

名古屋大学タンデトロン AMS ^{14}C システムの現状と利用 (2014)
Status and Applications of a Tandetron AMS System at Nagoya University in 2014

中村俊夫^{1*}・南 雅代¹・小田寛貴¹・池田晃子¹・
箱崎真隆¹・城森由佳¹・太田友子¹・西田真砂美¹・池盛文数²・
國田圭佑²・富山慎二²・棕本ひかり³

Toshio Nakamura¹, Masayo Minami¹, Hirotaka Oda¹, Akiko Ikeda¹, Masataka Hakozaiki¹, Yuka Jyomori¹, Tomoko Ohta¹, Masami Nishida¹, Kazufumi Ikemori², Keisuke Kunita², Shinji Tomiyama³, Hikari Mukumoto³

¹名古屋大学年代測定総合研究センター

²名古屋大学大学院環境学研究科

³名古屋大学理学部

¹ Center for Chronological Research, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-8602 Japan

² Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-8602 Japan

³ School of Science, Nagoya University

*Corresponding author. E-mail: nakamura@nendai.nagoya-u.ac.jp

Abstract

An AMS system (Model 4130-AMS) dedicated to ^{14}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}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, 1351, 1741 in each year from 1999 to 2014, respectively, and total number of targets measured by the end of 2014 is 22,765. We briefly describe the maintenance processes and application results of the AMS system in 2014.

The Tandetron AMS system at Nagoya University worked rather well in 2014, with only minor failures, such as (1) target exchange trouble, (2) high temperature problem of the circulating water for cooling down the power supply system for two high-energy mass-analyzing magnets, and (3) damage of a diaphragm vacuum pumping system in the ion source stage. In spite of these minor difficulties with the machine, the total number of graphite targets measured was 1741 in 2014, about 400 more in number than that in 2013 (1351).

Keywords: *accelerator mass spectrometry, radiocarbon, diaphragm vacuum pump, magnet power supply, target exchange system*

キーワード: 加速器質量分析、放射性炭素、ダイアフラム真空ポンプ、マグネット電源、ターゲット交換システム

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 (HVE)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 wheel を用いて $^{12}\text{C}^-$ についてのみ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 ^{14}C 、 ^{13}C 、 ^{12}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)。

2013 年末までの装置の運用、稼働状況については、これまでに発行された報告書 (名古屋大学加速器質量分析計業績報告書 1988-2014) に概要を述べているので参考にされたい。2013 年には、加速器タンクを 2 回も開放する事態になった。ターミナルポンプ作動時に激しい雑音が加速器短期内から発生した。もう一度は、加速器高電圧読み取りの Generating Volt Meter (GVM) の劣化である。加速器の高電圧が正しく読めないようになり、また、高電圧の読み値が時間と共に低い値にずれていく。このような故障に対処したため、2013 年の一年間の測定ターゲット数は、1351 個と少なかった。2014 年は、本稿でまとめるように、定例ともいえる小規模の故障は発生したものの、装置を長期間停止し、加速器タンクをオープンするような事態には至らなかった。2014 年の測定ターゲット数は 1741 個と平均レベル以上の個数を達成した。この期間に行われた ^{14}C 測定利用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. 2014 年の一年間の運転状況の概要

2014 年の一年間に測定したターゲット数、使用時間などを表 1 にまとめる。また、表 2 に各月毎の装置の保守状況と測定ターゲット数を示す。2014 年には、特殊な故障は少なく、これまでも頻発する故障が相変わらず発生した。主な事象としては、

1. イオン源における Cs の枯渇のため洗浄保守、アイオナイザーの交換 (1 月)
2. イオン源のターゲット交換の失敗による点検 (2 月)
3. クライオポンプの保守 (3 月)
4. HE-Magnet 電源の冷却不良による停止 (6, 7, 8, 11 月)
5. 4 年に一度の、法定の放射線施設の定期点検・定期確認 (9 月)
6. イオン源ダイアフラム真空ポンプの故障、予備の新品と交換
7. 名大構内の定期停電、断水
8. 加速器高電圧が突然ダウン

のようなことがあったが、大きな問題に至らず、そのために装置を停止させる必要もなく対処できた。

2007 年から 2014 年までの月ごとに測定したターゲット数を図 1 に、利用を開始した 1999 年から 2014 年までの毎年に測定したターゲット数を図 2 に示す。図 1 に示されるように、通常の年では、故障により 1-2 ヶ月の停止があるが、2014 年には長期停止はなく、毎月利用が進められた。また、図 2 から判るように、2014 年の測定ターゲット総数は、2006 年以降で最も数が多く、1741 個が測定出来た。利用を開始した 1999 年から 2014 年末までの測定総数は、表 1 に示されるように、22,765 個に及ぶ。

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2014/12/31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		1,771	148	10,269	3,456	288
2006		1,115	159	11,384	1,584	264
2007*		1,339	134 ¹⁾	12,723	2,136	214 ¹⁾
2008*		866	144 ²⁾	13,589	1,488	248 ²⁾
2009		1,300	186 ³⁾	14,889	2,470	350 ³⁾
2010		1,701	155 ⁴⁾	16,590	3,027	279 ⁴⁾
2011		1,449	140 ⁵⁾	18,039	2,856	286 ⁵⁾
2012		1,634	163 ⁵⁾	19,673	3,204	320 ⁵⁾
2013		1,351	169 ⁶⁾	21,024	2,795	349 ⁶⁾
2014		1,741	145 ⁷⁾	22,765	3,571	298

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: 8ヶ月

7) 有効使用月: 12ヶ月

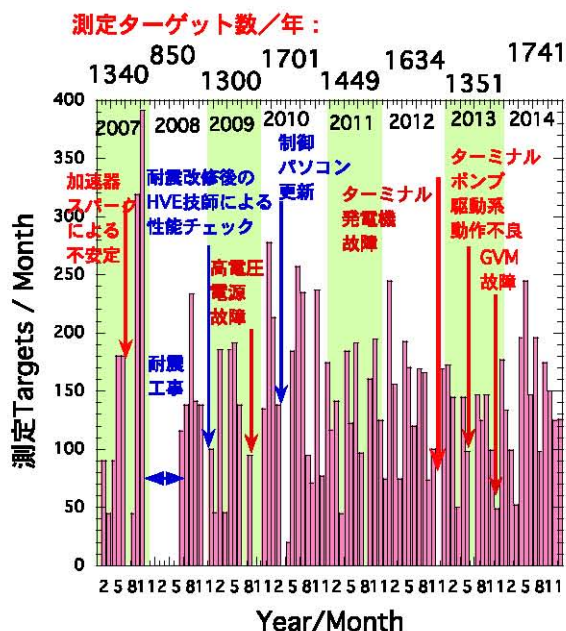


図1 2007年から2014年までの月ごとのターゲット測定数

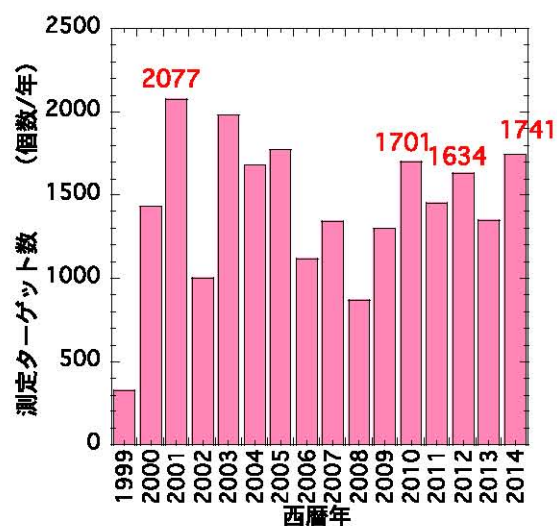


図2 1999年から2014年末までの年ごとのターゲット測定数

表 2 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 2014/12/31 まで)

月	測定番号 (NUTA2- 20931~)	測定数	batch数	コメント
1	21064	133	12	1/02 Ion source の Penning 真空計センサーの取替 1/27 Cs アイオナイザーの断線, ヒーターが働かず, C-ビーム出力が無い 1/30-2/2 イオン源の洗浄保守, Cs を 1g 充填
2	21163	99	8	2/16 重イオン検出器のイソプタンガスの交換 2/18 イオン源のターゲット交換失敗 2/19 イオン源を開けて, ターゲットとホイールの点検の結果, ターゲットがホイールの席にしっかりと固定され, 取り出すのに力がある. アルミニウムのターゲットの直径が, 大きすぎる事が原因か.
3	21215	52	9	3/06-07 クライオポンプのヘッドおよびコンプレッサーの保守 (業者による) を実施。 3/28 パソコンなどのコントロールシステム系に設置してある無停電電源のバッテリーを交換した。 3/31, 4/1, 4/2 この3日間に, SF6 の脱水を行った。 3/31 クライオポンプのヘッド (LE-Q-snout の箇所) から, きゅっきゅっと音が聞こえる. ヘッドの温度, 等を確認したが, 異常は見つからない。
4	21411	196	16	4/16 Batch プログラムの作動不良. Source PC をリセットしたら, Batch プログラムが作動を開始した。
5	21656	245	21	
6	21803	147	13	6/02 冷却水チラーユニットの保守。 6/02 重イオン検出器のイソプタンガスの交換 6/03 HE-magnet の電源のブレーカーが作動して, パワーオフ. ブレーカーをリセットすると, 再作動かが可能。 6/03 電源の冷却水パイプの保守を実施した。 6/13 再度(2回目), HE-magnet の電源のブレーカーが作動して, パワーオフ. ブレーカーをリセットすると, 再作動かが可能. 再作動させて, 電流値をチェックしたが, 異常はない. ひょっとすると, マグネットとの温度センサーが作動したのかもしれない. マグネットの冷却水パイプがかなり汚れて見える。
7	21999	196	15	7/06 HV がダウン. エラー表示は「HV trip down」. 表示をリセット, HV 立ち上げ OK。 7/17 HE-magnet 電源が, 「temperature error P2」でダウン. リセット, OK 7/18 HE-magnet の電源が, 「temperature error P2」でダウン. リセット, OK 7/31 HE-magnet の電源が, 「temperature error P2」でダウン. リセット, OK
8	22097	98	7	8/01 110 度電磁石, 90 度電磁石の冷却水パイプの交換 (冷却水の出口のパイプがかなり汚れていた. 詰まりを心配して交換した) 8/02 HE-magnet の電源の制御装置で, 「temperature error P2」でダウンを繰り返す。 8/02 クライオポンプの再生 (3/06-07 以来 5 ヶ月ぶりに実施) 8/02 循環冷却水のフィルターを交換した。 8/04 HE-magnet 電源の冷却水パイプの洗浄作業を実施した。
9	22271	174	19	9/02 重イオン検出器のイソプタンガスの交換 9/25 放射線施設の定期検査・定期確認を受けた (5 年に 1 回が義務づけ)
10	22421	150	17	10/27 2 年使ったイオン源用ダイヤフラムポンプ (MVP 015) を予備品と交換した。
11	22546	125	13	11/16 名大構内の定期停電, 断水 11/17 停電後に PC など用の無停電電源の作動不良有り. バッテリーの充電を行った。 11/30 運転中に, 加速器 HV が突然ダウン. 原因不明. リセットして, 再稼働できた。
12	22546	125	13	12/15 重イオン検出器のイソプタンガスの交換
		合計 1741	合計 163	

3. ^{14}C バックグラウンド

2014 年に測定した ^{14}C バックグラウンド物質の ^{14}C 年代を図 4 に示す. 名古屋大学の AMS

システムの ^{14}C バックグラウンドを推定するための ^{14}C バックグラウンド物質として、鉱物起源のグラファイト粉末と ^{14}C を含まない石油から合成されたシュウ酸（キシダ化学（株）、特級シュウ酸 57952）を用いている。前者は、粉末をそのままターゲットホルダーに詰める。後者は、 ^{14}C 濃度の標準体（NIST-Oxalic acid-SRN-4990C）と同様にして、ガラスチューブ内で酸化銅により加熱分解して二酸化炭素を回収し、それを鉄粉触媒のもとに水素還元したグラファイトをターゲットホルダーに詰めて用いる。

AMS システムの ^{14}C バックグラウンドは、鉱物起源のグラファイト粉末の測定により、ほぼ 52,000～56,000 BP に相当することが示された。また、試料調製を含めて、一般的な試料についての ^{14}C バックグラウンドは、シュウ酸試料の測定から、45,000～50,000 BP に相当することが示された。

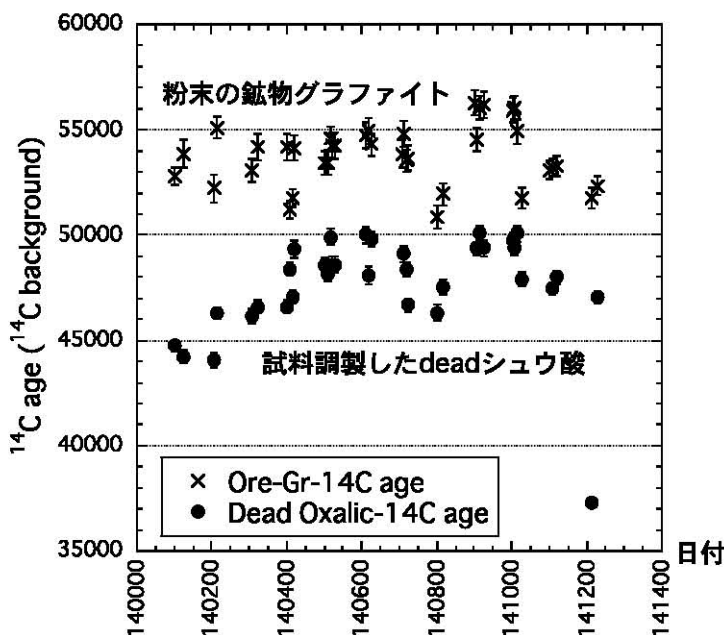


図3 2014年、鉱物起源のグラファイト粉末および ^{14}C を含まない石油から合成されたシュウ酸について測定した ^{14}C 年代

4. HVEE タンデトロン加速器質量分析計の故障

2014年の一年間のAMSのトラブルについては、既に述べたとおりである。幸いにも、修理に数週間を要するような重大なトラブルは発生しなかった。ここでは、イオン源ダイアフラム真空ポンプ（写真1）の故障、予備の新品と交換について概説する。

前触れとしては、数分、あるいは数時間をおいて間欠的に「機械音」が装置の方から、特に、イオン源や加速器のイオン入射部から聞こえてきた。間欠的に発生する音であり、発生源を特定することは難しかった。しかし、AMSが稼働してイオン源でターゲット交換する度に、次第に、イオン源での真空度が悪くなる症状が出ていた。最後には、2014年10月26日に完全停止した。そこで、予備品として購入していたものと交換した。交換後は、順調に稼働している。

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}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、試料調製を含めた AMS 14C 年代測定のバックグラウンドは、45,000-50,000BP に相当しており、4 万年前の前半程度までは、測定可能である。本システムは、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 1988-2014)。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。



写真 1 イオン源のステージに設置されているダイヤフラム真空ポンプが金属音を発して故障した。

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(旧理学部 装置開発室)の皆様には大変お世話になっています。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、ガラス工作室の夏目秀子、岡本久和の両氏には、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 昭二の両氏には、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(1988~2014)名古屋大学年代測定総合センター。(I ~ XXV).
- 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}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}C measurements and wiggle-match dating of tree rings at Nagoya University, *Nucl. Instru. and Meth. in Phys. Res.*, B259, 408-413.