

# 名古屋大学宇宙地球環境研究所 AMS 施設の運用—炭素 14 年代測定データの品質保証・管理 Management of the Accelerator Mass Spectrometry Laboratory in ISEE, Nagoya University- - Quality assurance and quality control in ISEE, Nagoya University-

北川浩之<sup>1\*</sup>  
Hiroyuki Kitagawa<sup>1</sup>

<sup>1</sup>名古屋大学宇宙地球環境研究所（年代測定研究部）

<sup>1</sup>Institute for Space-Earth Environmental Research (ISEE), Nagoya University,  
Chikusa-ku, Nagoya 464-8601, Japan

\*Corresponding author Email: [hiroyuki.kitagawa@nagoya-u.jp](mailto:hiroyuki.kitagawa@nagoya-u.jp)

## Abstract

The AMS laboratory at the Institute for Space-Earth Environmental Research (ISEE) at Nagoya University is open to a variety of academic and practical users at home and abroad as a Joint Usage/Research Laboratory. We have conducted a collaborative research program for AMS radiocarbon dating and its application in related fields. We are developing quality control (QC) and quality assurance (QA) procedures to operate the program in an effective manner. This report explains the basic concept of our QC/QA system still under development.

## はじめに

2015 年 10 月、名古屋大学年代測定総合研究センターは、名古屋大学太陽地球環境研究所と地球水循環研究センターと統合し、名古屋大学附置研究所宇宙地球環境研究所（以後、「ISEE」という。）に改組された。ISEE は、宇宙科学と地球科学を結び付ける我が国唯一の共同利用研究所であり、地球・太陽・宇宙を 1 つのシステムとしてとらえ、そのシステム内で生起する多様な現象のメカニズムやそれらの相互関係の解明を目指している。

ISEE では、大学や研究機関に所属する研究者と本研究所のスタッフが協力して実施する共同利用・共同研究を推進している。その 1 つは、「加速器質量分析装置等利用（共同利用）」である。ISEE のスタッフが研究者や学生（以後、「共同利用ユーザ」という。）をサポートし、AMS 法による炭素 14 年代測定及びその応用研究の発展に貢献することを目的としたものである。ISEE の年代測定研究部では、共同利用ユーザが所内の施設・設備を利用して、加速器質量分析法による炭素 14 年代測定を効果的・効率的にできる研究環境の整備を進めている。その一環として、共同利用ユーザが取得したデータの品質管理・品質保証を担保するシステムの早期導入に向けた取組を行ってきた。本稿では、共同利用ユーザのデータの品質管理（QC）・品質保証(QA)システムの概要について説明する。

## AMS 分析データの QC/QA の重要性

Radiocarbon 誌に”When <sup>14</sup>C dates fall beyond the limits of uncertainty: an assessment of anomalies in western Mediterranean bronze age <sup>14</sup>C series”という表題の論文が掲載された (Lull et al., 2015)。スペイン・バルセロナ自治大学の先史学研究グループは、西地中海の青銅器時代の遺跡から出土した考古遺物や人骨化石の炭素 14 年代測定をクリスティアン・アルブレヒト大学（ドイツ・キール）の Leibniz-Labor AMS 施設に長年に亘って依頼してきた。バルセロナ自治大学の先史学研究グループ

本原稿は、第29回（2016年度）名古屋大学宇宙地球環境研究所年代測定研究シンポジウム・特別講演の内容を主体にまとめたものです。

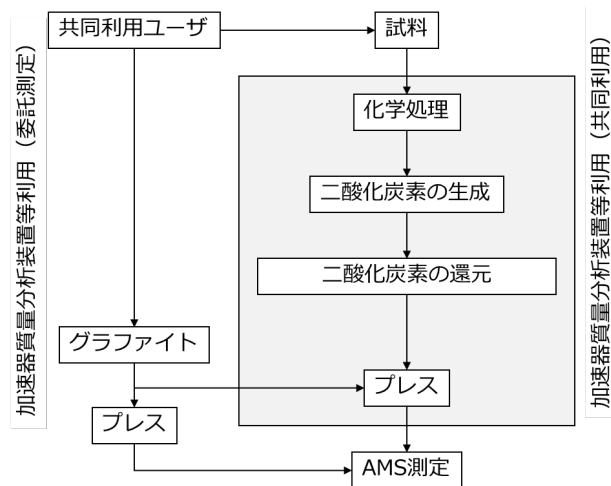


図1 名古屋大学宇宙地球環境研究所(ISEE)の「加速器質量分析装置等利用（共同利用・委託測定）」。  
 加速器質量分析装置等利用（共同利用）の利用ユーザは、ISEEの支援のもとに所内の施設を使い自ら試料調整を行うことができる。加速器質量分析装置等利用（委託利用）では、依頼試料の炭素14年代測定を所内スタッフが行う（有料）。

は、考古学で得られた編年との比較、他のAMS分析施設による炭素14年代測定結果の詳細な検討に基づき、2009年以降のある期間にLeibniz-Labor AMS施設で行われた炭素14年代測定結果の問題について示唆した。これに対して、同誌同号にLeibniz-Labor AMS施設を運用しているJ. Meadowsらは、炭素14年代測定データの確度と再現性に関する調査の結果を報告している（Meadows et al., 2015）。

Leibniz-Labor AMS施設では、国際原子力機関（IAEA）から提供されている炭素14年代測定の参照試料（IAEA C1 - IAEA C7, Rozanski, 1991; Rozanski et al., 1992; Le Clercq et al., 1998）を適宜測定することで、同施設が報告するデータのQC/QAを行ってきた。2010年から2012年の期間に関しては、参照試料の測定値が推奨値と一致していないバッチ（注：試料調整・AMS測定を同時期に実施した試料セット）の存在を確認し、当時に運用していたQC/QAシステムが十分に機能していなかったとの結論に至った。2014年、Leibniz-Labor AMS施設では、「Batch QA system」と呼ばれているより厳密なQC/QAシステムの運用をはじめた。現在、Leibniz-Labor AMS施設では、このBatch QA systemを用い、2009年以降のある期間に測定した試料で信頼性が担保できない試料の再測定を実施している。Leibniz-Labor AMS施設での当時の炭素14年代測定におけるQA/QCが十分でなく引き起こされた問題は、他のAMS分析機関がQC/QAシステムの運用の重要性を再認識する切掛けとなった。本格的なものから簡易的なものまでさまざまなレベルのQC/QAシステムがあるが、炭素14年代測定を担当する研究者・技術者でなく、AMS施設としてデータの信頼性を担保するQC/QAシステムが運用されている。

### QC/QAシステムの導入に向けた取り組み

旧名古屋大学年代測定総合研究センターでは、炭素14年代測定結果のQA/QCは、試料調整を行った利用ユーザ・所内スタッフの責任で行われてきた。機関としての測定データのQA/QC体制が整備されていなく、測定結果の信頼性については分析を担当した者しか知る由がなかった。炭素14年代測定に熟知していない共同利用ユーザが、データのQA/QCを適切に行うことは容易でなく、十分にQA/QCができていないデータも実際の研究に利用されている場合があった可能性を否定できない。現在、ISEEの年代測定研究部において、共同利用ユーザがQA/QCを行う負担の低減を目指して、AMS分析施設としての炭素14年代測定データのQA/QCシステムの構築・導入を進めている。

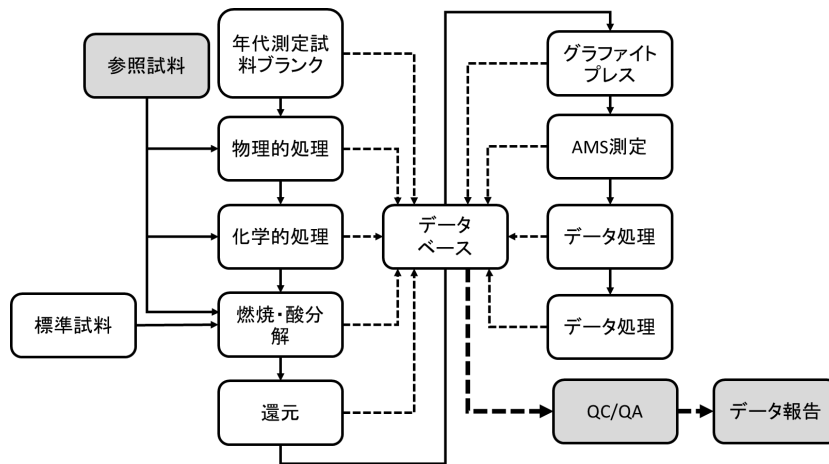


図2 名古屋大学宇宙地球環境研究所のAMS施設でのQC/QAシステムの概念図。試料調整及びAMS炭素14年代測定の一連の実験は実線、試料や試料調整に関わる情報やデータの流れは点線で示してある。すべての情報・データは、ラボラトリー情報管理データベースに蓄えられる。

炭素14年代測定データのQA/QCシステム構築に関する共通のガイドラインは存在していない。各AMS分析施設の事情に適合した独自QA/QCシステムを構築し、運用されている。AMS施設の多くでは、炭素14年代測定に必要な一連の試料調整を熟練した研究者・技術員スタッフが担当している。一方、加速器質量分析装置等利用（共同利用）では、共同利用ユーザがISEE年代測定研究部のスタッフと協力して試料調整を行う方式が運用の基本となっている（図1）。共同利用ユーザ全てが試料調整の高いスキルを備えているとは限らなく、そのような共同利用ユーザが得たデータに対してもAMS施設として責任をもつためには、データの信頼性を厳密に評価するQA/QCシステムの構築することが必要である。

共同利用ユーザが得たデータのQC/QAシステムのコンセプトを図2に示した。他のAMS施設と同様で、年代測定の対象である試料と合わせて、年代が既知の参考試料の炭素14年代を測定し、その参考試料の測定結果をもとに実試料の年代測定の結果を評価し、データの信頼性を評価するものである。

多くのAMS分析機関では、IAEAから提供されるIAEAC1～IAEAC9 (Rozanski 1991; Rozanski et al., 1992; Le Clercq et al., 1998; Hogg et al., 1995) を参考試料として用いている。このよう方式では、試料の物理・化学処理過程の不都合や不確からしさを検出することはできない。一連の試料調整実験に熟練していない共同利用ユーザが得た炭素14年代測定データのQC/QAとしては適切とはいえない。さまざまなレベルの試料調整スキルの研究者や学生が自ら試料処理を行う場合、年代測定試料のタイプ（木材や貝などの種類）・推定年代が似通った参考試料に年代対象の試料と同様の物理・化学処理を施し、参考試料の既知年代と得られた炭素14年代を比較することでQC/QAを行うことが奨励される。参考試料の既知年代と得られた炭素14年代に統計的に有意な違いが確認された場合は、試料調整を含む一連の試料調整を実施し、炭素14年代測定を再度行う。このような方式では、国際比較研究プロジェクト (Scott, 2003; Scott et al., 2007) で世界各地のAMS施設に配布された試料（多数の研究機関で測定された炭素14年代が公表されている）が参考試料として用いられることが一般的である。

著者らは国際比較研究プロジェクトで用いられた各種試料（TIRI及びFIRIと呼ばれる）を参考試料とするQC/QAを実施してきたが、共同利用ユーザが参考試料として用いる十分な量を確保できていない。炭素14年代が均質で試料量が十分確保できる多様な参考試料を準備し、共同利用ユーザに提供できる体制を整える予定である。

QC/QA システムの中核となるラボラトリー情報管理データベース（図2参照）は、試料情報、試料調整及びAMS測定作業情報を一元的に集約するものである。ISEEでは、オープンソースのデータベース管理システムMySQLを用い、データのQC/QAに必要な試料調整に関する基本48項目（サブ項目は含まない）及びAMS測定に関する40項目の合計81項の情報を一元的に集約するデータベース（RCDB: Radiocarbon database）を開発し、その試験運用を始めた（図3）。本データベースは、データベースの取り扱いに不慣れた共同利用ユーザでも比較的容易に利用できるように、データベースにアクセスするための標準的なインターフェースODBC（Open Data Base Connectivity）を介して、マイクロソフト・エクセルやアクセスを用いて操作が可能な方式を採用した。また、AMS測定各種データに関しては、別途開発したAMS分析結果の解析ソフトウェアの出力をRCDBに取り込むことが可能となっている。

### おわりに

共同利用ユーザが行う炭素14年代測定のQA/QCの負担を低減するため、機関としてデータのQC/QAを実施する体制の構築を進めてきた。本システムの運用によって、共同利用ユーザのデータのQA/QCだけでなく、年代測定研究部のスタッフが共同利用ユーザ試料調整の状況に関する情報の共有を促し、年代測定研究部のスタッフにいる試料調整過程の確認、問題が発生した時の施設

	No	Data
Registration	1	Project number
	2	Date of registration
	3	category
	4	ISEE project number
	5	Principal investigator
	6	Project title
	7	Responsible person
	8	Sample ID
Sample preparation	1	Project number
	9	User ID
	10	Category (unknown, std, bk, ref)
	11	Sample type
	12	Operator name
	13	Preparation method
	14	Date of chemical preparation
	15	Sample weight used for treat.
	16	Residual for future use
	17	Final sample weight after treat.
CO2 extraction	8	Sample ID
	18	Date of weighting
	19	Operator name
	20	Weight used
	21	Date of CO2 extraction
	22	Operator name
	23	Preparation system
	24	Total CO2 (pressure)
	25	CO2 for graphitization (pressure)
	26	Excess CO2 (pressure)
Graphitization	27	Graphite ID
	8	Sample ID
	28	Date of graphitization
	29	Operator name
	30	Preparation system & port
	31	Fe number
	32	Initial CO2 in reactor (pressure)
	33	Initial pressure after H2 addition
34	Pressure after reaction	
Press	27	Target number (=Graphite ID)
	35	Date of pressing
	37	Operator name
	38	Press machine
	39	Pressure
AMS measurement	40	storage box
	27	Target number
	41 ~ 81	from the bg file from AMS system

	No	Data
PI Informator	5a	Name
	5b	Affiliation
	5c	Address
	5d	Phone Number
	5e	e-mail

	No	Data
User ID	9a	collector
	9b	site
	9c	latitude
	9d	longitude
	9e	altitude
	9f	Depth
	9g	storage temperature
	9h	Estimated contamination
	9i	Sample treatment before apply

	No	Data
Fe number	31a	Fe number
	32b	Date of weight
	33c	Operator
	34d	Weight

図3 QC/QA システムの中核となるラボラトリー情報管理データベース（RCDB）に記録される項目。試料調整に関わる41項目（必要に、サブ・データベースをリンクして、より詳細な情報を蓄積することも可能）は共同利用ユーザが入力。AMS測定結果に関する40項目は、AMS結果の解析プログラムからの出力を用い入力する仕様となっている。

対応が可能となる。平成 28 年度下半期から、QA/QC システムの中核となるラボラトリー情報管理データベース (RCDB) の試験運用を開始し、現所では数百の試料調整作業の情報が蓄積されている。今後データを蓄積し、そのデータを利用して炭素 14 年代測定データの QC/QA に有益なアルゴリズムの開発や共同利用ユーザが容易に扱える情報検索・情報評価ソフトウェア開発を進め、平成 30 年度には ISEE- QC/QA システムの本格的な稼働を予定している。

## 謝辞

現在開発を行っている QA/QC システムの中核であるラボラトリー情報管理データベースは、韓国地質資源研究院 (KIGAM) の AMS 分析センターで運用されているものを参考にして設計した。KIGAM の AMS 分析センター長 Wang Hong 博士には、RCDB ム設計等についての多くの情報や示唆を頂いた。深く感謝いたします。

## 引用文献

- Hogg, A. G., Higham, T. Robertson, S., Beukens, R. Kankainen, T., McCormac, F. G. (1995) Radiocarbon age assessment of a new, near background IAEA  $^{14}\text{C}$  quality assurance material. *Radiocarbon*, **37(2)**, 797–805 (Note: refers to materials IAEA C9).
- Le Clercq, M., van der Plicht J., Gröning, M. & Mook, W. G. (1998) New  $^{14}\text{C}$  reference materials with activities of 15 and 50 pMC. *Radiocarbon*, **40(1)**, 295-297 (Note: refers to materials IAEA C7-8).
- Lull, V., Micó, R., Rihuete-Herrada, C., Risch, R. (2015) When  $^{14}\text{C}$  Dates Fall Beyond the Limits of Uncertainty: An Assessment of Anomalies in Western Mediterranean Bronze Age  $^{14}\text{C}$  Series. *Radiocarbon*, **57(5)**, 1029–1040 (DOI: 10.2458/azu\_rc.57.18180).
- Meadows, J., Hüls, M., Schneider R. (2015) Accuracy and Reproducibility of  $^{14}\text{C}$  Measurements at the Leibniz-Labor, Kiel: A First Response to Lull et al., “When  $^{14}\text{C}$  Dates Fall Beyond the Limits of Uncertainty: An Assessment of Anomalies in Western Mediterranean Bronze Age  $^{14}\text{C}$  Series” *Radiocarbon*, **57(5)**, 1041–1047 (DOI: 10.2458/azu\_rc.57.18569).
- Rozanski, K. (1991) Consultants' group meeting on  $^{14}\text{C}$  reference materials for radiocarbon laboratories, February 18-20, 1991, Vienna, Austria. Internal Report, IAEA, Vienna (Note: this report refers to materials IAEA C1-C6)
- Rozanski, K., Stichler W., Gonfiantini, R., Scott E. M., Beukens, R. P., Kromer, B., van der Plicht, J. (1992) The IAEA  $^{14}\text{C}$  Intercomparison exercise 1990. *Radiocarbon*, **34(3)**, 506–519 (Note: refers to materials IAEA C1-C6).
- Scott, E. M. (2003) The Third International Radiocarbon Intercomparison (TIRI) and The Fourth International Radiocarbon Intercomparison (FIRI). *Radiocarbon*, **45(2)**, 135–328.
- Scott, E.M., Cook, G.T., Naysmith, P., Bryant, C. and O'Donnell, D. (2007) A report on phase 1 of the 5th International Radiocarbon inter-comparison (VIRI). *Radiocarbon*, **49(2)**, 409–426.

## 日本語要旨

名古屋大学附置研究所宇宙地球環境研究所では、加速器質量分析装置及び試料調整のための実験室の相互利用と共同利用を推進している。本施設を利用する共同利用ユーザの便宜を図るため、炭素 14 年代測定データの品質管理・品質保証システムの導入について検討を行ってきた。本稿では、本施設で進めてきた品質管理・品質保証システムの概要について紹介する。