

名古屋大学タンデトロン AMS ^{14}C システムの現状と利用 (2015)
Status and Applications of a Tandetron AMS System at Nagoya University in 2015

中村俊夫^{1*}・南 雅代¹・小田寛貴¹・池田晃子¹・箱崎真隆^{1,2}・奈良郁子¹・吉田滂代¹・
太田友子¹・西田真砂美¹・池盛文数³・椋本ひかり³・藤沢純平⁴

Toshio Nakamura¹, Masayo Minami¹, Hiroataka Oda¹, Akiko Ikeda¹, Masataka Hakozaiki¹,
Fumiko Nara¹, Miyo Yoshida¹, Tomoko Ohta¹, Masami Nishida¹, Fumikazu Ikemori³, Hikari
Mukumoto³ and Jumpei Fujisawa⁴

¹名古屋大学宇宙地球環境研究所

²国立歴史民俗博物館

³名古屋大学大学院環境学研究科

⁴名古屋大学理学部

¹ Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University, Chikusa, Nagoya
464-8601, Japan

² National Museum of Japanese History, 117, Jyonai-Cho, Sakura 285-8502, Japan

³ Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-8602,
Japan

⁴ School of Science, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-8602, Japan

*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, 1156 in each year from 1999 to 2015, respectively, and total number of targets measured by the end of 2015 is 23,921. We briefly describe the maintenance processes and application results of the AMS system in 2015.

The Tandetron AMS system at Nagoya University worked rather well in 2015, with only minor failures, such as (1) X-Y direction movement trouble of target surface to change sputtering positions, (2) compressed-air-leakage problem of an air cylinder to exchange targets to be measured, (3) unexpected break down of high voltage of accelerator without any sparks, without any specific reasons, (4) ion source cleaning due to shortage of Cs in the container, (5) high temperature problem of the circulating water for cooling down the power supply system for two high-energy mass-analyzing magnets. The error no. (3) above became a serious problem at last in December, because we cannot reset a system diagnostic alarm concerning a high voltage spark at last. It was finally found out that the problem caused by a malfunction of the spark-detector circuit unit, mounted on the top of the accelerator tank.

In 2015, we also carried out many application programs of ^{14}C measurements. The reports are included in this Proceedings volume.

Keywords: accelerator mass spectrometry, radiocarbon, high voltage spark detector, magnet power supply, target positioning system

キーワード: 加速器質量分析、放射性炭素、高電圧スパーク検出器、マグネット電源、ターゲット位置設定システム

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)。

2015 年は、常連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。2015 年の測定ターゲット数は 1156 個と昨年に比べて 600 個程度少なかった。1999 年から 2015 年末までの総数は、23,921 個に及ぶ。

昨年 2015 年の 10 月 1 日から、名古屋大学年代測定総合研究センターは、旧太陽地球環境研究所、地球水循環研究センターと組織統合して宇宙地球環境研究所へ移行した。この宇宙地球環境研究所への移行に伴って、3 月末に完成予定の新棟が新築中である。現有のタンデトロン AMS システムを、新棟へ移設する計画が持ち上がり、紆余曲折の後、分析計はそのまま古川記念館に残されることとなった。この事件のため測定作業へ集中できなかったことも測定数が減った原因の一つであるが、今のところ、試料のターゲットで未測定なものはない。

2. 2015 年の一年間の運転状況の概要

1999 年の測定開始から 2015/12/31 までについて、各年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 には、2015 年の各月に行われた保守の状況と測定ターゲット数を示す。

2015 年に発生した主な故障としては、以下に挙げるような事項であった。

- (1) イオン源のターゲット表面スパッター位置の移動制御の故障による点検 (発生月: 1-2 月)
- (2) イオン源のターゲット交換システムのエアシリンダーの圧縮空気のリーク (4 月)
- (3) 加速器高電圧が原因不明のダウン (スパークなしにスパーク・エラーが表示される) (4, 7, 8, 10, 11, 12 月) が頻発し、12 月には、ついにスパーク・エラーのリセットが出来なくなった。
- (4) 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, Cs 充填 (6 月)
- (5) HE-Magnet 電源の冷却不良による停止 (8, 11 月)

以上のような出来事があったが、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。1999 年から 2015 年までに、年ごとに測定したターゲット数の累積数を図 1 に、利用を開始した 1999 年から 2015 年までの毎年に測定したターゲット数の変動を図 2 に示す。図 1 に示されるように、2006-2008 年頃に測定数の増加の停滞があるものの最近では順調に測定が進み、2015 年末には、総数 23,921 個となった。また、図 2 から判るように、2015 年の測定ターゲット総数は、近年では最も数が少なく、1156 個に止まった。

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 2015/12/31 まで)

項目 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 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
2015	1,156	101 ⁵⁾	23,921	2,468	247

- 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

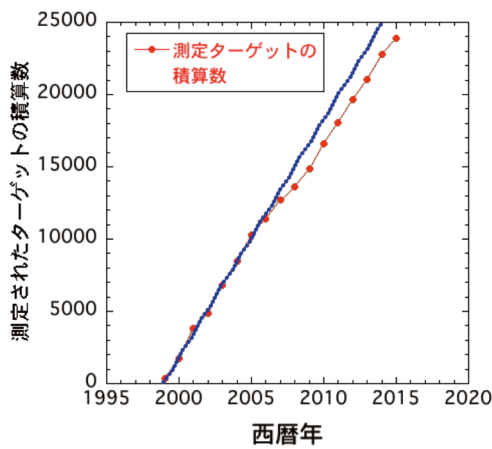


図1 1999年から2015年までのターゲット測定数の累積数の変動

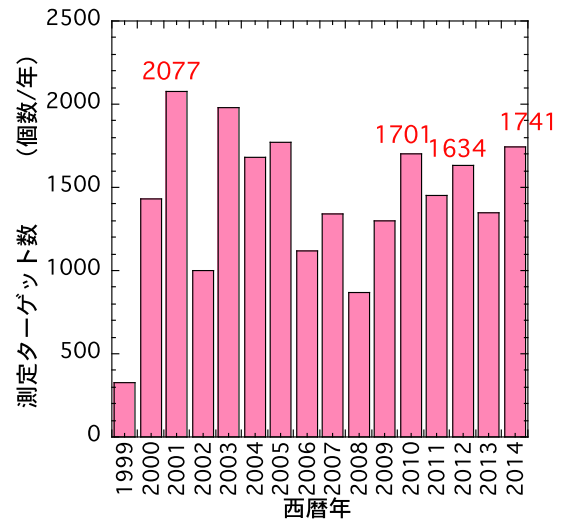


図2 1999年から2015年末までの年ごとのターゲット測定数

表2 2015年における月別のターゲット測定数と測定時間（2015/01/01～12/31まで）

月	測定番号 (NUTA2- 22672～)	測定数	batch数	発生した不具合、及びコメント
1	22819	147	13	1/26 target stage の X-Y 方向の移動制御不良。電気系モジュールを点検。
2	22873	54	9	2/3 再び, target stage の X-Y 方向の移動制御不良が出現。 2/19 パソコンとイオン源をつなぐ光ケーブルの不良と判明。光ケーブルを取り替えて正常に作動。
3	22998	125	12	3/11 検出器のイソブタンガスの交換, イオン源冷媒の充填。 3/24-25 イオン源のターボ分子ポンプの異常停止が頻発。 3/30 イオン源のターボ分子ポンプの取替
4	23101	103	15	4/11 エア・コンプレッサー出力不足, 圧縮空気圧が低下, コンプレッサーが頻繁に作動。イオン源のエアシリンダー(ターゲット交換プロセスで使用)の圧縮空気もれを確認。 4/13 イオン源(Source 846B, HVE)のターゲット交換ができなくなった。 4/18 エア・シリンダーの取替。 4/28 加速器高電圧の異常ダウンが多発。
5	23180	79	12	5/6 クライオポンプのヘリウムガスの追加充填。 5/15 ¹⁴ C 測定中に高電圧がダウン。 ¹⁴ C 測定が停止。 5/17 recombinator magnet 3 (3番目の電磁石)の磁力を独立に微調制御する magnet-3 fine control の unit box からの出力

				が無く、fine control ができない。 ¹⁴ C 測定は可能。
6	23803	79	10	6/09 イオン源の分解掃除、Cs 1g を充填。 6/19 システムの運転中に突然、エア・コンプレッサー（日立製：POD-0.75PGS6）が停止して、圧縮ガス不足。 6/22 圧縮空気配管新フレックスチューブが破断。圧縮空気もれてエア・コンプレッサーが間断無く作動。コンプレッサー（No. 3：PO-1.5CX5/6）に交換。
7	23338	79	9	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	23338	0	0	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 電源の冷却水パイプの洗浄作業を実施した。
9	23485	147	12	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	23639	154	19	10/27 2 年使ったイオン源用ダイヤフラムポンプ（MVP015）を予備品と交換した。
11	23667	28	5	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	23828	161	19	12/15 重イオン検出器のイソプタンガスの交換。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。 12/29 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。加速器 HV が突然ダウンが頻繁に発生した。
		合計 1156	合計 134	

3. HVEE タンデトロン加速器質量分析計の故障

2015 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。最も重大な故障は、加速器高電圧の原因不明のダウンであり、その原因を特定するのに、年末年始を費やした。高電圧のダウンのあと、高電圧コントローラーにスパークエラーの表示が出て、これをリセットすると、再度高電圧を付加することが出来ていた。しかし、12 月 29 日に、ついにスパークエラー表示のリセットが出来なくなった。そこで、スパークエラーの表示回路を検査し、加速器タンクの上部に設置してある“スパークディテクター”回路にたどり着いた。回路を取り外して、点検、洗浄を行ったが、作動不良のままであった。

最終的に、放射線医学研究所に設置してあるタンデトロン加速器の修理のための予備品として所持されていた“スパークディテクター”回路をお借りすることにした。取り替えると、正常に動作しており、やはり回路の不良であることが確認された。

4. グラファイトターゲット口径 1mm と 2mm の比較

グラファイトターゲットの口径を 2mm から 1mm にすると、同じ厚さのターゲットを作るのに要するグラファイトの量は、1/4 で済むことになる。炭素ビーム出力は、ターゲットの厚さに依存しており、薄いとすぐに出力が弱くなる。そこで、微量炭素試料でも、炭素イオンビーム出力が長持ちするように、直径を小さくした。当然、炭素イオンビーム出力は弱くなるが、時間的に長持ちするようになった。約 30 分の測定を 3~5 回繰り返して行っているが、図 3 に、加速器を通過した後の ¹²C³⁺ビーム強度を 1mm と 2mm ターゲットで比較して示す。約 30 分の測定を 3~5 回繰り返して行っているが、1mm ターゲットでは出力は減少しない。むしろ 2mm ターゲットの方が早く減衰が見られる。もちろん、ビーム出力は、1mm ターゲットの方が弱い。δ¹³C 値（図 4）、¹⁴C/¹²C 比（図 5）は、今回の測定ではばらつきが大きい。1mm ターゲットが特に悪いわけではない。測定誤差がやや大きくなることを考慮してお

けば、充分に使用できる。結果は、測定したときの AMS システムの状況にも依存するため、今後、この比較を継続する必要があるだろう。

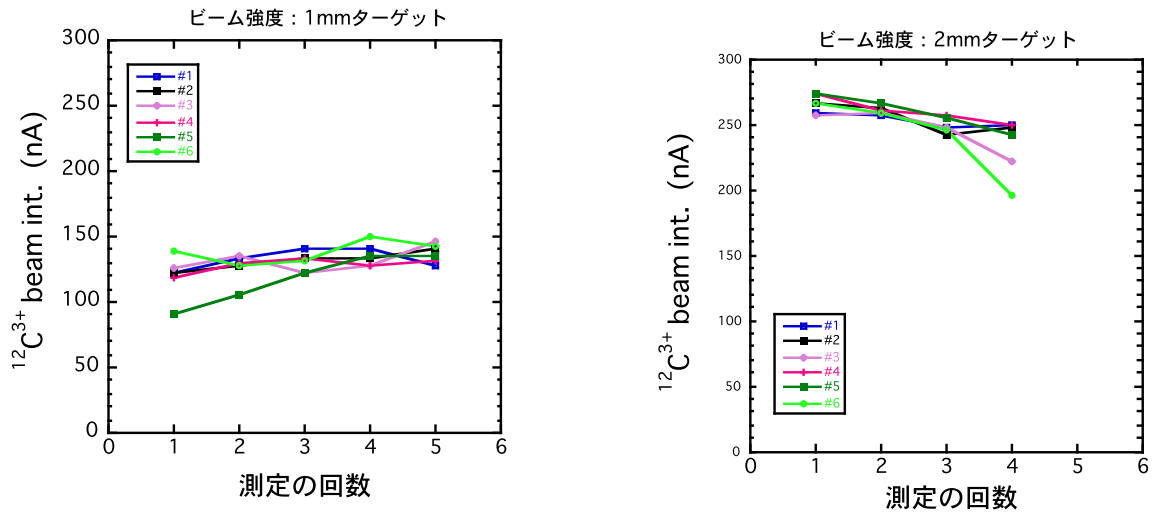


図3 1mm と 2mm ターゲットについての $^{12}\text{C}^{3+}$ ビーム出力の強度の比較

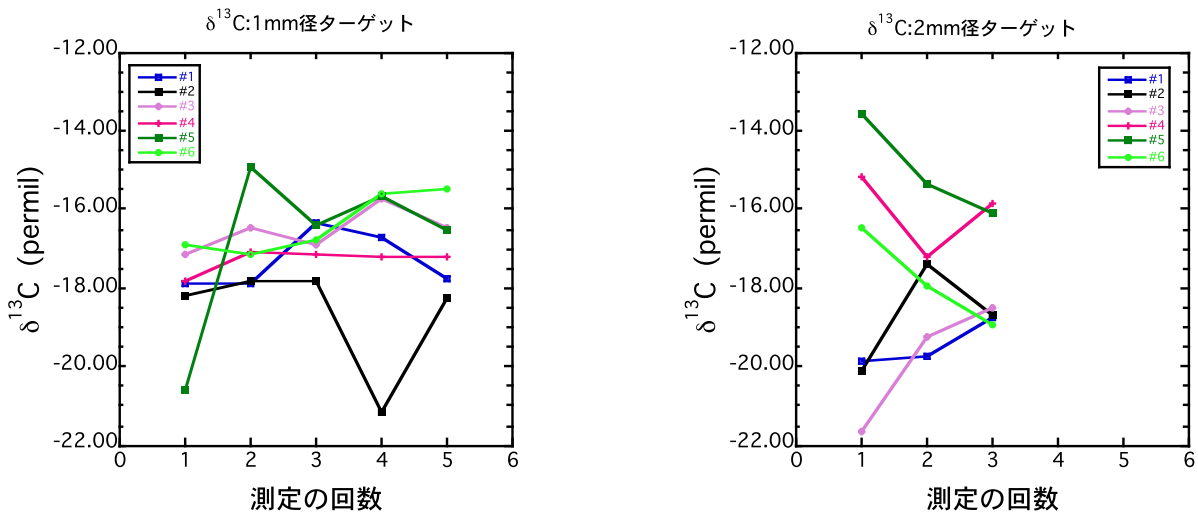


図4 1mm と 2mm ターゲットについての $\delta^{13}\text{C}$ 値の比較

5. おわりに

名古屋大学タンデ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 ^{14}C 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 1988-2015)。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。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。

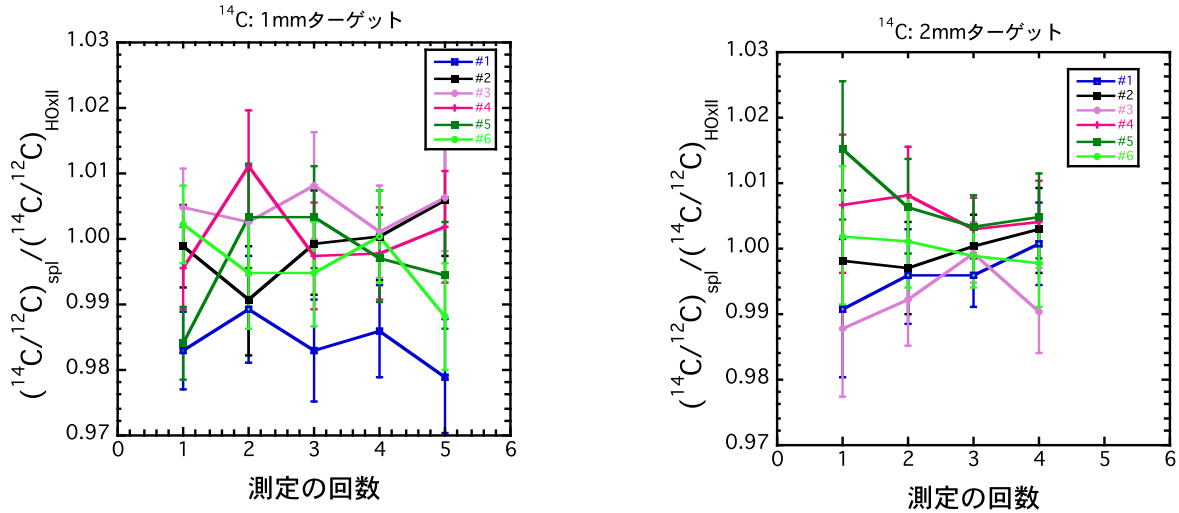


図5 1mm と 2mm ターゲットについての $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比の比較

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・木下尚喜・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、2015 年末に発生した高電圧制御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、菊池幸彦の諸氏に、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(1988～2015)名古屋大学年代測定総合センター. (I～XXVI).
 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, Hiroataka 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.