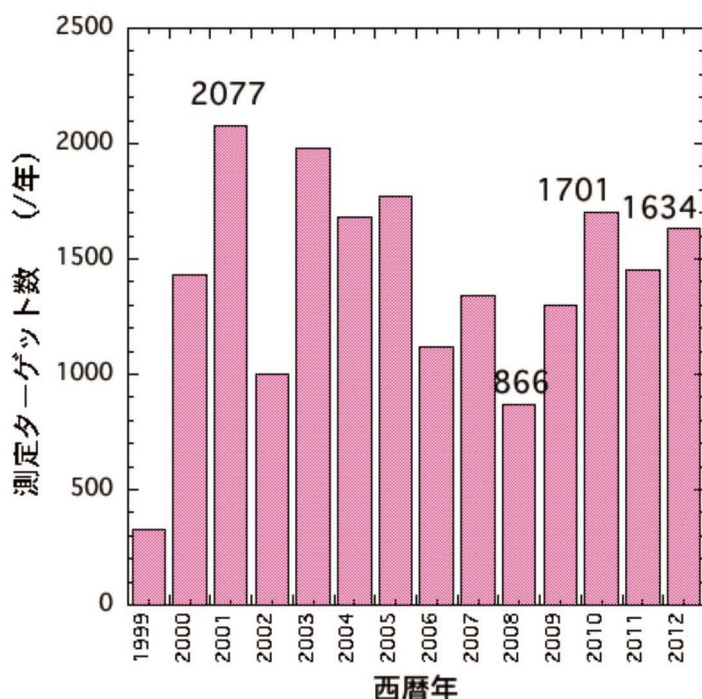


図1 1999年から2012年末までの年ごとのターゲット測定数

### 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、2012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加速器質量分析計の不具合の状況を示す。表2に挙げた項目のうち、特に、 $^{12}\text{C}$ イオンチョッパー駆動系の ferro-fluid feedthrough の交換、リコンビネーターのターボ分子真空ポンプの交換及び加速器タンク内のターボ分子真空ポンプ駆動用の発電機の取替について、以下に説明を加える。

#### 3.1 $^{12}\text{C}$ イオンチョッパー駆動系の ferro-fluid feedthrough の交換

イオン源で形成される炭素負イオンのうち、炭素同位体で最も存在割合が高い  $^{12}\text{C}$  では、 $^{12}\text{C}$ イオン電流は20uAになることもある。この電流強度のイオンを加速管で加速すると、加速器に大きな負荷がかかり、加速電圧2.5MVを安定して保持することが出来なくなる。加えて、加速中に加速器内から放射される放射線量が非常に高くなり放射線安全管理上の問題になる。そこで、加速器にイオンを入射する前に、 $^{12}\text{C}$ イオン電流を1/100に減衰する装置が備わっている。これが  $^{12}\text{C}$ イオンチョッパーと言われるもので、 $^{13}\text{C}$ 、 $^{14}\text{C}$ イオンはそのまま通過させながら、 $^{12}\text{C}$ イオンのみを回転スリットを用いて1/100に減衰させる。真空系内にある回転スリットを真空外にあるモーターを用いて駆動するために真空シールを行いつつ回転を真空外から真空内に伝える機構として ferro-fluid feedthrough が用いられる。ferro-fluid feedthrough は回転運動をしているため、使用している間に、真空シールが劣化してついには真空漏れが発生する。今のところ修理は出来ないため、真空漏れが発生したら、この feedthrough を交換することになる。これまで用いていた feedthrough は、2008年6月に交換したものであり、使用時間は37,000時間になる。写真1 a, b に示すように、リコンビネーターの真空を大気に戻して feedthrough の交換を行った。交換後は雑音の発生がほとんど無くなり順調に稼働している。



写真1 リコンビネーター部にある chopper wheel のハウジング。中央部に立てに wheel が設置される。左手部が ferro-fluid feedthrough



写真2 Chopper wheel

この円盤の外周部に放射方向に細いスリットが刻まれている。

### 3. 2 リコンビネーターのターボ分子真空ポンプの交換

2013年9月21日あたりから、リコンビネーターにある真空計が示す真空度が変動し、真空度の悪化を示す症状が出ていたが、9月25日にリコンビネーター部を排気するターボ真空ポンプが突然停止し、その後再稼働が出来なくなった。予備品が購入してあったため交換することが出来、 $^{14}\text{C}$ 測定を呈する必要は無かった。取り外したターボ分子真空ポンプを点検のためにメーカーに送付したところ、ポンプの羽を回転させるベアリングが破損しそのためにポンプの羽の回転に不具合が生じていることが判明した。ベアリング交換では、元通りにならないため、廃棄することとなった。



写真3 リコンビネーター部に組み込まれているターボ分子真空ポンプ

### 3.3 加速器タンク内のターボ分子真空ポンプ駆動用の発電機の交換

タンデトロン加速器質量分析計では、陰イオンを初段の加速管で加速し、陰イオンを陽イオンに変換して二段目の加速管で更に加速してイオン粒子のエネルギーを高くする。この荷電変換は、陰イオンをアルゴンガスに衝突させ、衝突エネルギーでイオンの電子をはぎ取る過程で進行する。荷電変換は、加速器のターミナルに設置された内径 12mm、長さ 120cm のパイプ内で行われる。ターミナルに設置された Ar ガスボンベから Ar ガスがわずかずつ荷電変換パイプ内にリークされ、この Ar ガスは最終的に加速器タンクの両端にある真空ポンプで排気される。この荷電変換を効率よく行うために、真空ポンプに向かう Ar ガスを、荷電変換パイプの両端のところでターボ真空ポンプで集めて、荷電変換パイプの中央に戻してやる。こうして、荷電変換パイプを高密度の Ar ガスで満たして荷電変換を効率よくおこなう。2.5MV の高電圧がかかっているところにあるターボ真空ポンプにタンクの外から電源ラインを引くことはできない。そこで、加速器ターミナルで発電してターボ分子ポンプの電源をまかなう。今回は、この発電機の永久磁石を回転させるベアリングが破損した。数ヶ月前から加速器タンク本体から  $^{14}\text{C}$  測定中に異常音が聞こえていた。その音が次第に大きくなって来ていたが、10月25日にはその雑音が一段と大きくなったため、加速器タンクを開けて内部を点検することにした。ターミナルにおける発電に関わる回転力伝達の駆動系のベアリングが複数個有り、それを点検したところ、最終的に発電機のベアリングに行き着いた。他のベアリングは、今のところ問題ないことが判明したため、新たに代替用の発電機を購入して取替を行った。特殊な発電機であったが、幸いにもタンデトロン加速器質量分析計のメーカーである HVEE 社に在庫があり、2週間強（11月16日）で購入出来た。その後、理学系装置開発室の援助を得て11月29日に発電機の交換作業を行った。タンク内が約1ヶ月間開放されていたため、タンク内のパーツに水分が付着している。タンクを閉めて絶縁ガス  $\text{SF}_6$  を満たした後、入念に  $\text{SF}_6$  から脱水分を行った。高電圧負荷試験を行ったところ、12月13日に大音響を発する高電圧放電が発生したため、 $\text{SF}_6$  から脱水分を繰り返した。さらに12月24日

にも、2回目の放電が発生した。こうした中、12月15日から12月16日にかけて、 $^{14}\text{C}$ 測定テスト実験を行いほぼ満足出来る結果が得られたため、引き続き $\text{SF}_6$ ガスの脱水を実施しながら、12月20日から試料の $^{14}\text{C}$ 測定を始めた。ターミナルの発電機は、その後、異常もなく順調に稼働している。



写真4 加速器タンク内の保守のためのタンクの解放



写真5 加速器タンク内の発電機の交換



写真6 使っていた発電機のボールベアリングの破損状況



写真7 加速器タンク内での発電機の交換風景



写真8 加速器タンク内の整備

表2 2012年における月あたりのターゲット測定数

月	測定番号 (17947~)	測定数	batch数	コメント
1	18190	244	18	1/1 ターゲット交換の作動不良 1/2 ターゲット交換の作動不良, ターゲット交換のアームの位置調整. 結果良好 1/8 <sup>12</sup> C-ビームチョッパーの ferro-fluid feed-through の雑音が大きくなっている. 近いうちに, 真空漏れの可能性有り. 1/22 リコンビネーター粗びき用ロータリー真空ポンプの雑音が酷くなったため, アルカテル製のポンプに交換した. 1/28 クライオポンプ・コンプレッサーの He-gas 圧力が 18.1~18.2bar に低下したため, He-gas の充填を行った (21.0 bar) .
2	18346	156	21	2/25 冷却水循環装置の水漏れによる水量低下のためチラーユニットが停止. クライオポンプが停止. クライオポンプの再生 2/27 冷却水 10L 追加 2/28 冷却水 10L 追加
3	18421	75	9	3/22-3/23 クライオポンプの定期保守作業
4	18613	192	17	4/9 イオン源クーラント (シリコン・フルーイド) を 250ml 追加 4/17 HV spark system down
5	18783	170	16.5	5/13 ターゲット交換の誤動作, "Serial loadNext command failed" 5/31 むつのテレメータカードを拝借して取り替えて使用開始 (PB 5-41-185-4002)
6	18903	120	12	6/2 HV5 (HE vacuum) が真空悪化により trip down telemeter card を交換 6/9 HE magnet "external error" 冷却水 10L を追加 6/26 Q-pole vacuum が突然悪化 6/28 HE turbo-molecular pump の rotary pump バックアップの騒音が激しくなったため, 新品の rotary pump と交換した. 6/30 クライオポンプの再生 最近, Q-pole vacuum がパルス的に真空悪化していた. クライオポンプの排気ガス溜め込み過ぎによる糞つまりであると判断して, クライオポンプの再生を行った.
7	19072	169	17	7/1 クライオポンプの再稼働 7/23 タンデ実験室のエアコンの第 2 段圧縮機で熱交換用の冷媒ガス漏れあり. 停止して修理が必要
8	19238	166	20	8/5 "terminal sparking" による trip-down が 3 回立て続けに発生 11:00 11:52 14:40 と 3 回発生, 以後は, 安定してきた 8/23 検出器のイソプタン交換 8/24 イオン源冷却冷媒「パーレルシリコンフルーイド (M-2)」追加充填 chopper wheel の Ferro-fluid-feed-through の雑音が大きくなった 冷却水チラーユニットのフィルター掃除と冷却水 10L を追加



				8/29 4:00AM にターゲット交換エラー イオン源を開けて点検の結果, Wheel の回転で芯出し がうまくいっていない.
9	19311	73	7	9/14 HV2 (recombinator vacuum)の変動が大きい. chopper wheel の ferro-fluid-feedthrough ユニットの雑 音有一段と大きくなった. 交換が必要. 9/19 chopper wheel の ferro-fluid-feedthrough ユニットの交 換した. 前回の取り替えは 2008 年 6 月であり, その後 の使用時間は 37,000 時間. 9/20 検出器のイソプタン交換 9/21-9/25 HV2 (recombinator vacuum)の真空度が変動, 悪 化 9/25 recombinator TMP が停止. 再起動不能. 9/28 recombinator TMP の取り替え作業
10	19411	100	15	10/1 6:00 AM "Serial loadNext sample failure"が発生して, ion source にターゲットを入れたまま停止. 10/10 HE Magnet PS 異常停止. 冷却水漏れで周辺が水漬し. 10/11 冷却水チラーユニットの冷却水 20L を追加 10/12 HE Magnet PS の冷却水パイプの物理的洗浄 10/18 ion source の differential pump のためのドライポンプ の交換. 2009 年 1 月以来の交換である. 10/24 タンデタンクの雑音が一層と高くなった. 10/25 タンデタンクの雑音が更に高くなったため, 点検のため にタンク開を決意した. 10/27 SF6 ガスの回収を開始. 10/29 回収装置の油回転ポンプの点検とオイル交換 10/30 タンク開 10/31 タンク内の点検, 発電機のベアリングの不良と判断され た. ベアリングの回転音を聴診器で点検
11	19411	0	0	11/1 ターミナルの発電機を取り外し. 発電機の回転軸の回 転不良を確認. 他のベアリングはすべてスムーズに回 転しているように感じられる. 極東貿易に発電機の代 替え品の入手を依頼 11/2 HVEE 本社に発電機の在庫があることが判明した. こ れを購入することとした. 11/16 発電機の入荷有り, 名大理装置開発と修理の段取りを 相談. 11/18 名大東山キャンパス内全学停電 11/28 タンデトロンのタンク内の点検, 掃除 11/29 発電機の取り付け作業 11/30 タンデトロンのタンク内の組み立て, 点検, 掃除の完 了により, タンクを閉, 排気開始, 排気後, N <sub>2</sub> ガスを タンクに入れて水分の除去を試みる. 11/30-12/3 イオン源の掃除, アラインメントのチェック
12	19580	139	14	12/4 Cs 1g を充填 12/6 Cs reservoir Control の不良. むつ AMS の甲さんに相 談したところ, temperature control ユニットの不良と 判明 SF <sub>6</sub> の充填を開始 12/7 クライオポンプの再稼働 12/8-12/12 HV の付加テスト, SF <sub>6</sub> ガスの脱水作業 12/13 第 1 回目の高電圧放電 (大音響を確認) 12/14-12/18 SF <sub>6</sub> ガスの脱水作業 12/18-12/20 第 1 回目の測定ランが無事に完了 12/24 第 2 回目の高電圧放電 12/25-26 SF <sub>6</sub> ガスの脱水作業 12/26-29 第 2 回目の測定ランが無事に完了

				12/29-31 SF <sub>6</sub> ガスの脱水作業 12/31-1/5 第2回目測定ランが無事に完了
		合計 1634	合計 166.5	

#### 4. <sup>14</sup>C 測定の応用研究：台座木材の年代測定と <sup>14</sup>C ウィグルマッピング

法隆寺で使われていたとされる台座について、<sup>14</sup>C 年代測定を実施した。写真 7 のような形状で有り何らかの建物の台に使われていたように思われる。木材を中心に二分割して片側の部材を加工したものである。年輪数を数えると、中心部を 1 として、最外年輪は 66 か 67 と数えられる。中心部は年輪幅が 5mm 程度もあり年輪計数がしやすいが、外側では、年輪幅が狭くなっており、最外年輪は 66 か 67 かがはっきりしなかった。

芯部から最外部に向かって、No.1, 26, 66-67 の 3 個の年輪試料を採取し、通常の化学洗浄方法に従い、塩酸- 水酸化ナトリウム- 塩酸の順で加熱洗浄を行い、9mm 石英管を用いて酸化銅を助燃剤として試料を燃焼して二酸化炭素を発生させて回収し、鉄触媒、水素還元法でグラファイトを得た。タンデム加速器質量分析計を用いて <sup>14</sup>C 年代測定を行い、表 4 のように、<sup>14</sup>C 年代と校正年代を得た。樹木の成長を考慮すると、芯の部分が最も古く、外側に向かって若くなるはずであるが、年輪の <sup>14</sup>C 年代の値は全く逆になっている。IntCal09 校正データを用いて <sup>14</sup>C 年代から暦年代へ校正を行うと、得られる暦年代は、図 9 に示すように、年輪成長の順序と調和することがわかった。IntCal09 校正データは、西暦 1050 年～1150 年にかけて暦年代が若くなるにつれて <sup>14</sup>C 年代は古くなる傾向にある。この台座木材の年輪は、自然現象によりまさに大気中の <sup>14</sup>C 濃度が減少傾向にある時期に成長して、大気中の二酸化炭素を取り込んで年輪を形成したことになる。<sup>14</sup>C ウィグルマッピングに基づく年代解析を行うと、最外年輪は 2 標準偏差の範囲で AD1111～AD1154 の暦年代にあたることになる。

表 3 台座木材から採取された年輪試料とそれらの <sup>14</sup>C 年代測定結果および校正暦年代

試料番号	試料材料	化学処理後の試料重量(mg)	回収された CO <sub>2</sub> の重量 (mgC) (%)	$\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}^*$ (‰)	<sup>14</sup> C age (BP)	<sup>14</sup> C 年代を暦年代に校正した年代 (Reimer et al. 2009) ** 校正年代範囲(±2σの範囲) (可能性の確率: probability)	測定番号 (NUTA2-)
HRJ-1	木片	6.85	3.10 (45.2%)	-26.0±1.0	895±20	cal AD 1044-1097 (38.6%) cal AD 1119-1212 (56.8%)	18838
HRJ-2	木片	6.76	2.96 (43.8%)	-24.6±1.0	944±20	cal AD 1028-1154 (95.4%)	18839
HRJ-3	木片	6.72	2.84 (42.2%)	-25.4±1.0	954±20	cal AD 1022-1059 (28.9%) cal AD 1066-1154 (66.5%)	18840

\*)  $\delta^{13}\text{C} = [({}^{13}\text{C}/{}^{12}\text{C})_{\text{sample}} / ({}^{13}\text{C}/{}^{12}\text{C})_{\text{PDB}} - 1.0] \times 1000$  (‰),

ここで、PDB は Pee Dee Belemnite の略記で炭酸カルシウムからなる矢石類の化石であり、<sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C 比の標準体として用いられる。

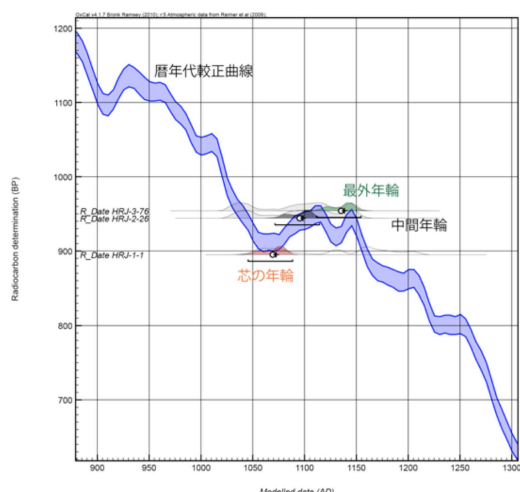


図 4 3 個の木材年輪の  $^{14}\text{C}$  年代と IntCal09 暦年代校正データセットとの比較



写真 9 台座木材の年輪計数

写真の右中央が木材の芯部にあたる

$^{14}\text{C}$  年代値から見ると、芯部、中央部、最外部の順で次第に古い年代になるが、暦年代校正を行うとこの順番で次第に若い暦年代になり、実際と辻褃が合うことが判る。

## 5. おわりに

名古屋大学タンデトロン加速器年代測定システムによる  $^{14}\text{C}$  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  $\pm 20 \sim \pm 30$  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、暦年代との比較が必然とされる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 1988-2012）。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。この稿で、改めて紹介することは行わない。本報告書にまとめられているさまざまな報告を参照して頂きたい。

## 謝辞

タンデトロン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において、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おります。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な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、試料調製用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、同型の AMS を使用していることから、さまざまな情報を交換するなどして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、そしてタンデトロン加速器質量分析計の輸入代理店の小倉一郎氏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(1988～2012)名古屋大学年代測定総合センター. (I～XXIII).
- 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.