

加速器質量分析による 放射性炭素年代測定と向き合った 35年間

中村 俊夫

名古屋大学 宇宙地球環境研究所
年代測定研究部

講演内容

1. 中村俊夫の略歴
2. 名古屋大学タンデトロン1, 2号機の導入
3. 加速器質量分析計の概要
4. 放射性炭素(^{14}C)年代測定
5. 名古屋大学タンデトロン1, 2号機の利用
6. 今後の検討課題 ----- 1, 2, 3, 4
7. その他

名古屋大学 年代測定総合 研究センター

に設置の

年代測定装置

[www.nendai.nagoya-u.ac.jp/japanese/
documents/index.html](http://www.nendai.nagoya-u.ac.jp/japanese/documents/index.html)

名古屋大学
年代測定総合研究センター
Nagoya University Center for Chronological Research



TANDETRON 1
(35年前に導入)



TANDETRON 2
(20年前に導入)



CHIME
(1994年
寄付受入)

中村俊夫の略歴

- 1950/12/15 誕生, Libbyが放射性炭素法を確立したころ.
 ^{14}C 年代を数える起点の年
- 1962/10 小学6年生, 朝礼で校長先生がキューバ危機,
世界の破滅の可能性の話をした.
- 1966/4 広島私立修道高校入学
- 1969/4 広島大学理学部入学(大学紛争のただ中)
- 1973/4 広島大学理学研究科修士課程進学
- 1975/4 広島大学理学研究科**物理学専攻**博士課程進学
- 1980/9 名古屋大学アイソトープ総合センター技官,
教務職員で赴任
- 1981/3, 1982/3 タンデトロン加速器質量分析計**1号機**の
導入
- 2016/3 名古屋大学を定年退職

名古屋大学タンデトロン加速器質量分析計のこれまでの経過

- 1978年4月 名古屋大学アイソトープ総合センターよりタンデトロン加速器質量分析計を概算要求
- 1978年9月 GICのDr. K. H.PurserのAMSに関する名古屋大学講演会
- 1978年12月 大蔵省段階で不可
- 1979年4月 タンデトロン加速器質量分析計を概算要求し、1980-1981年度の2カ年計画で
アイソトープ総合センターに設置されることが決定
- 1980年9月 中村、**タンデトロン加速器質量分析計担当として名古屋大学アイソトープ総合センターに着任(文部技官・教務職員)**
- 1981年2月 加速器実験室(第一実験室:127 m²)完成
3月 タンデトロン加速器質量分析計初年度分の搬入
- 1982年2月 タンデトロン加速器質量分析計二年度分の搬入**
10月 1.6 MVで炭素ビームを加速
- 1983年2月 ¹⁴C³⁺を始めて検出
9月 ¹⁴C年代測定を開始
- 1985年3月 試料調製室・測定準備室(101.45 m²)を完成
- 1987年1月 学内の共同利用を開始
- 1990年6月 年代測定資料研究センター発足(学内共同利用研究センター), 中井信之初代センター長**
- 1991年3月 マルチカソード(28個, 18個)イオン源に改良

-
- 1994年4月 年代測定資料研究センターより加速器年代測定システム(タンデトロン加速器質量分析計2号機)を概算要求し、1995年度に設置されることが決定
- 1996年2月 年代測定資料研究センター古川総合研究資料館の1階地球科学資料保管室が
全面的に改装され、年代測定実験室(第二実験室:165m²), 試料調製室1(44m²),
試料調製室2(35m²)が完成
- 1996年3月 加速器年代測定システム(タンデトロン2号機)の一部が設置される
- 1997年3月 加速器年代測定システム(タンデトロン2号機)の完納**
- 1999年1月 性能検収の完了

中井教授：名古屋大学年代測定 資料研究センターの創始者

中井信之 理学部教授

*1928年6月29日大阪生まれ
1999年8月逝去

*GIC社製 Tandetron AMSシ
ステムの導入（1981/82）

*年代測定資料研究センター
の設置（早川学長、諏訪理
学部長と共に活動）

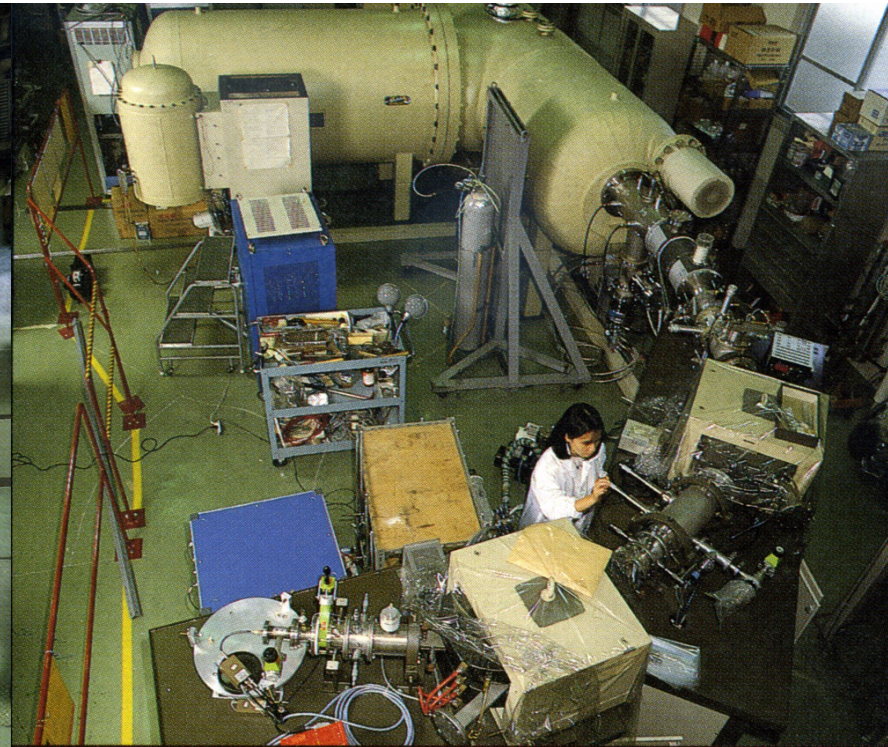
（1990年6月8日）

*年代測定資料研究センター
初代センター長

（1990-1991）



タンデトロン加速器質量分析計1号機 (1981-1982名古屋大学に導入)



制御パソコン:なし
配置人員:技術職員1名

www.nendai.nagoya-u.ac.jp/ja/tandetron/project.html

GIC Tandetron 1号機の構成

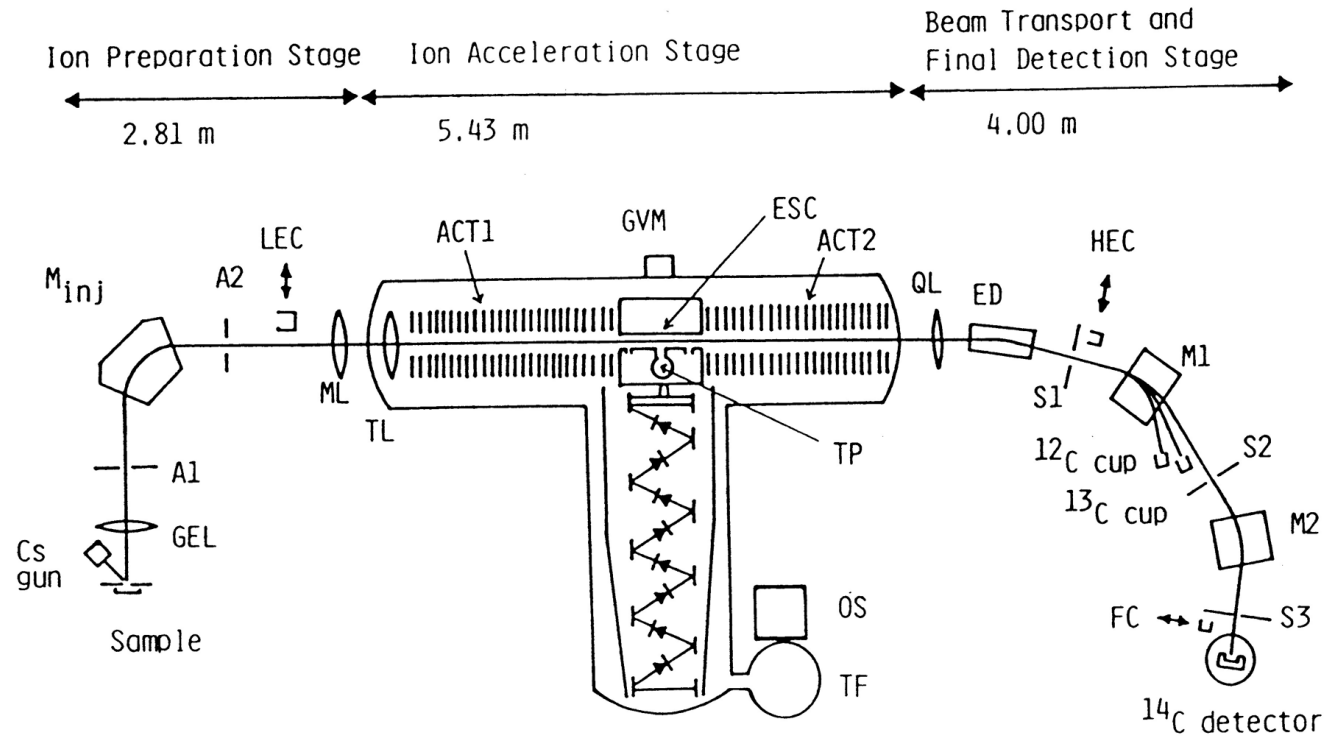


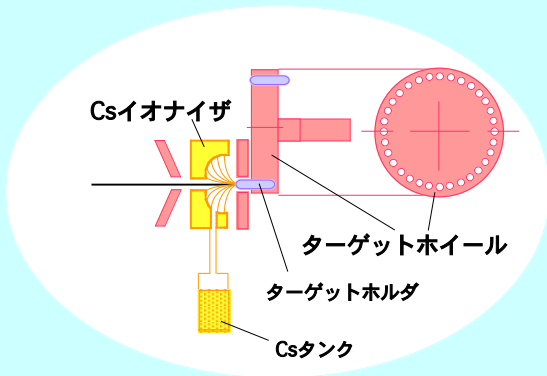
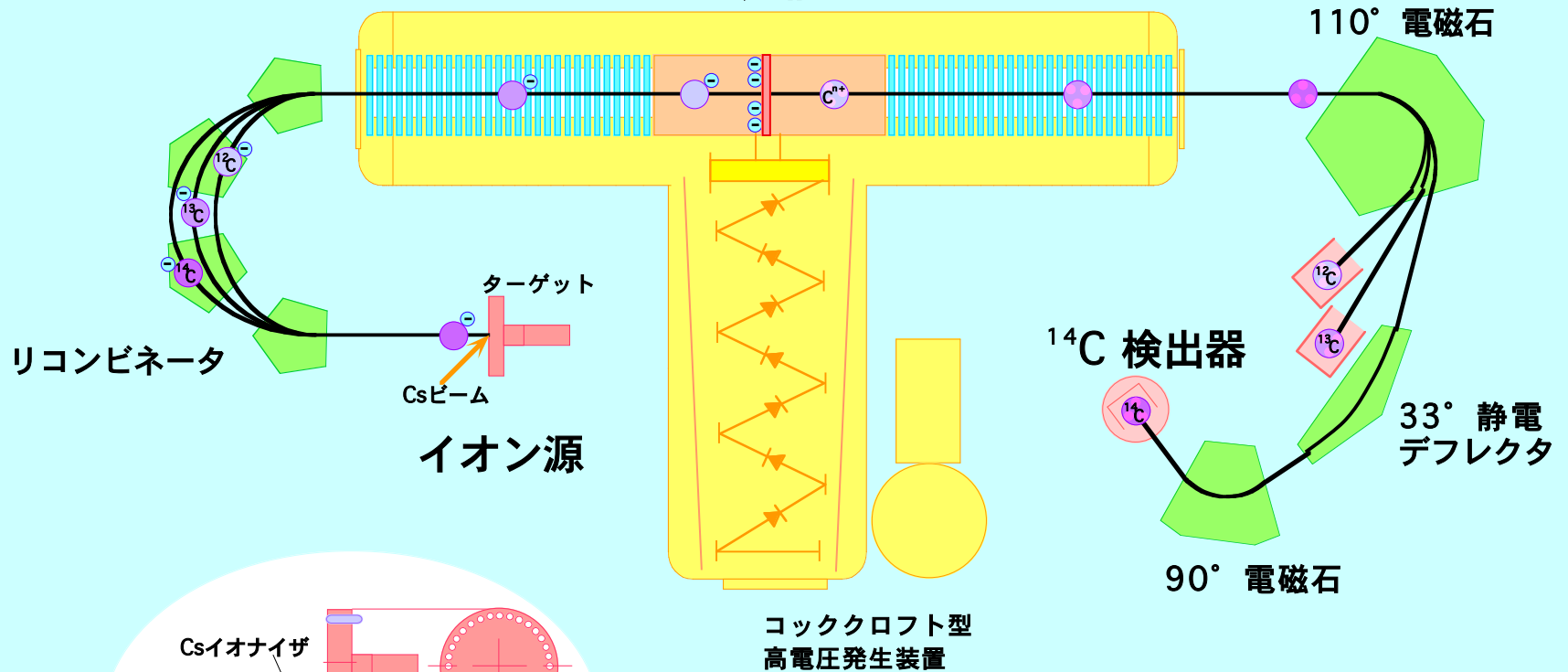
図2 ^{14}C 測定用タンデトロン加速器質量分析計の全体図

A1, A2, S1, S2, S3: ビームスリット, GEL, ML, TL, QL: 静電レンズ系, LEC, HEC, ^{12}C cup, ^{13}C cup, FC: イオン電流計測用ファラディカップ, Cs gun: セシウムスパッタ負イオン源, Minj, M1, M2: 質量分析用電磁石, ACT1, ACT2: 加速管, GVM: 発電型高電圧計, ESC: 荷電変換チャンネル, TP: 荷電変換ガス (アルゴン) トラップ用ターボ分子ポンプ, OS: 高電圧発生用の高周波交流電源の発振器。TF: 高周波交流電源のステップアップトランス, ED: 静電型15度デフレクター, ^{14}C detector: ^{14}C 検出用重イオン検出器

名古屋大学タンデロン加速器質量分析計の構成

(炭素試料の ^{14}C , ^{13}C , ^{12}C の組成を高精度に測定)

加速器

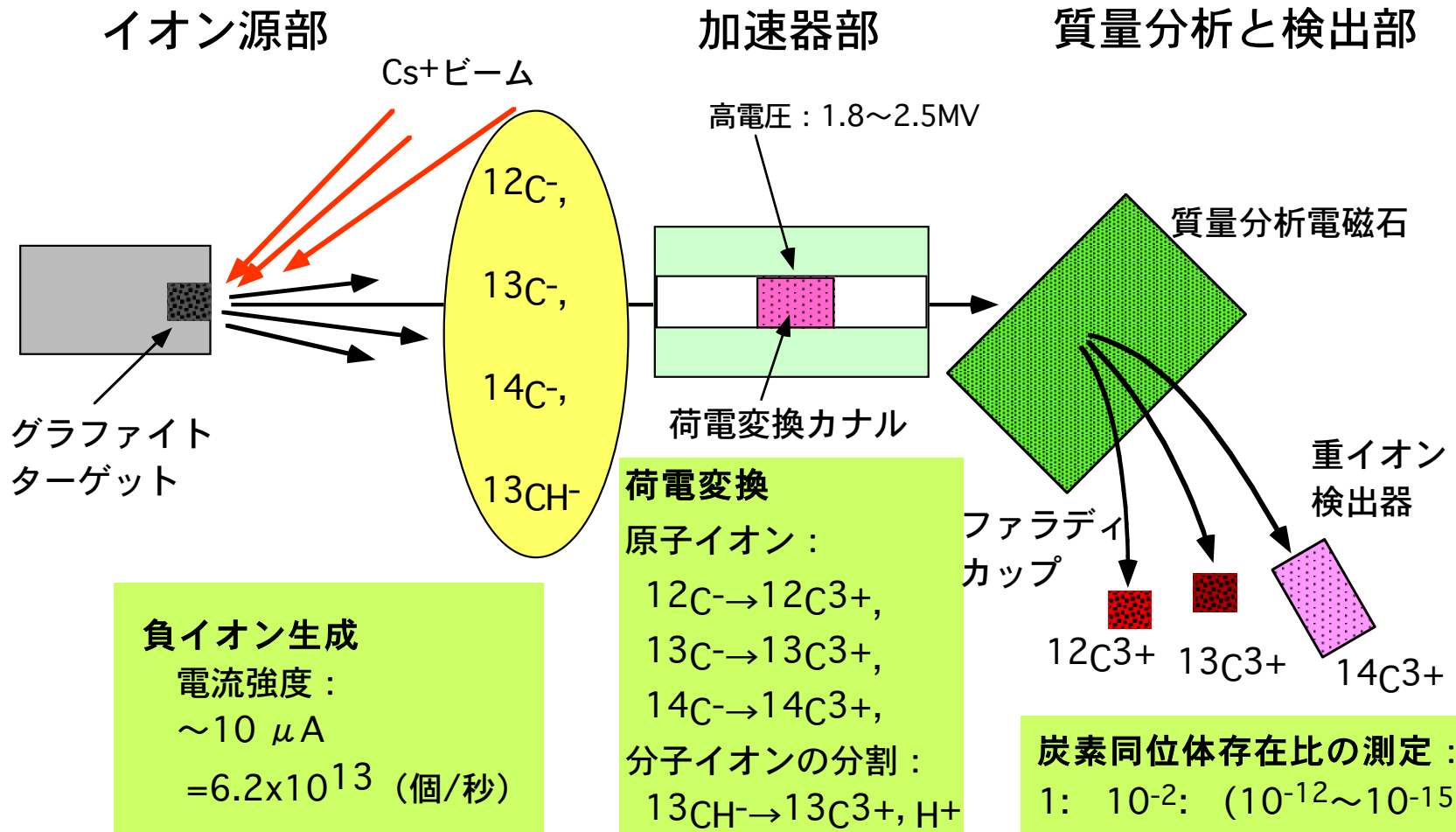


名古屋大学タンデロン加速器質量分析計 2号機

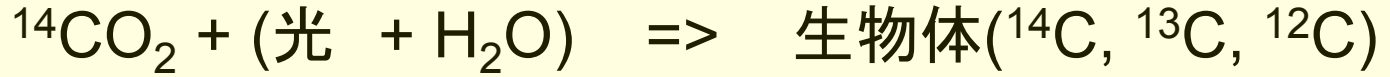
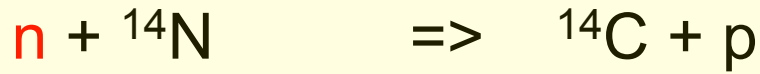
AMS ^{14}C 年代測定 の原理

(試料グラファイト中の ^{12}C : ^{13}C : ^{14}C 比の測定)

加速器質量分析の原理

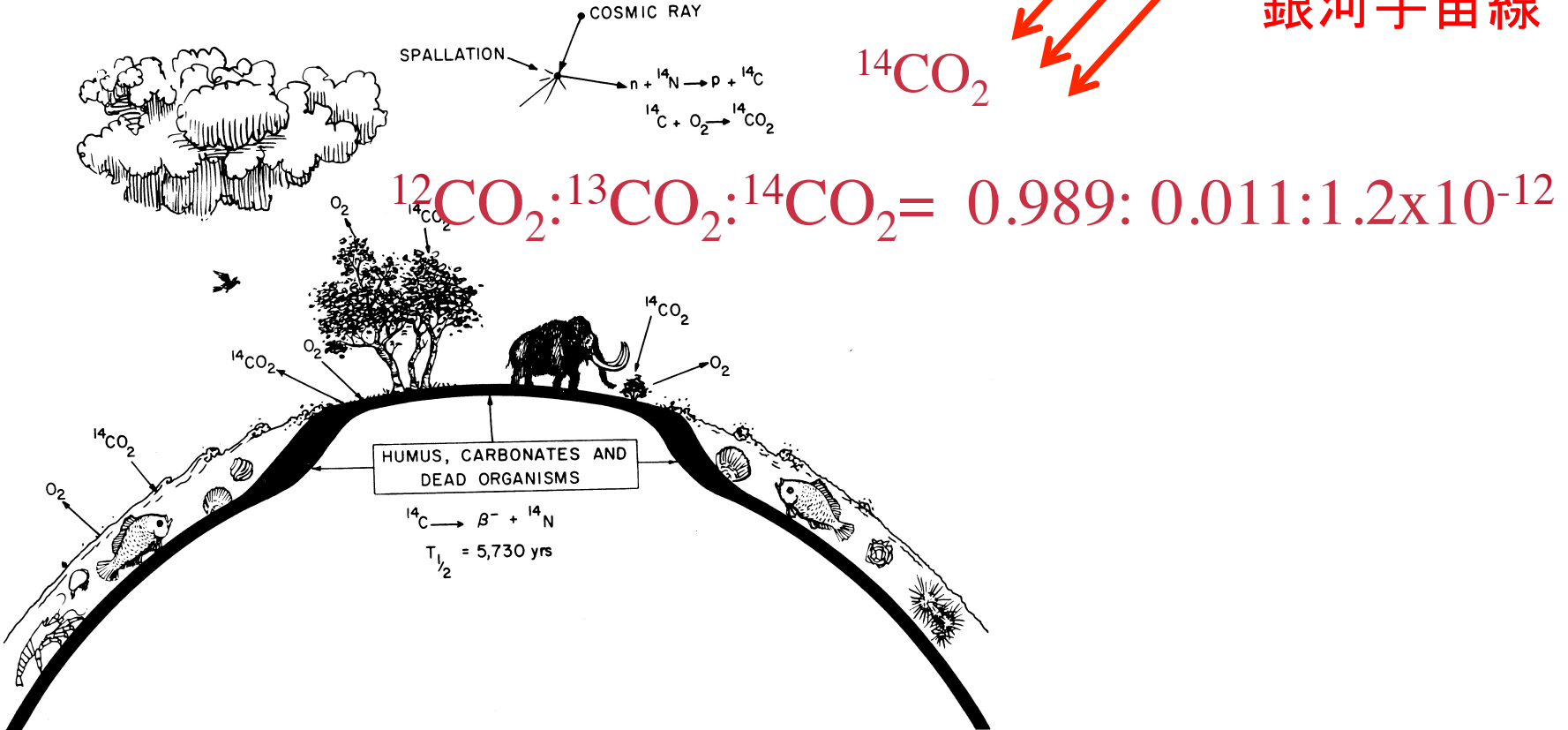


宇宙線 (p^{1+} , He^{2+} , ...) + 地球大気 (N , O) \Rightarrow X + n(中性子)



大気中における ${}^{14}C$ の生成と生物体内への蓄積

高エネルギー
銀河宇宙線

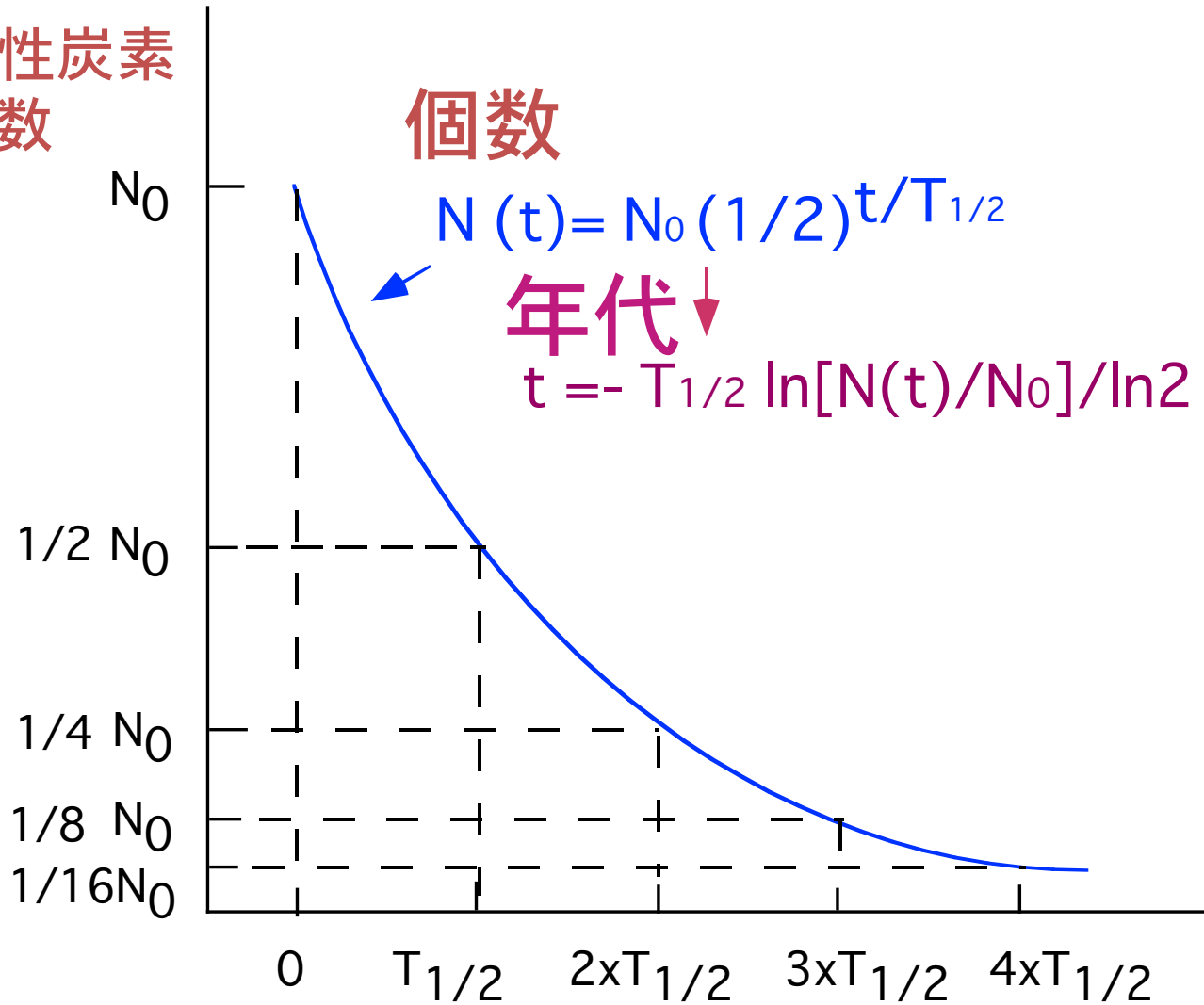


放射性炭素 (${}^{14}C$): 宇宙線生成放射性核種



放射性炭素
の個数

No. of Radionuclide (N)

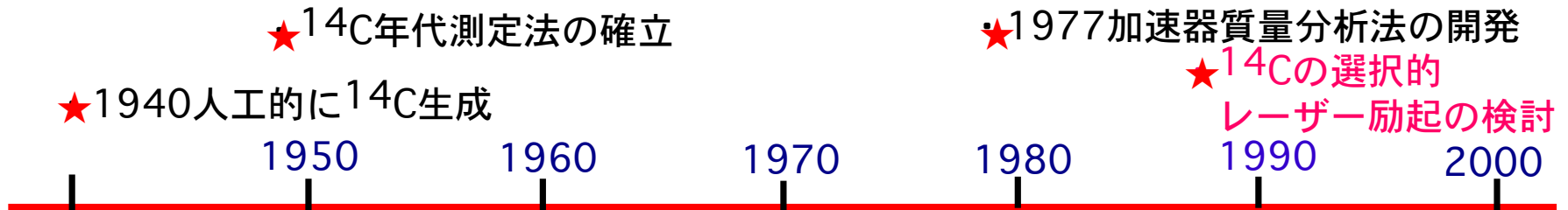


Time passed (t)

固定されて(閉鎖系)からの経過年代

加速器質量分析(AMS)法の開発

14C測定法の発達



Screen-wall 型GM計数管

ガス比例計数管

液体シンチレーション計数装置

加速器質量分析法 (AMS)

14C の測定方法

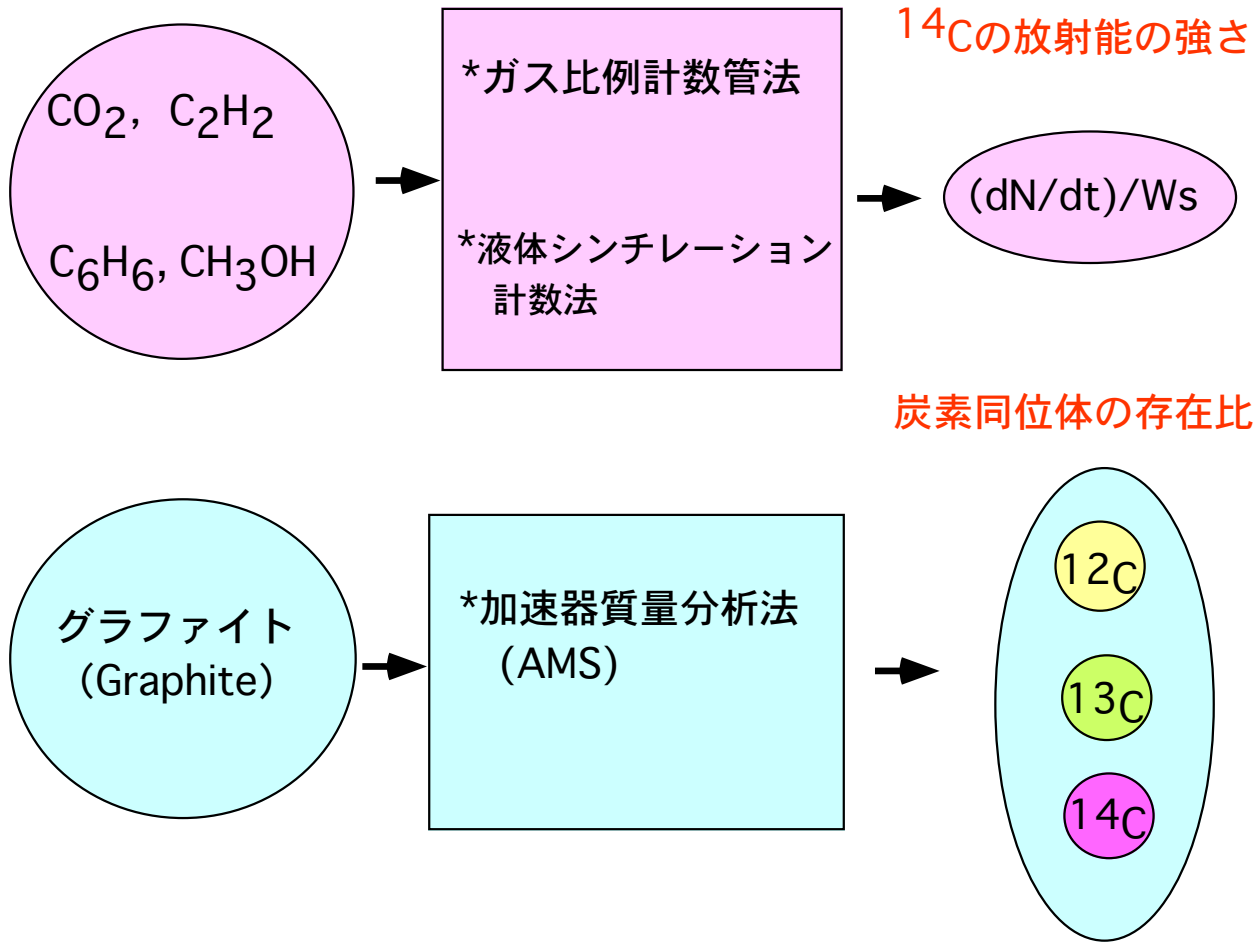
* 放射能測定法

* 加速器質量分析法(AMS)

測定のために
合成する物質

測定方法

測定される物理量



宇宙線

ガス比例計数管による ^{14}C 計数

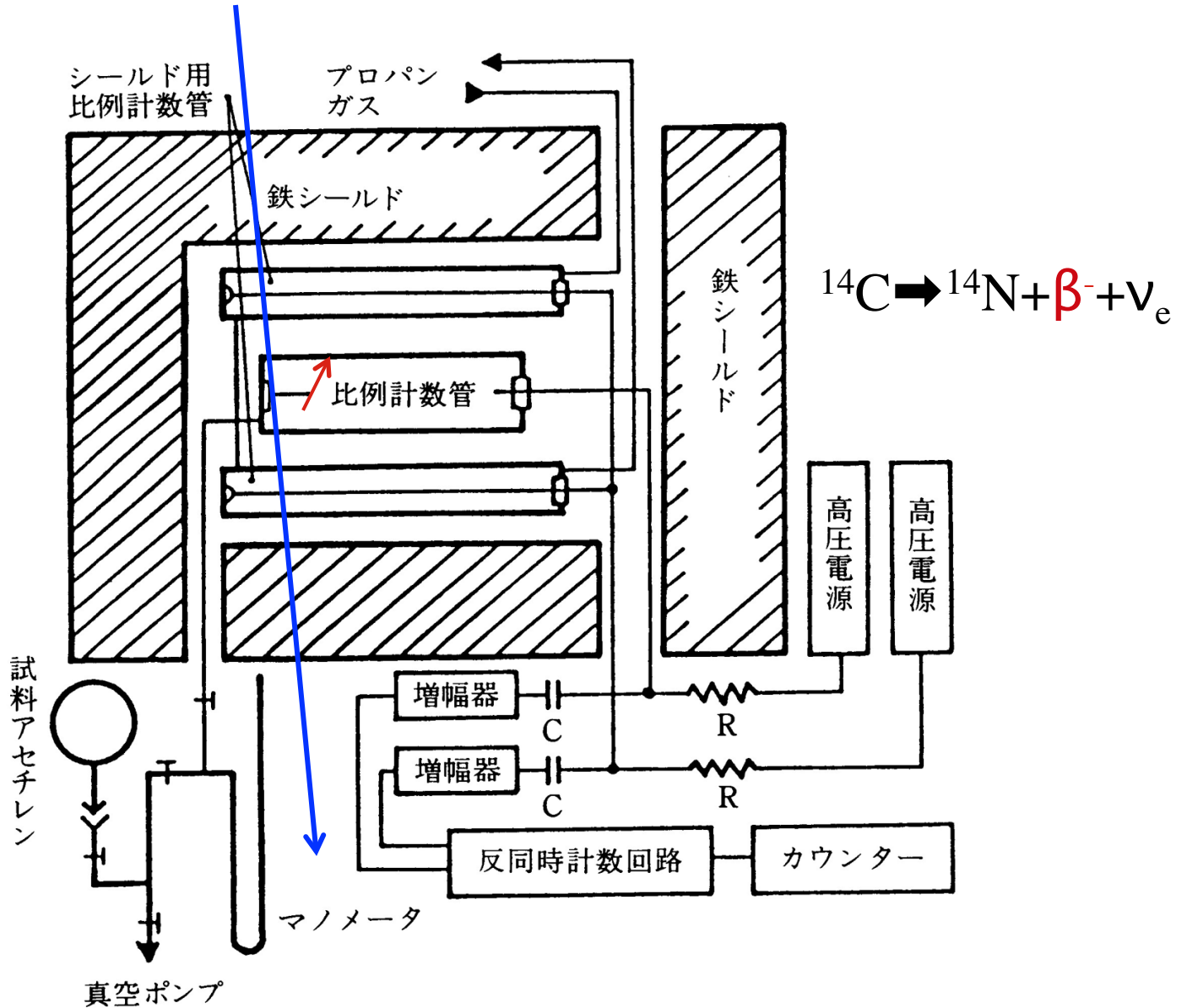
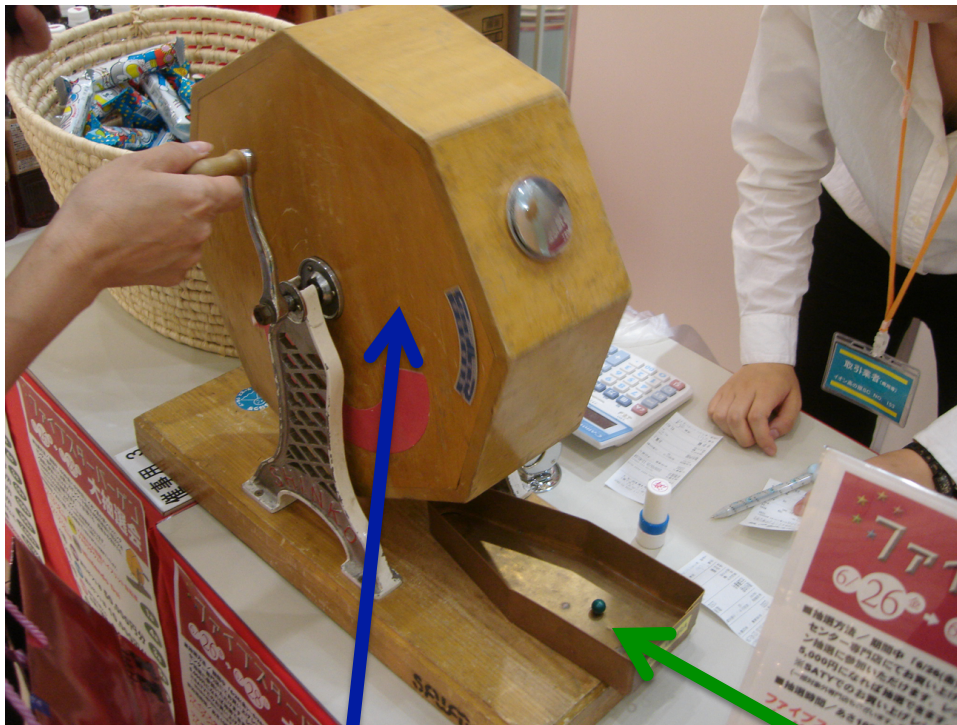


図 B.3 ^{14}C 測定用ガス比例計数管の配置図 (中村・中井, 1988)

(^{12}C : ^{13}C : ^{14}C) \Rightarrow ^{14}C 年代

(赤玉: 白玉: 緑玉) \Rightarrow



現代のもの:
赤玉: 1兆
白玉: 100億
緑玉: 1

イオン源 (玉出し)

検出系 (玉の色の識別)

現代炭素に含まれる C-14 の個数およびその壊変数

現代炭素量
(mg)

C-14 の個数①

壊変数②

(個/時間)

1	6×10^7	0.8
10	6×10^8	8
100	6×10^9	80
1000	6×10^{10}	800
1,0000	6×10^{11}	8,000

$$\textcircled{1} \text{}^{12}\text{C} : \text{}^{13}\text{C} : \text{}^{14}\text{C} = 0.989 : 0.011 : 1.2 \times 10^{-12}$$

$$[\text{}^{14}\text{C} \text{壊変数}] = [\text{定数}] \times [\text{}^{14}\text{C} \text{の個数}]$$

$$\textcircled{2} \Delta N (\text{}^{14}\text{C}) = 1.4 \times 10^{-8} \times N (\text{}^{14}\text{C}) \quad (\text{個/時間})$$

$$\lceil \Delta N / \Delta T = 0.693 / T_{1/2} \times N, \rceil$$

$$T_{1/2} (\text{}^{14}\text{C}) = 5730 \text{年}$$

AMSによる¹⁴C原子の直接計数と放射能測定との計数効率の比較

(1) ¹⁴C年代の誤差(ΔT)は主として¹⁴C計数の統計誤差

($N_{\text{total}} \pm \sqrt{N_{\text{total}}}$)による

$$\Delta T \propto \sqrt{N_{\text{total}}} / N_{\text{total}} = \sqrt{1 / N_{\text{total}}}$$

(2) 放射能測定による計数

$$\text{計数率: } n_c = \varepsilon_c \cdot Nr / \tau$$

ε_c = 係数効率

Nr = ¹⁴C原子数

τ = ¹⁴Cの平均寿命(8267 years) = $T_{1/2} / \ln(2)$

(3) AMSによる¹⁴C原子の直接計数

$$\text{計数率: } n_{\text{AMS}} = \varepsilon_{\text{AMS}} \cdot I \cdot Nr / N_s$$

ε_{AMS} = イオン輸送効率

I = イオン源における負イオン電流

Nr = 負イオン電流中の¹⁴Cの個数

N_s = 負イオン電流中の¹²Cの個数

(4) 計数率の比較

計数率の比較

計数時間	試料量	$n_c(^{14}\text{C})$	$n_{\text{AMS}}(^{14}\text{C})$
1 hour	1 mg	0.83	26,600
1 hour	1000 mg	830	26,600
10 hours	1000 mg	8300	266,000
		$\epsilon_c = 1.0$ $\tau = 8267 \text{ yr}$	$\epsilon_{\text{AMS}} = 0.1$ $I = 10 \mu\text{A}$ $= 6.2 \times 10^{13} \text{ ions/s}$ $N_r/N_s = ^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ $= 1.2 \times 10^{-12}$

旧型および最新型タンデトロンAMSと放射能計測における

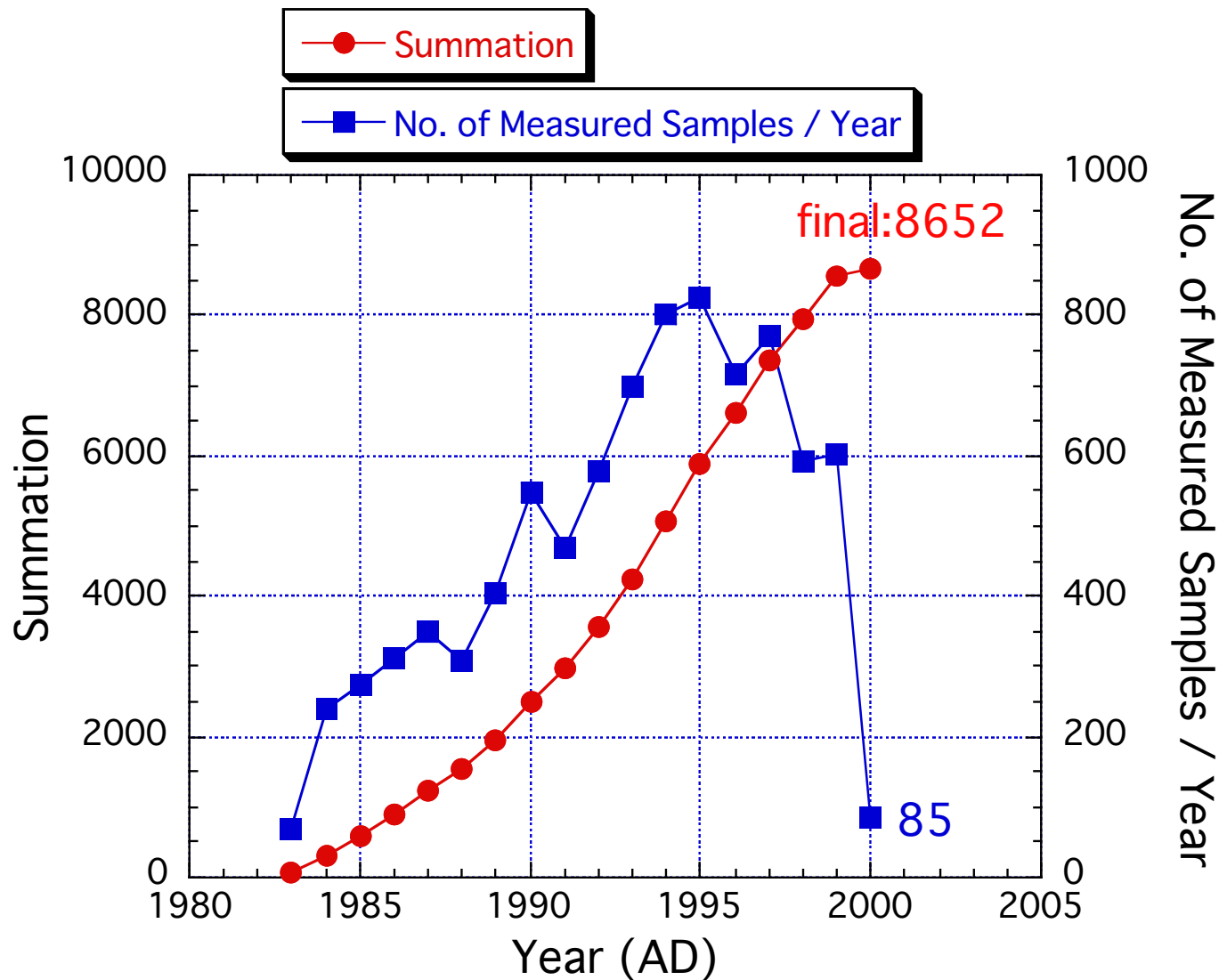
^{14}C 年代測定のパフォーマンス比較

項目	最新型タンデトロンAMS 名古屋大学	旧型タンデトロンAMS 名古屋大学	CO ₂ ガス比例計数装置 日本アイソトープ協会
測定に必要な炭素量	0.2~1 mg	0.2~1 mg	2.2 g
測定可能な古い年代	約 55,000 yr BP	約 55,000 yr BP	35,000~40,000 yr BP
年代測定誤差	±20~±30 yr	±60~±80 yr	±80 yr
計数時間	20~40 min. (試料のみ)	2~3 hr (試料と標準体の両者)	16~20 hr (試料のみ)

1号機： ^{14}C の検出まで

- 1981年2月 実験室完成
- 1981年3月20日 初年度分搬入
- 1982年2月17日 次年度分搬入
- 1982年3月25日 お披露目式典
加速管2度目の破損
- 1982年10月1日 加速管組込完了
- 1982年10月14日 高電圧2MV達成
- 1982年10月19日 $^{12}\text{C}^{3+}$ の加速を確認
- solid Gr => $^{12}\text{C}-(1.5\mu\text{A})$ => 1.52MV => $^{12}\text{C}^{3+}(0.6\mu\text{A})$
- 1983年2月17日 $^{14}\text{C}^{3+}$ の検出

名大1号機で ^{14}C 年代測定された試料数



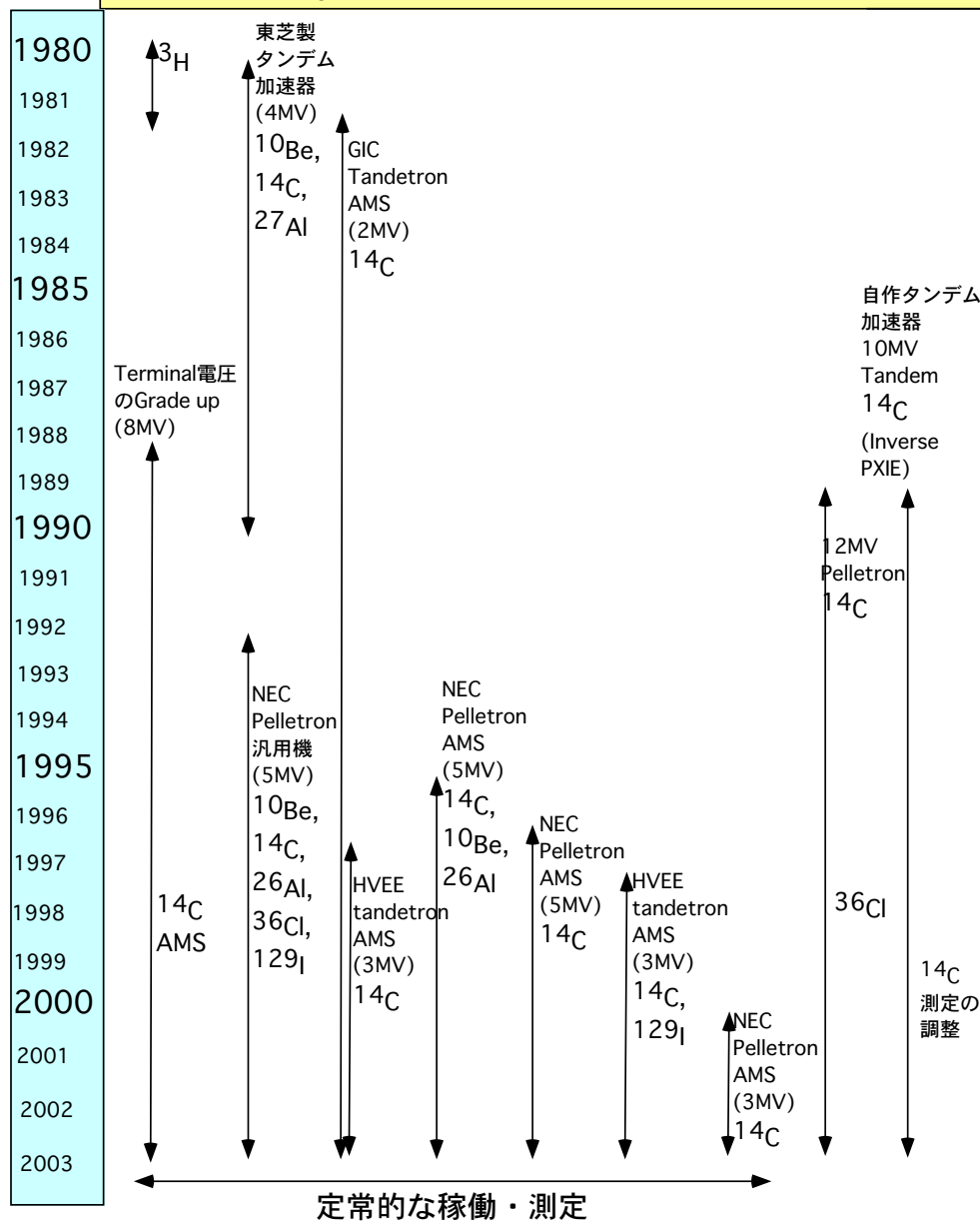
日本のAMS 研究施設:

1. AMSの発明(1977年), 米 & カナダ

2. AMS専用機の開発(1977年) by GIC

3. 専用1号機: 米, アリゾナ大学(1980年)

4. 名古屋大学(1981/82)



- 1978
 - Macmaster(Canada)
 - Rochester(UAS)
- 1981
 - GIC Tandetron (U. ARIZONA)
- 1995
 - NEC Pelletron AMS machine
 - gas source (CO₂)
- 1996
 - 小型AMS machine
- 2000
 - 小型AMS machine によるheavy element の測定
- 2002 Sep. AMS9 (Nagoya, Japan)

日本のAMS施設の発展の歴史

名古屋大学タンデトロンAMSによる¹⁴C測定 of 学際利用

¹⁴C年代測定

地球科学：

堆積物の年代→堆積速度
動物化石の年→生物の進化
海底林の年代→海水準変動
火山灰の年代→火山灰編年
→噴火予知
活断層の年代→地震予知

海洋科学：

海水の年代→海水の大循環
有孔虫の年代→堆積速度
サンゴ礁の年代→海水準変動

氷河学・雪氷学：

氷の年代→氷の形成速度
永久凍土の年代→古気候変動

水理学：

地下水の年代→起源・移動速度

考古学・人類学：

人骨の年代→人類の進化
遺跡の年代→遺跡の詳しい編年
食物の年代→食文化史

文化財科学：

鉄器の年代→日本への導入歴
→日本での生産歴
古文書の年代→歴史資料の検定
→真贋判定

タンデトロン加速器質量分析計による¹⁴C測定

核実験起源¹⁴Cトレーサ

地球科学・環境科学：

堆積物の¹⁴C濃度→堆積速度
(1964年以降)
対流圏・成層圏大気CO₂
→大気の混合と大循環
樹木年輪→生物圏の炭素循環
→核実験起源¹⁴Cの蓄積
海洋水炭酸→大気・海洋の炭素交換
大気中メタン→メタンの起源
エアロゾル→起源・環境拡散

海洋科学：

溶存炭酸の¹⁴C濃度→深層水の大循環
浮遊粒子→海洋生物生産・循環

木材科学：

樹幹の¹⁴C濃度→樹木の成長速度

保健物理学・環境生物学：

歯の¹⁴C濃度→核実験起源¹⁴Cの蓄積
→食物代謝
R1施設周辺の濃度→¹⁴Cの環境拡散

宇宙化学・宇宙物理：

樹木年輪の¹⁴C濃度→地磁気強度変動
→宇宙線強度変動
¹⁴Cのin-situ生成→宇宙線強度変動
→核反応断面積

材料科学：

コンクリートの劣化→¹⁴Cの取り込み

タンデム AMS システム (1996/97年導入)

試料炭素の ^{12}C , ^{13}C , ^{14}C の割合を 高精度・高正確度に測定

AMSの利点:

(1) 微量炭素試料:

炭素: 0.5 - 1.5 mg

(2) 高精度:

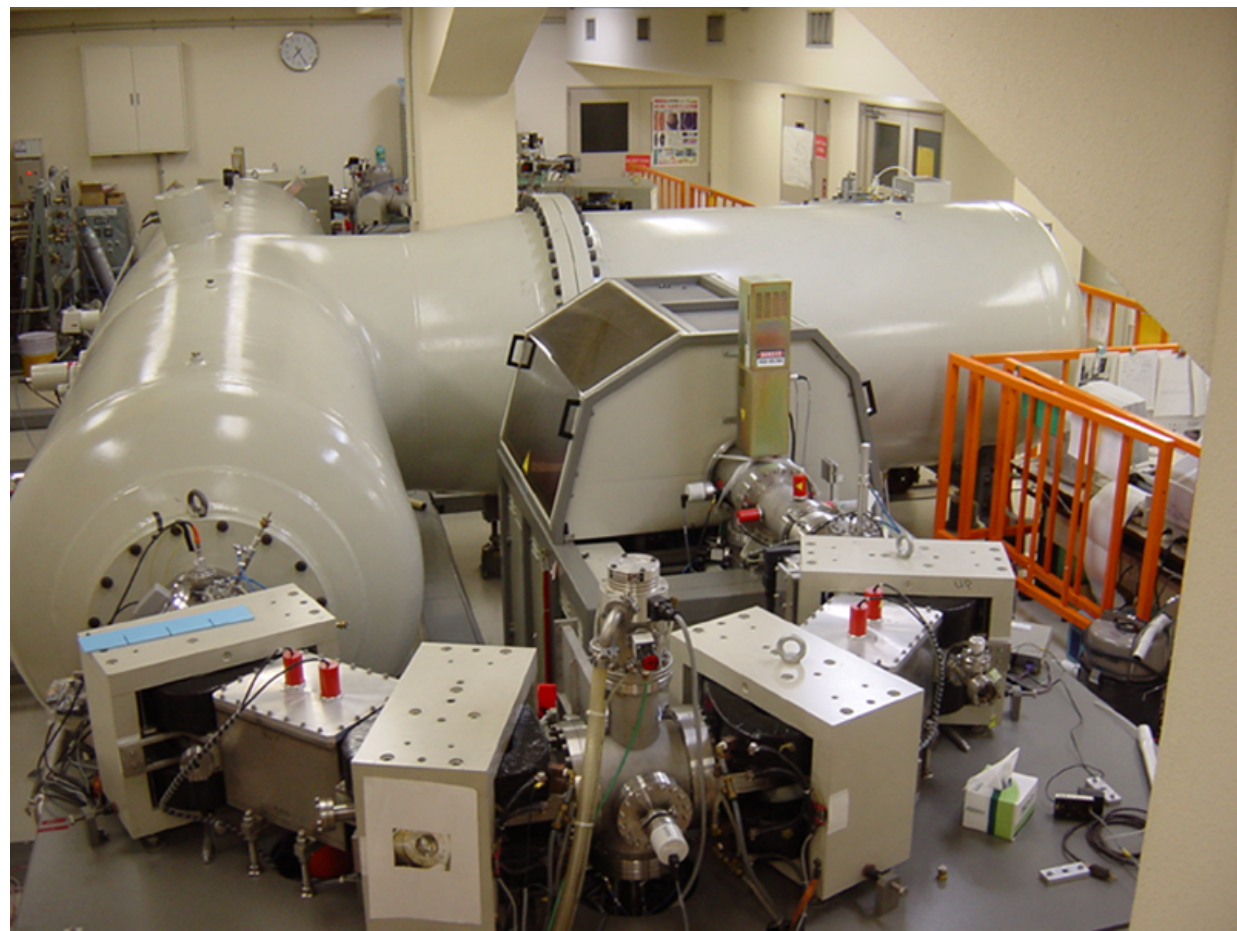
$\pm 20 \sim \pm 30$ years
($\pm 0.2 \sim \pm 0.4\%$)

(3) 低 ^{14}C バックグラウンド:

^{14}C age < 50 ka BP

(4) 高い測定効率:

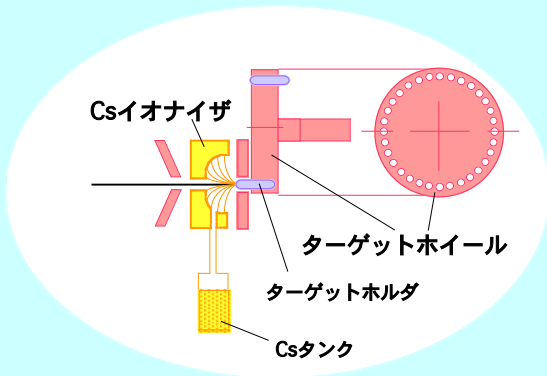
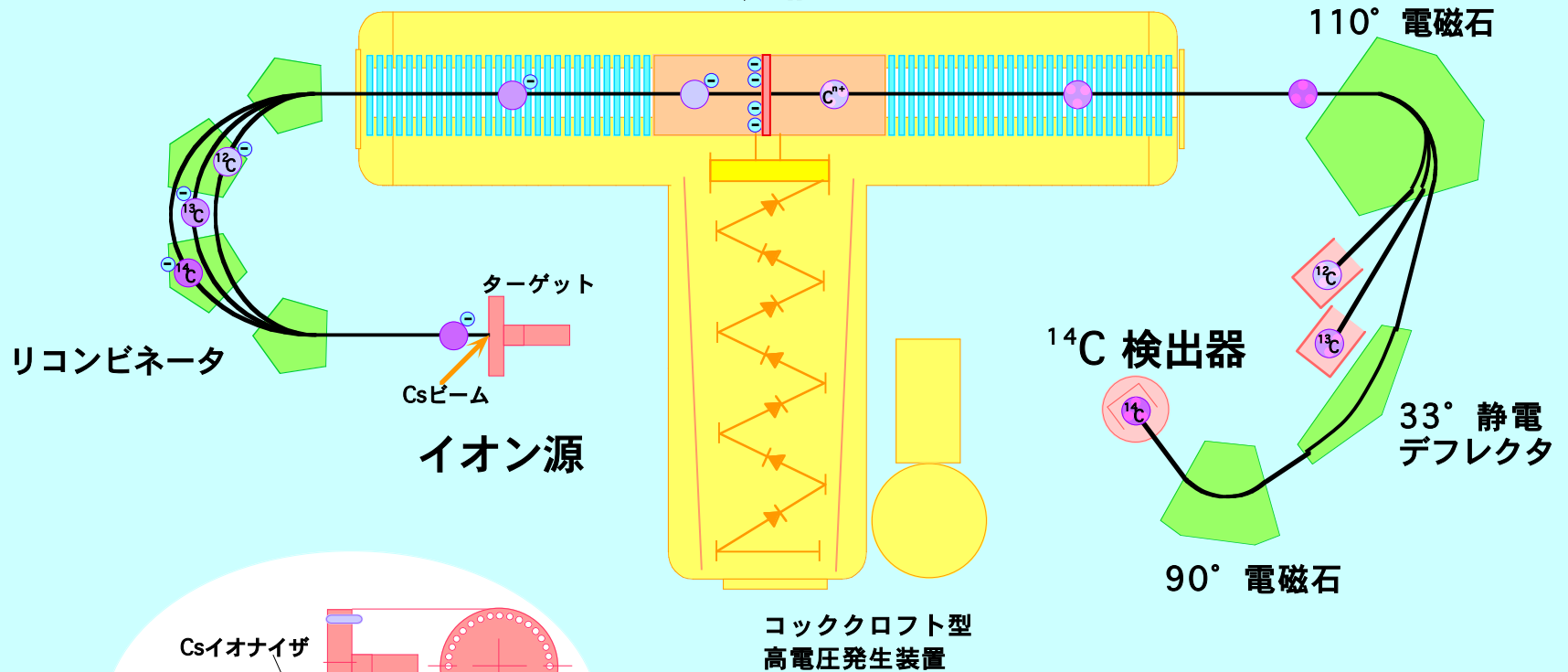
1.5 時間測定 / 試料



名古屋大学タンデロン加速器質量分析計の構成

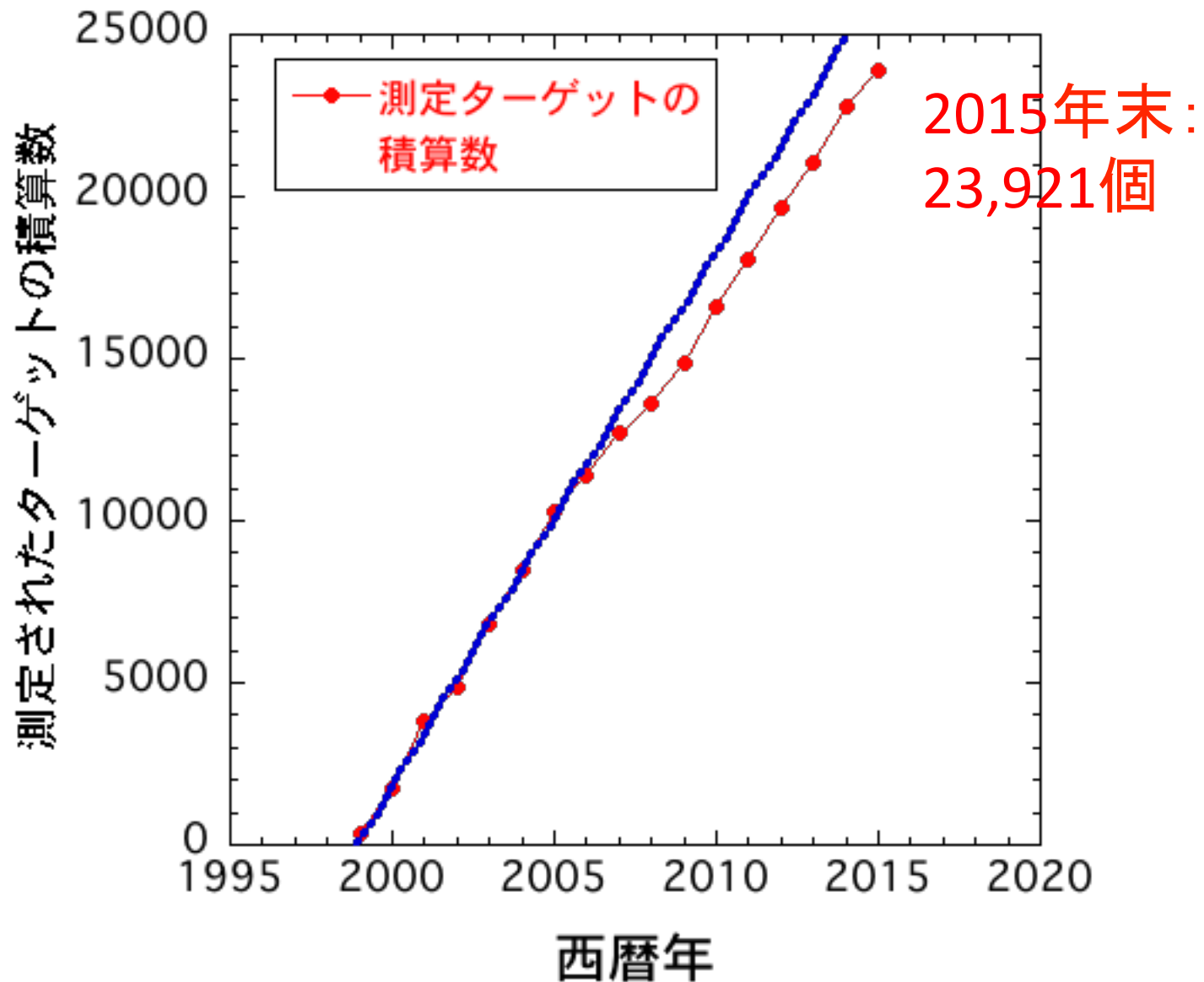
(炭素試料の ^{14}C , ^{13}C , ^{12}C の組成を高精度に測定)

加速器

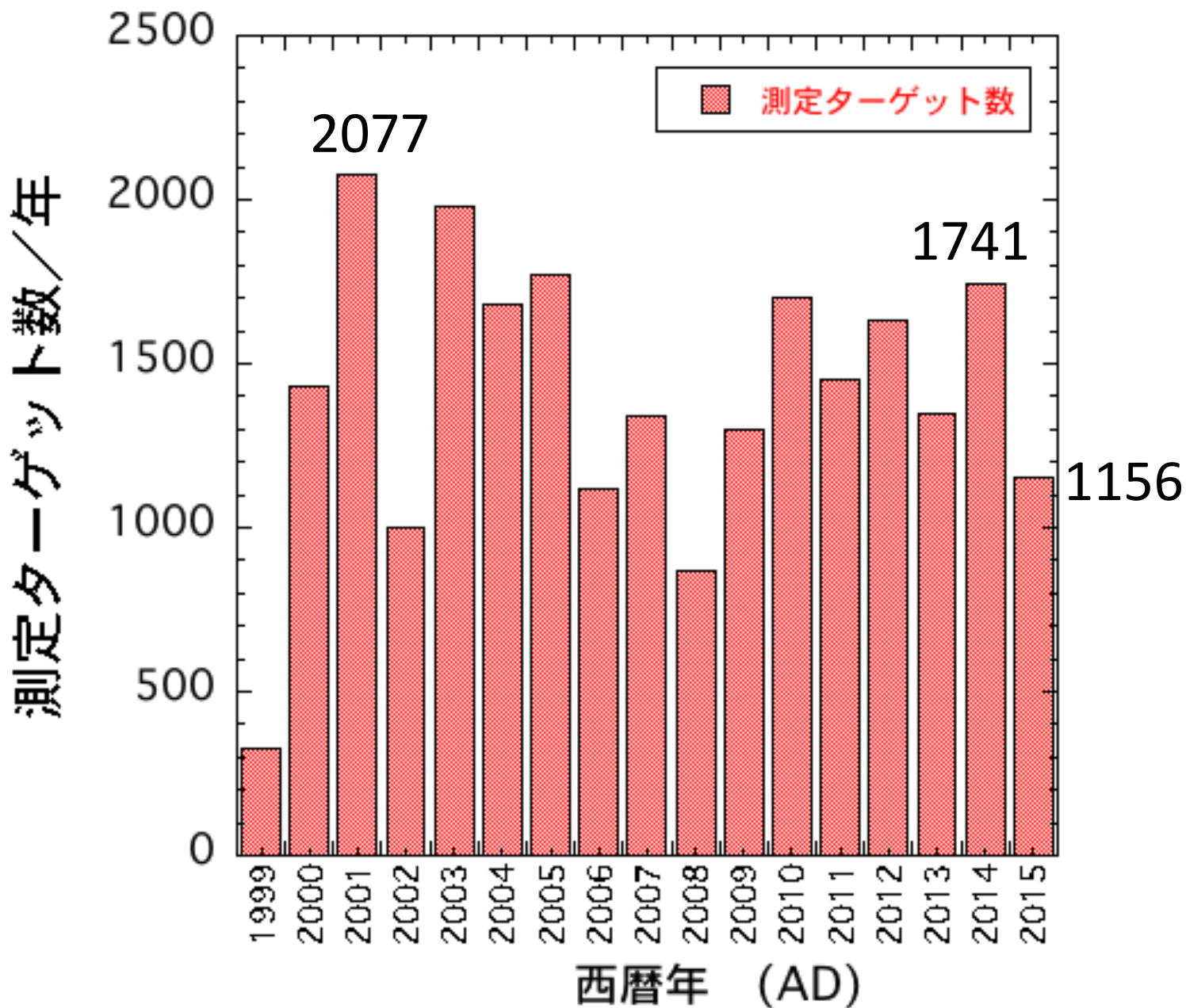


名古屋大学タンデロン加速器質量分析計 2号機

測定ターゲットの積算数



毎年の測定ターゲット数



名古屋大学年代測定総合研究センター タンデトロン年代研究分野

2015年度の構成メンバー: 9名(教職員) + 3名(学生)

教員: 中村俊夫, 南 雅代, 小田寛貴

技術職員: 池田晃子

研究機関研究員: 奈良郁子, (箱崎真隆)

研究支援推進員: 吉田澪代

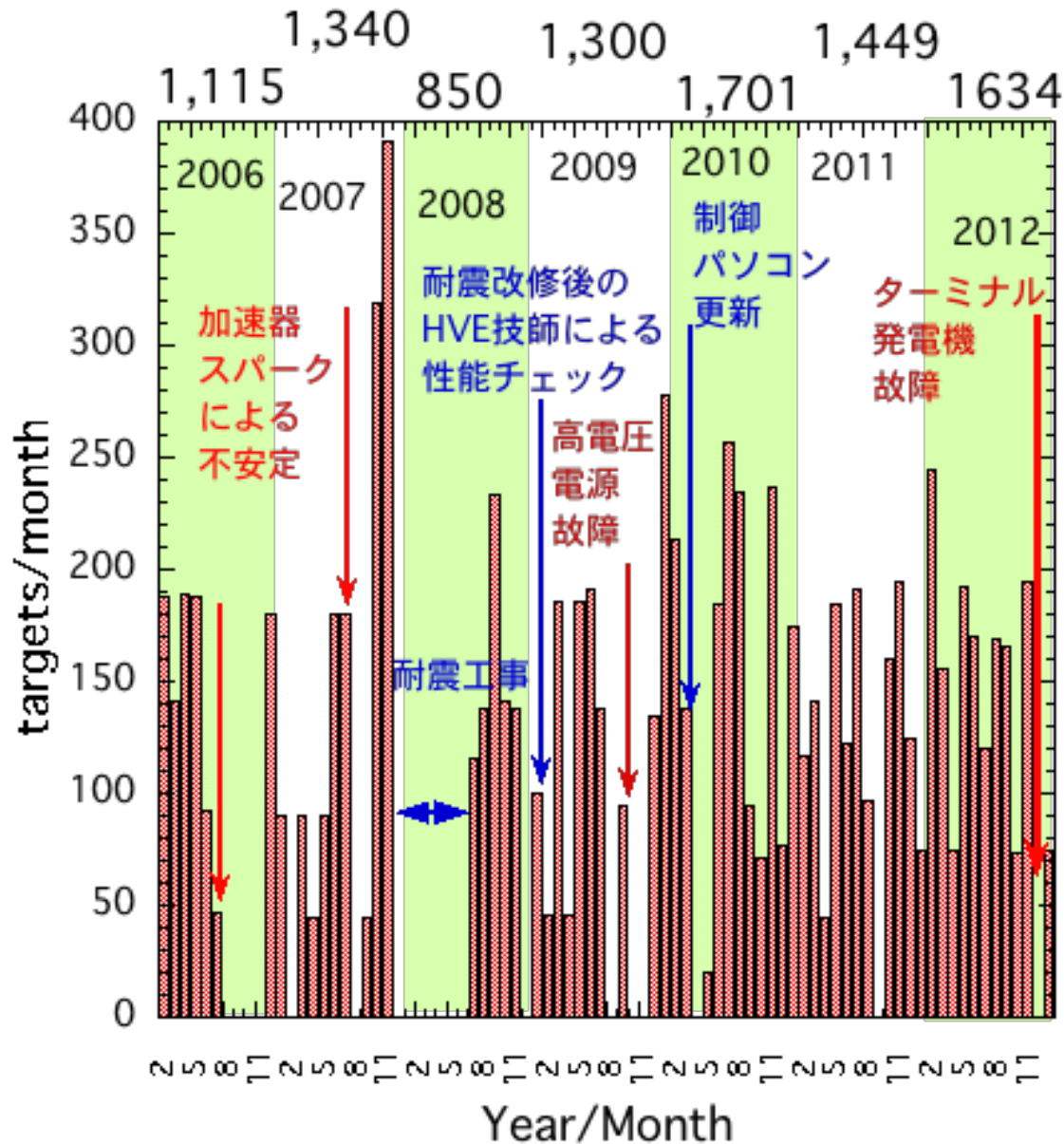
技術パート職員: **太田友子**, 西田真砂美

大学院学生: 池盛文数(D4),
椋本ひかり(M1)

学部学生: 藤沢純平(学部4年生)

月ごとの測定ターゲット数とさまざまな出来事

測定ターゲット数：



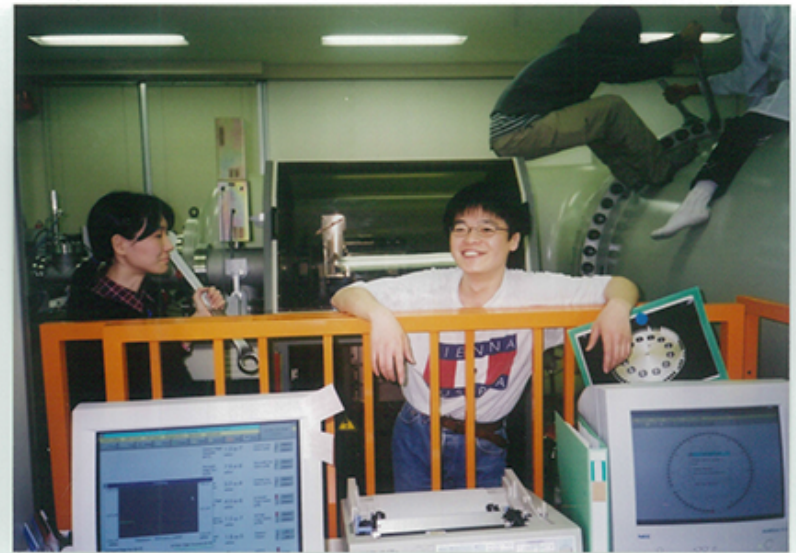
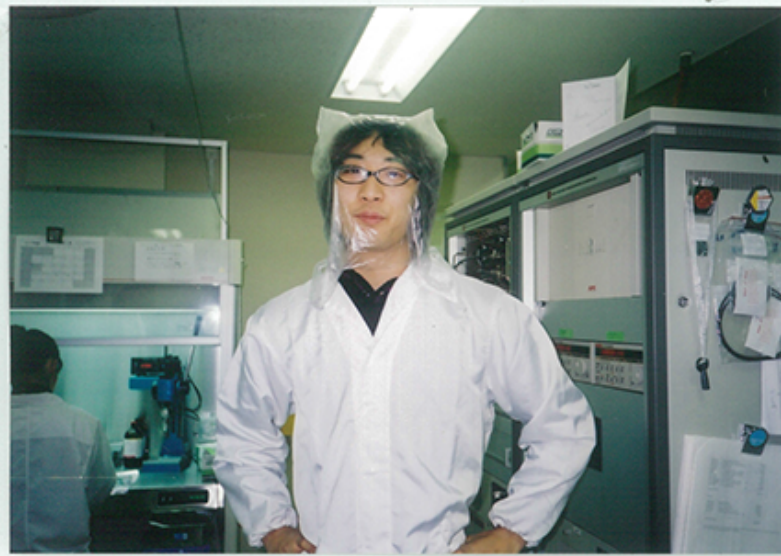
測定年：

2006～2012

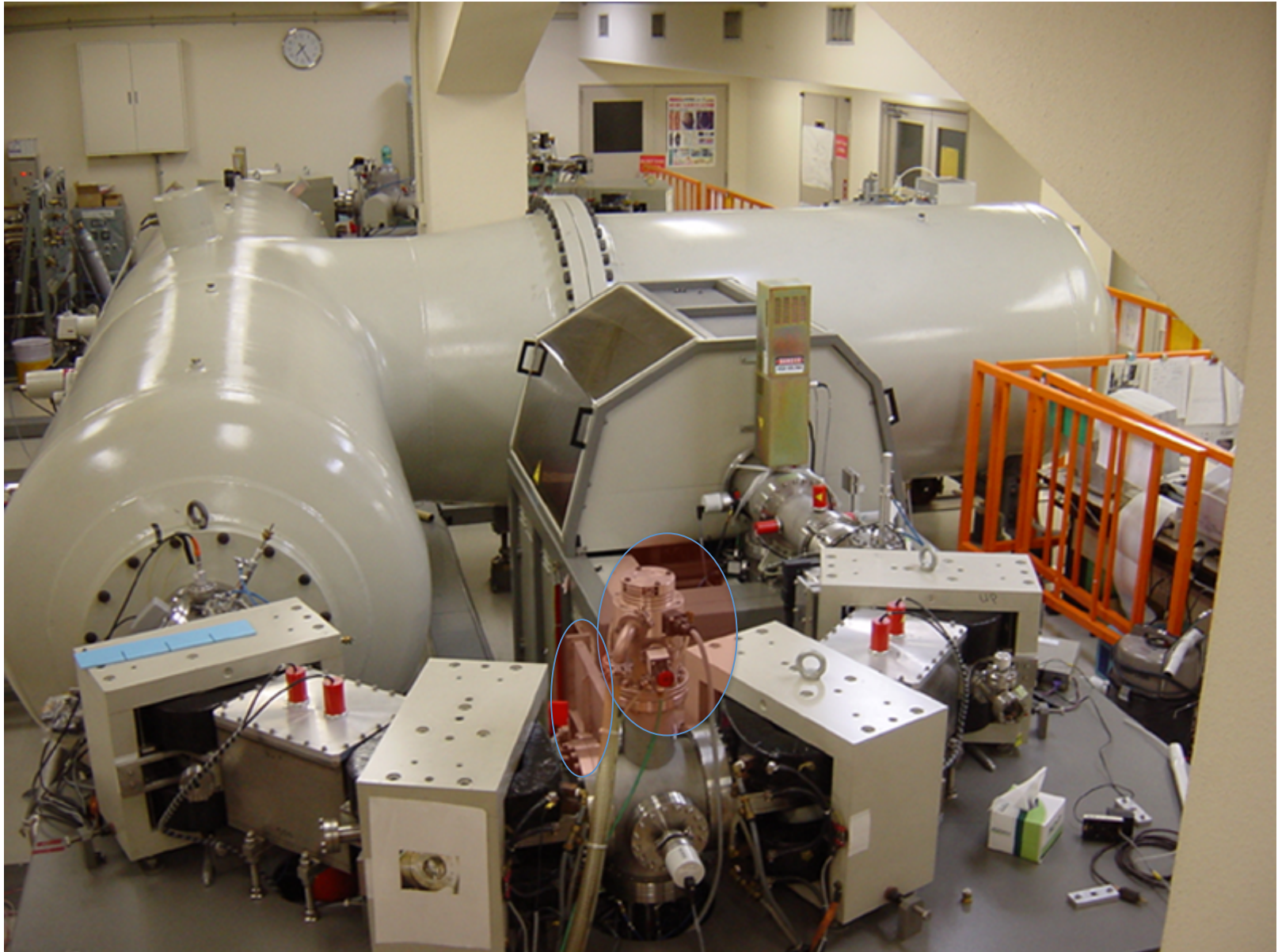
2号機の修理風景 (AD2000)



2号機の修理風景 (AD2000)



タンデムトロン加速器のタンク内の保守



故障した発電機の取り外し



発電機の破損で発生した汚れの 拭き取り作業

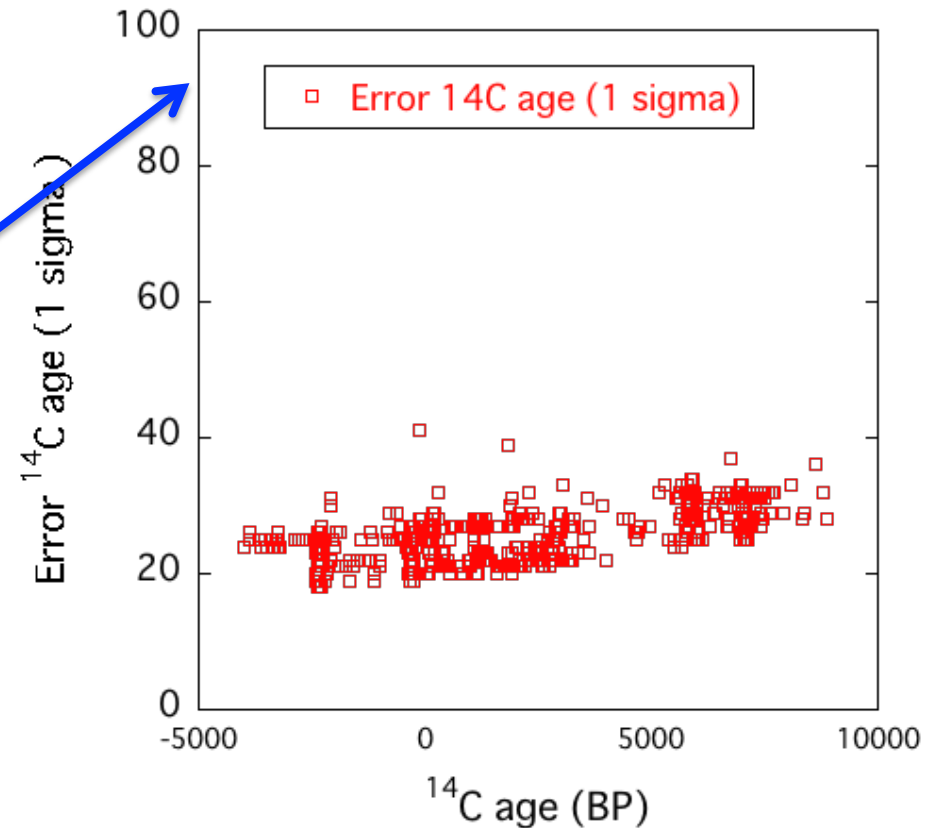
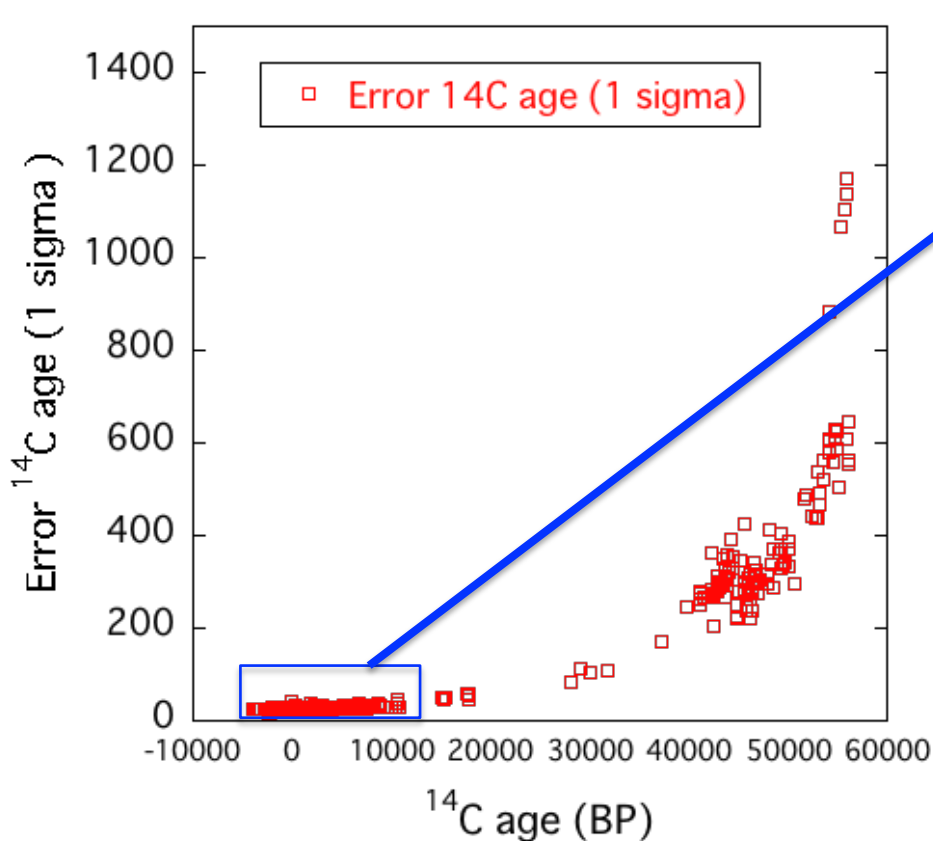


1 σ Error of ^{14}C age in 2014-15

全体

拡大

$\pm 20 \sim \pm 30$ yr



今後の検討課題

- (1) 他流試合(国際比較への参加)
- (2) ^{14}C バックグラウンドの怪
- (3) 正確度への苦悩
- (4) ^{14}C 濃度の誤差を0.1%以下へ

Fourth International Radiocarbon Intercomparison (FIRI): AD2000

1. FIRIに参加した測定施設は全世界で92施設(37カ国から)
 - ・AMS施設が25箇所
 - ・ガス比例計数装置(GPC)施設が18箇所
 - ・液体シンチレーション装置(LSC)施設が49箇所)
 - ・日本国内からの参加は6施設(表2参照)である.
2. 測定結果報告期限:2000年12月末まで

FIRIに参加した日本の ^{14}C 測定施設と ^{14}C 測定法

No	研究機関	^{14}C 測定方法
1	九州環境管理協会	液体シンチレーション
2	大阪先端科学研究所	液体シンチレーション
3	パリノサーベイ(株)	液体シンチレーション
4	名古屋大学年代測定総合研究センター	AMS
5	学習院大学	ガス比例計数管
6	京都産業大学	ガス比例計数管

FIRI試料のリスト

Sample No.	Sample Label	Material	Amount (g)	Suggested Lab.procedure
Normal precision	Normal precision	Normal precision		
1	Sample A	wood (the Kauri wood)	5	Lab's routine proc.
2	Sample B	wood (the Kauri wood)	5	Lab's routine proc.
3	Sample C	turbidite carbonate	10	just fully hydrolyze
				no further pre-treat required
4	Sample D	dendro-dated wood	4	Lab's routine proc.
		(Belfast Scots pine)		
5	Sample E	humic acid	1	no further pre-treat required
6	Sample F	dendro-dated wood	4	Lab's routine proc.
		(Belfast Scots pine)		
7	Sample G	Barley mash	5	no further pre-treat required
8	Sample H	dendro-dated wood	4	Lab's routine proc.
		(Hohenheim oak)		
9	Sample I	Cellulose, extracted	1	no further pre-treat required
		from dendro-dated wood		
		(Belfast Scots pine)		
10	Sample J	Barley mash	5	no further pre-treat required

AMS実験室の測定結果の平均値と 名古屋大学のタンデトロン加速器質量分析計による結果の比較

試料番号	試料物質	^{14}C 濃度測定 平均値 (AMS実験室) (pMC, yr BP)	^{14}C 濃度測定値 (名古屋大学) (pMC, yr BP)	名古屋大学 の結果の AMS平均値 からのずれ	$\delta^{13}\text{C}$ 値測定値 By IRMS (名古屋大学) (‰)
FIRI-A	樹木片	0.17±0.007	<0.271±0.030	+0.101	-23.8±0.1
FIRI-B	樹木片	0.17±0.007	<0.261±0.032	+0.091	-23.6±0.1
FIRI-C	炭酸塩(CaCO ₃)	18183±13	18106±46	-77	1.1±0.1
FIRI-D	樹木片	4519±4	4464±26 4496±18* (*セルロース)	-55 -23	-25.0±0.1 -22.8±0.1
FIRI-E	フミン酸	11805±9	11823±58 11830±53* (*測定可能最少量: 0.2mg)	+18 +25	-28.9±0.1 -29.0±0.1
FIRI-F	樹木片	4519±4	4463±45	-56	-24.7±0.1
FIRI-G	すりつぶした大麦	110.52±0.05	110.75±0.46	+0.23	-28.7±0.1
FIRI-H	セルロース	2238±6	2174±23	-64	-24.8±0.1
FIRI-I	セルロース	4483±7	4468±40	-15	-23.5±0.1
FIRI-J	すりつぶした大麦	110.52±0.05	110.51±0.55	-0.01	-28.9±0.1

第4回 放射性炭素測定 国際比較

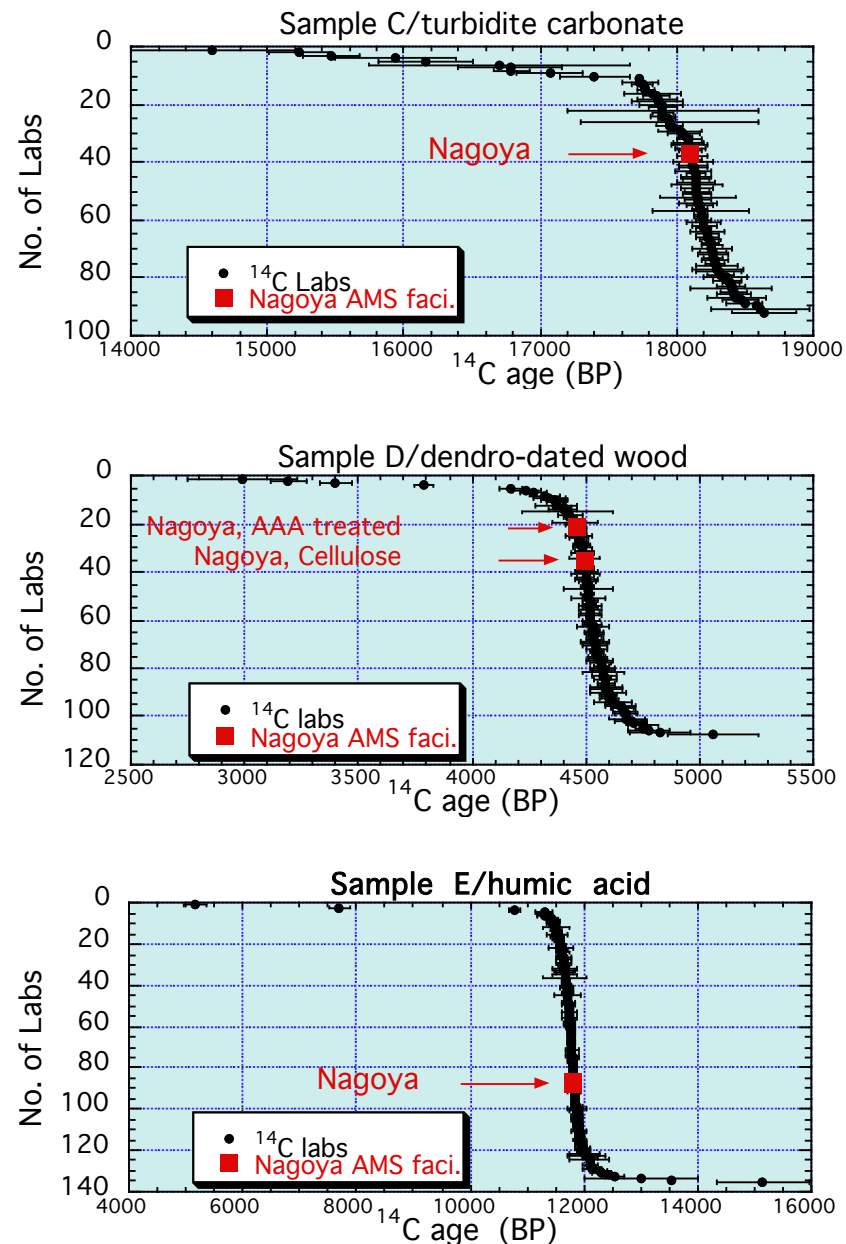
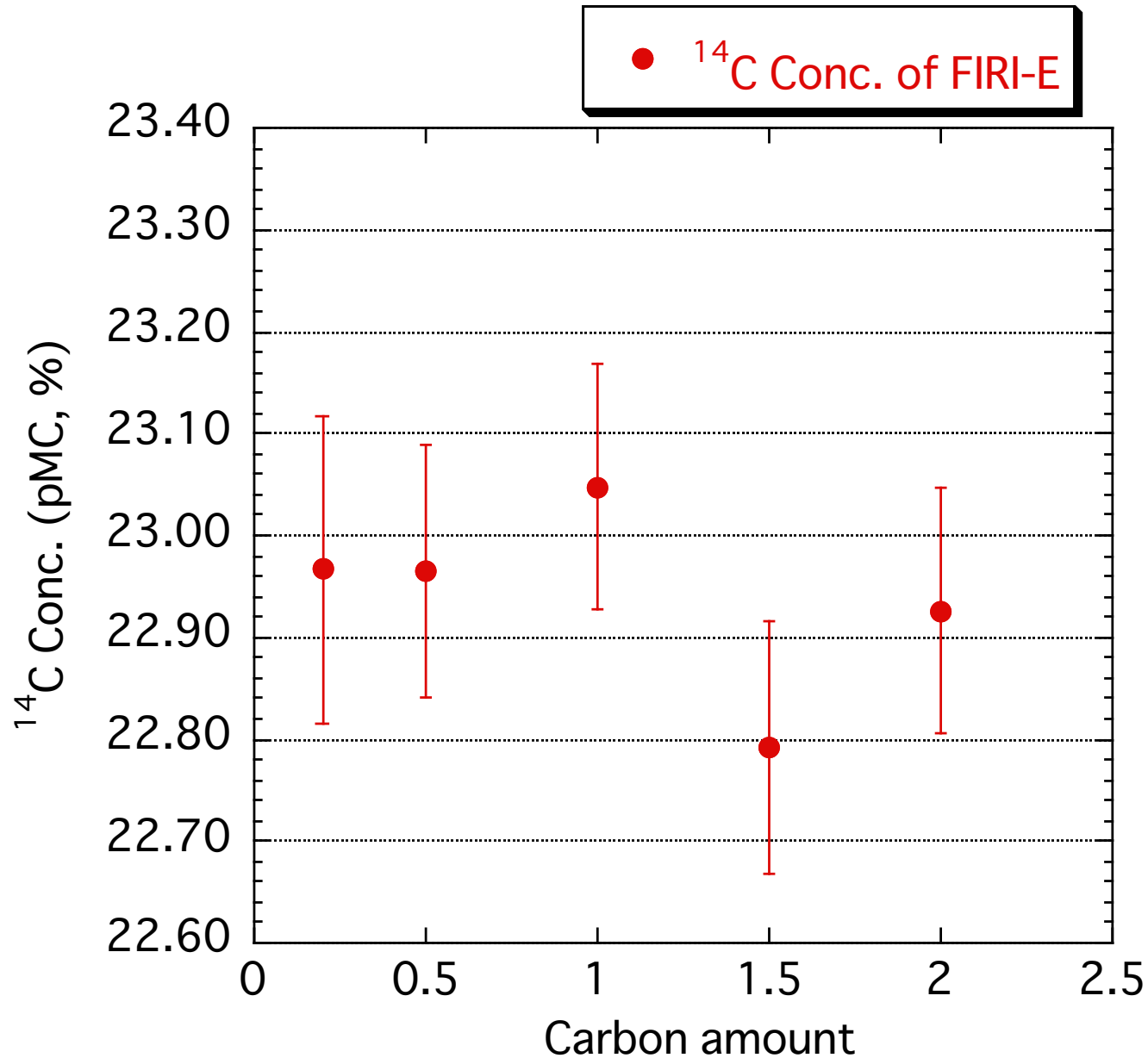


図3 FIRI-C, -D, -Eの3試料について報告された ^{14}C 年代の変動
名古屋大学の測定結果を矢印で表す。

3組の同一試料の ^{14}C 測定結果の差の比較

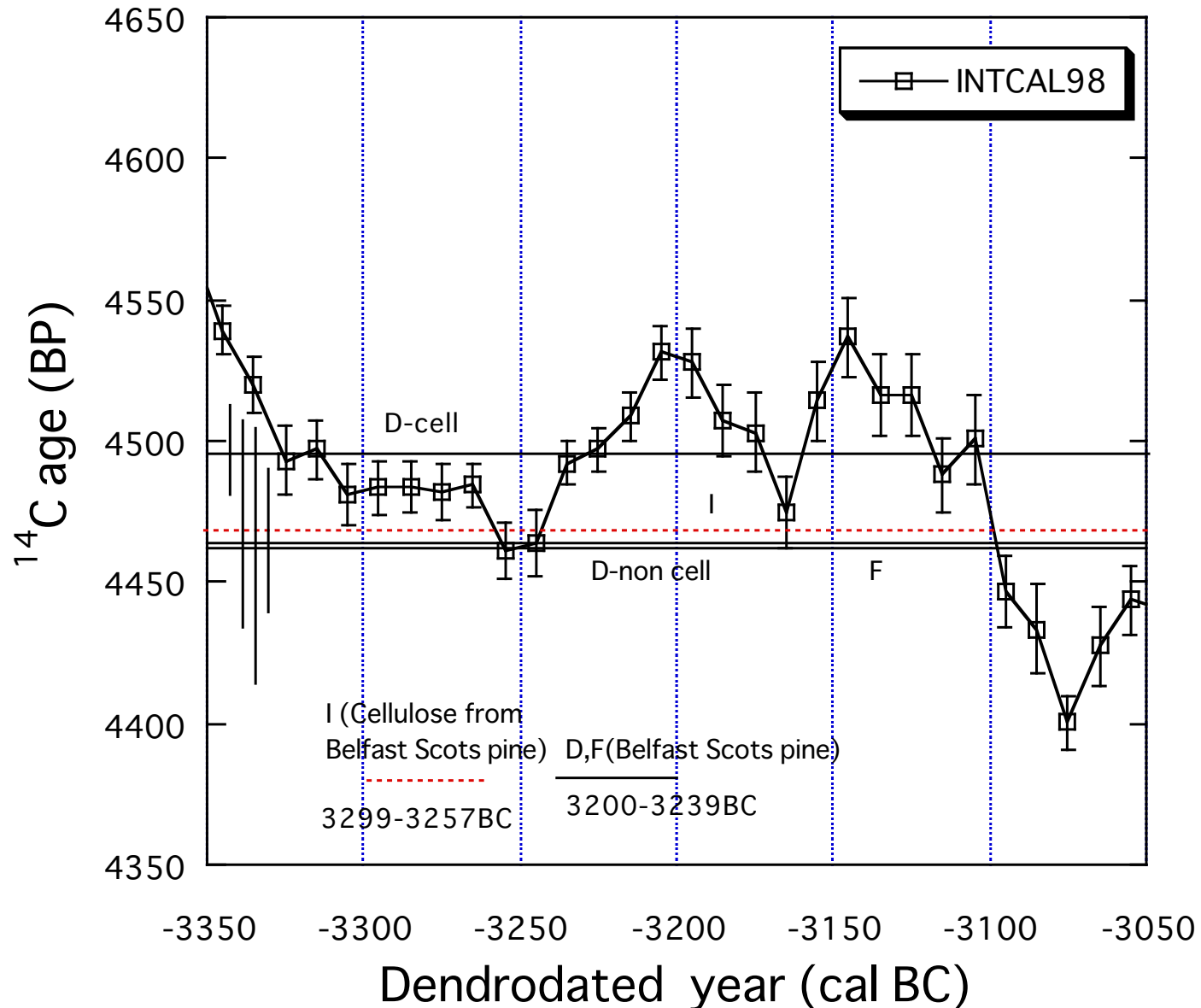
同一試料の組	差の平均値	差の標準偏差	差の最頻値	名古屋大学の結果
A-B	0.4 (pmC)	3.04	0.04	0.01
G-J	-0.27 (pmC)	3.72	-0.12	0.24
D-F	-31.8 (yr)	324.9	17	1

FIRI-E, dependence on sample amount



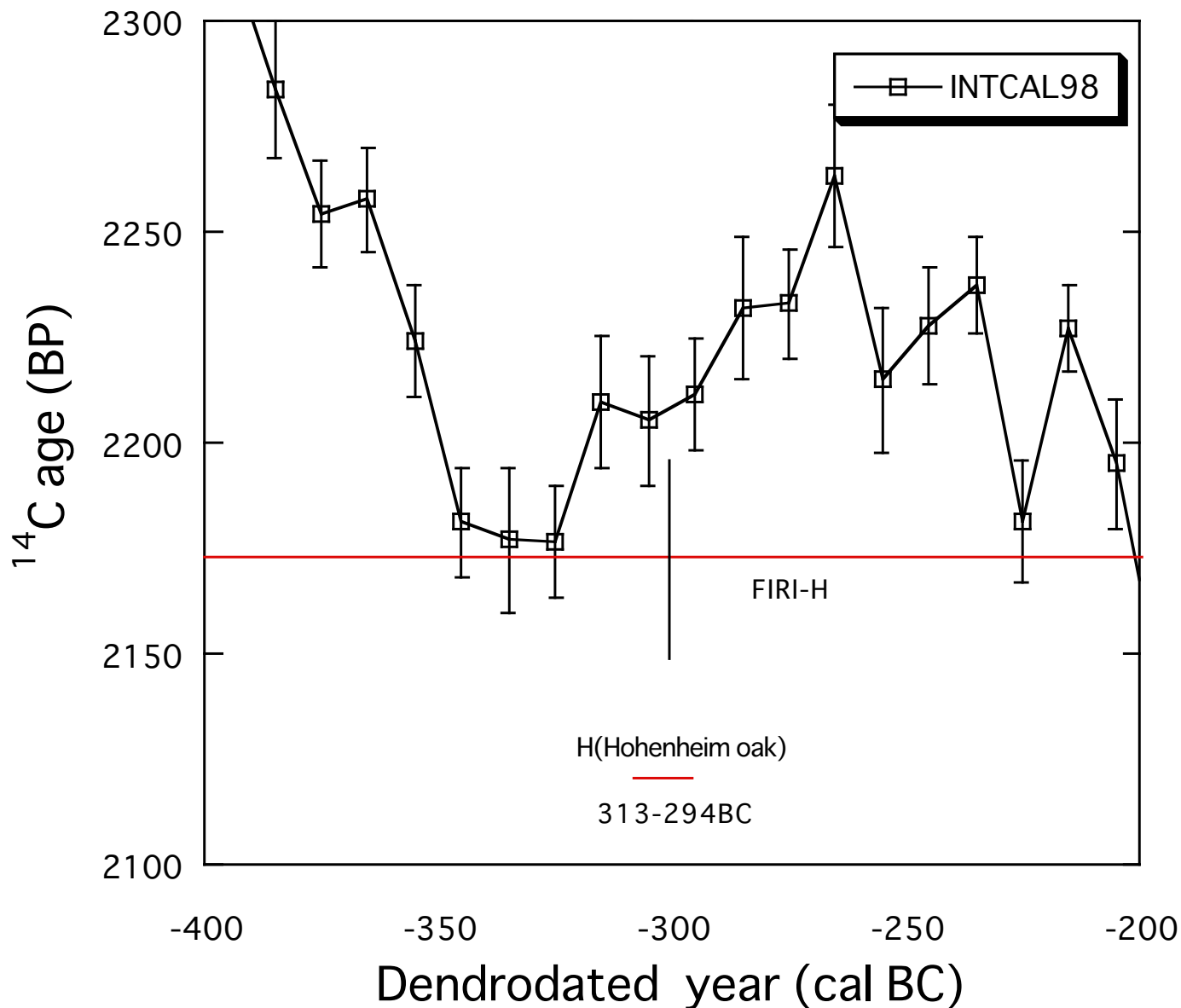
^{14}C age and Dendro-age for FIRI-D, -F, -I

Comparison of ^{14}C age and Dendro-age for FIRI-D, -F, -I



^{14}C age vs Dendro-age for FIRI-H

Comparison of ^{14}C age and Dendro-age for FIRI-H



VIRI (Fifth International Radiocarbon Intercomparison): AD2005 (第5回放射性炭素国際比較)

1. Period: End of May, 2005

2. ^{14}C Labs participated: 66 labs.

AMS(加速器質量分析法):32

LSC(液体シンチレーション法):31

GPC(ガス比例計数管法):10

Japan:Nagoya Univ., Univ. of Tokyo---2 AMS labs.

3. Sample distributed (4 kinds):

Barley mash(オオムギをつぶしたもの):4samples, 2g each

Charred seed(炭化穀物): 2samples, 4 grains each

VIRI samples

(第5回放射性炭素国際比較)



VIRI Sample A and C

(Barley mash:オオムギをつぶしたもの: 2g配布)



VIRI sample B and D

(seed grain:穀物の種:4粒配布)



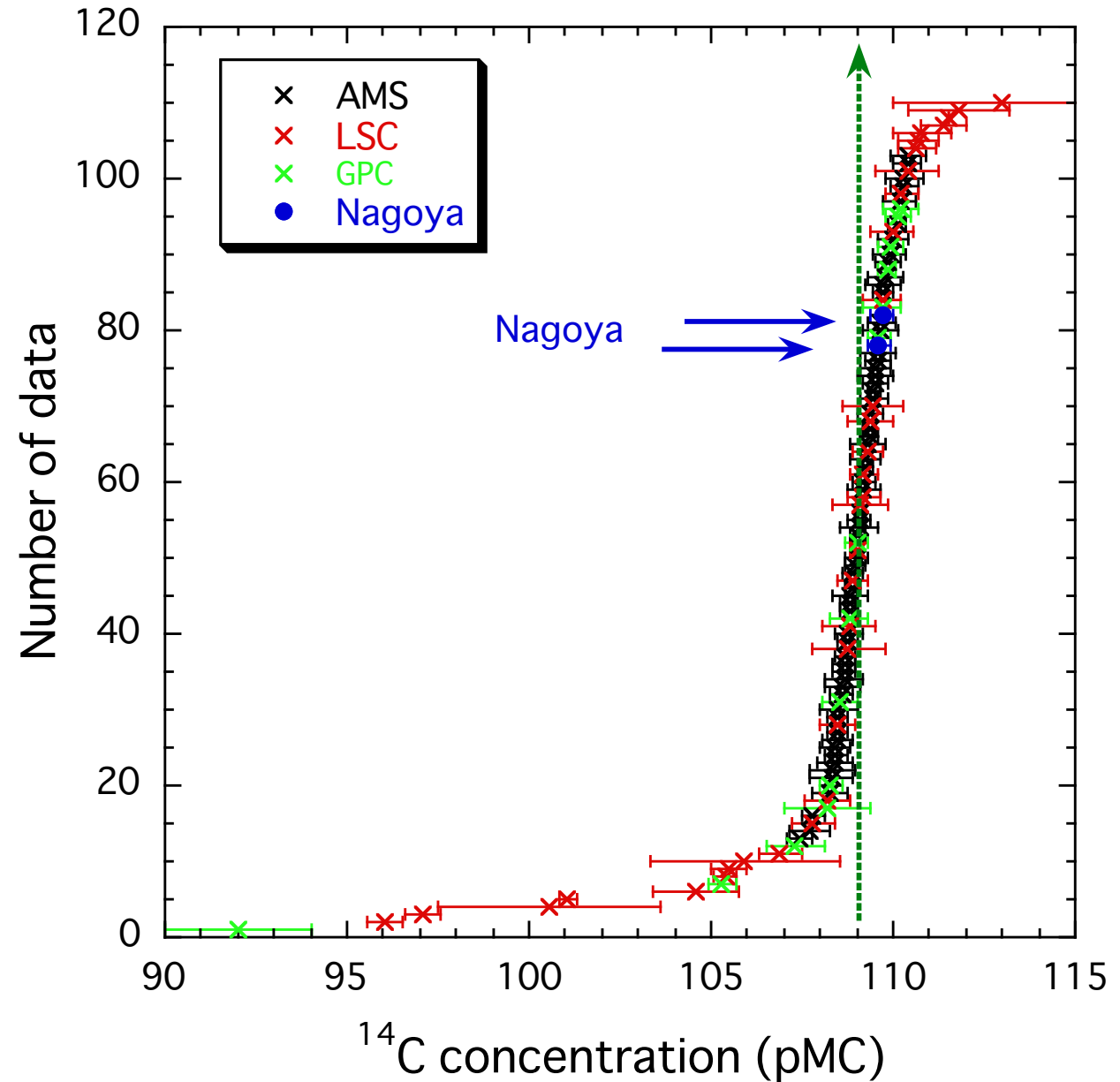
Results of VIRI and comparison with Nagoya University

Sample No.	Average	Median	Std	Min.	Max.	Nagoya ($\pm 1\sigma$)
A (pMC)	108.6	109.1	2.78	92	113.0	109.6 \pm 0.3 109.7 \pm 0.3
B (BP)	2825	2821	198.7	2460	3979	2752 \pm 25 2803 \pm 28
C (pMC)	109.8	110.6	2.35	98.6	112.6	110.7 \pm 0.3 110.9 \pm 0.3
D (BP)	2859	2835	185.2	2580	3998	2811 \pm 25 2832 \pm 25

Sample A: Barley mash

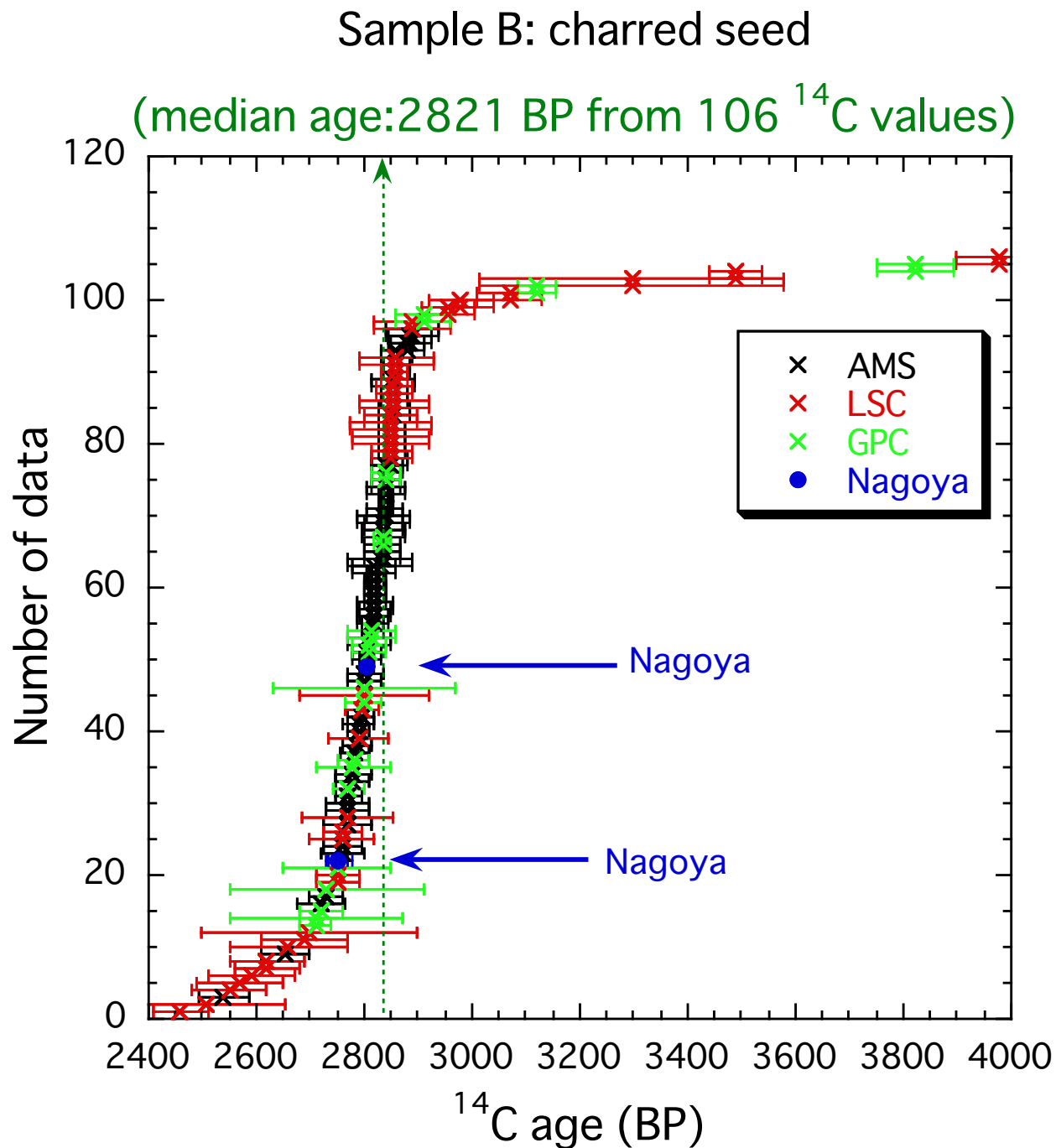
試料A:
すりつぶした
オオムギ

Sample No. A: Barley mash
(median value: 109.1 for 110 values)



Sample B:
charred
seed

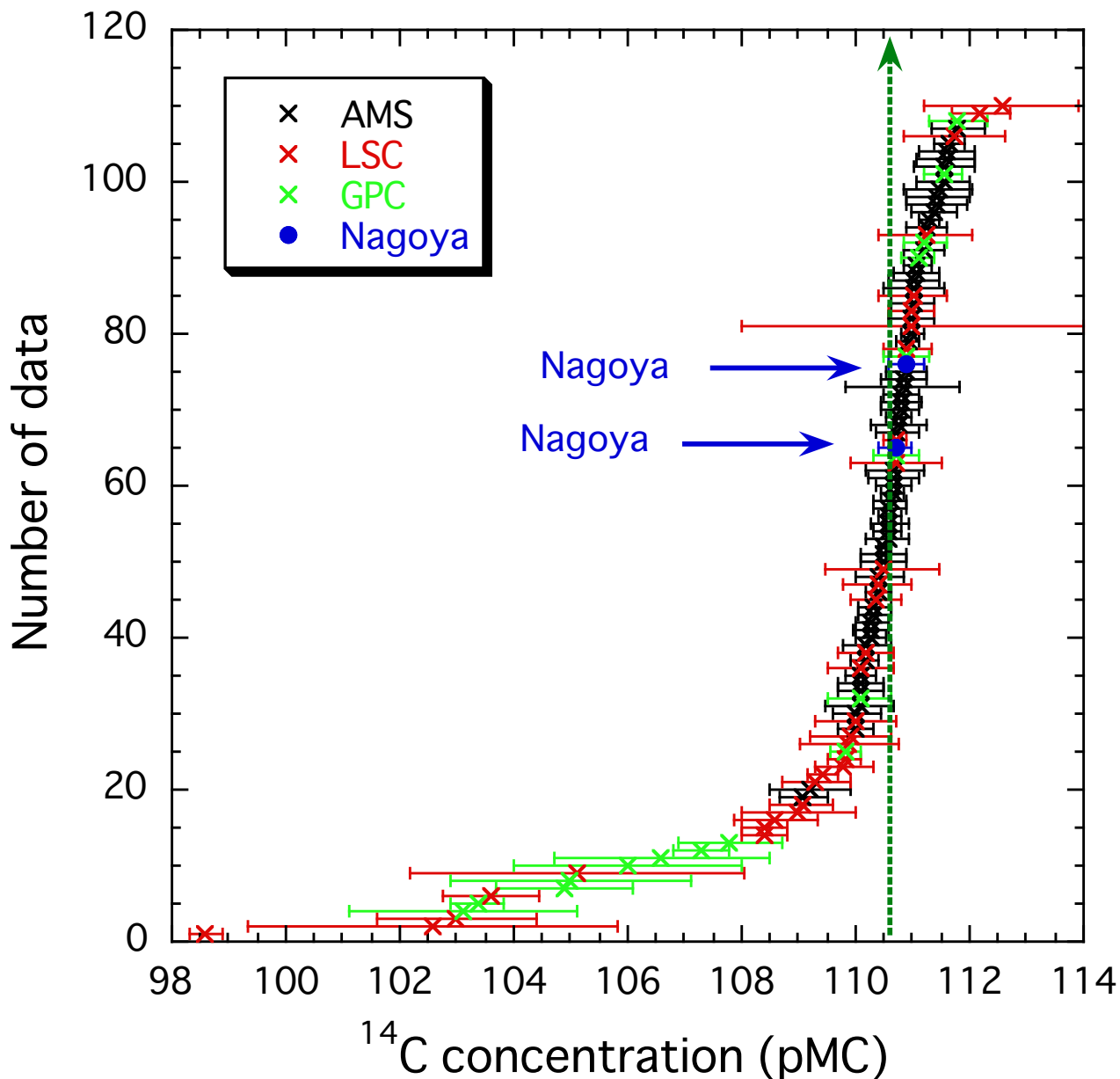
試料B:
炭化した
穀物の種
(考古試料)



Sample C:
charred
seed

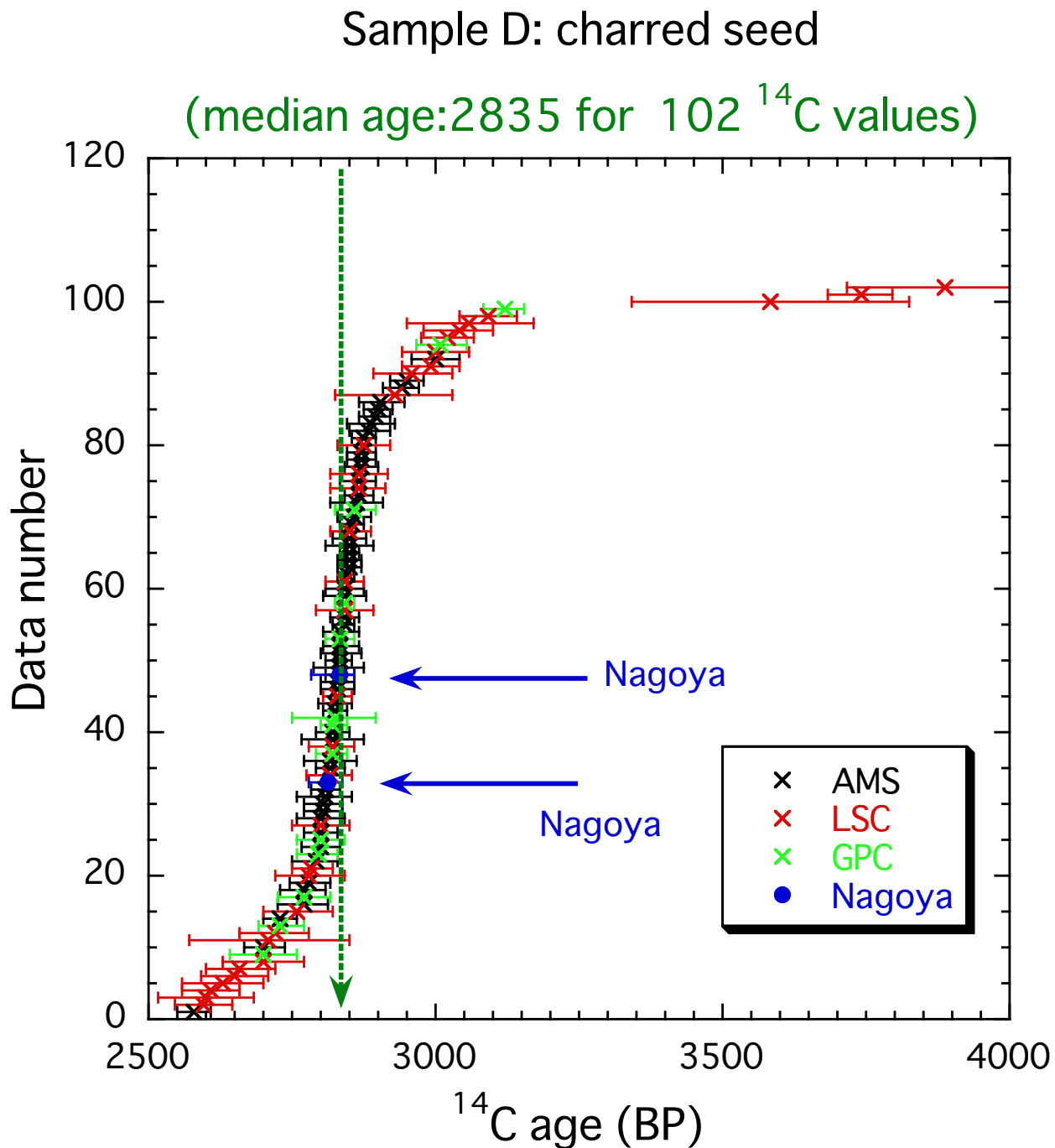
試料C:
すりつぶし
たオオムギ

Sample No.C: Charred seed
(median value: 110.6 for 110 values)



Sample D:
Barley mash

試料D:
炭化した
穀物の種
(考古試料)



^{14}C 測定国際比較

1. AMS実験室による測定結果の平均値・最頻値とほぼ一致している.
2. VIRIの続ぎに参加予定
3. 今後の比較プログラムに積極的に参加する.

大気中CO₂の¹⁴C濃度測定の国際比較

Spl-1(Tank 1, FARI-A): Air sample:

Collected place: at Niwot Ridge, Colorado, USA

Collection date: in July, 2006

Remarks: ambient air sample,

CO₂ concentration: 381.42 ppm

D13C(CO₂): -8.40 permil

D14C(CO₂): 60 permil (expected by existing data)

Spl-2 (Tank 2, FARI-B): air sample

Collected place: at Niwot Ridge, Colorado, USA

Collection date: in March, 2005

Remarks: ambient air sample spiked with ¹⁴C-free CO₂

CO₂ concentration finally: 418.52 ppm

D13C(CO₂): permil (underway)

D14C(CO₂): 0 permil (expected by calculation based on existing data)

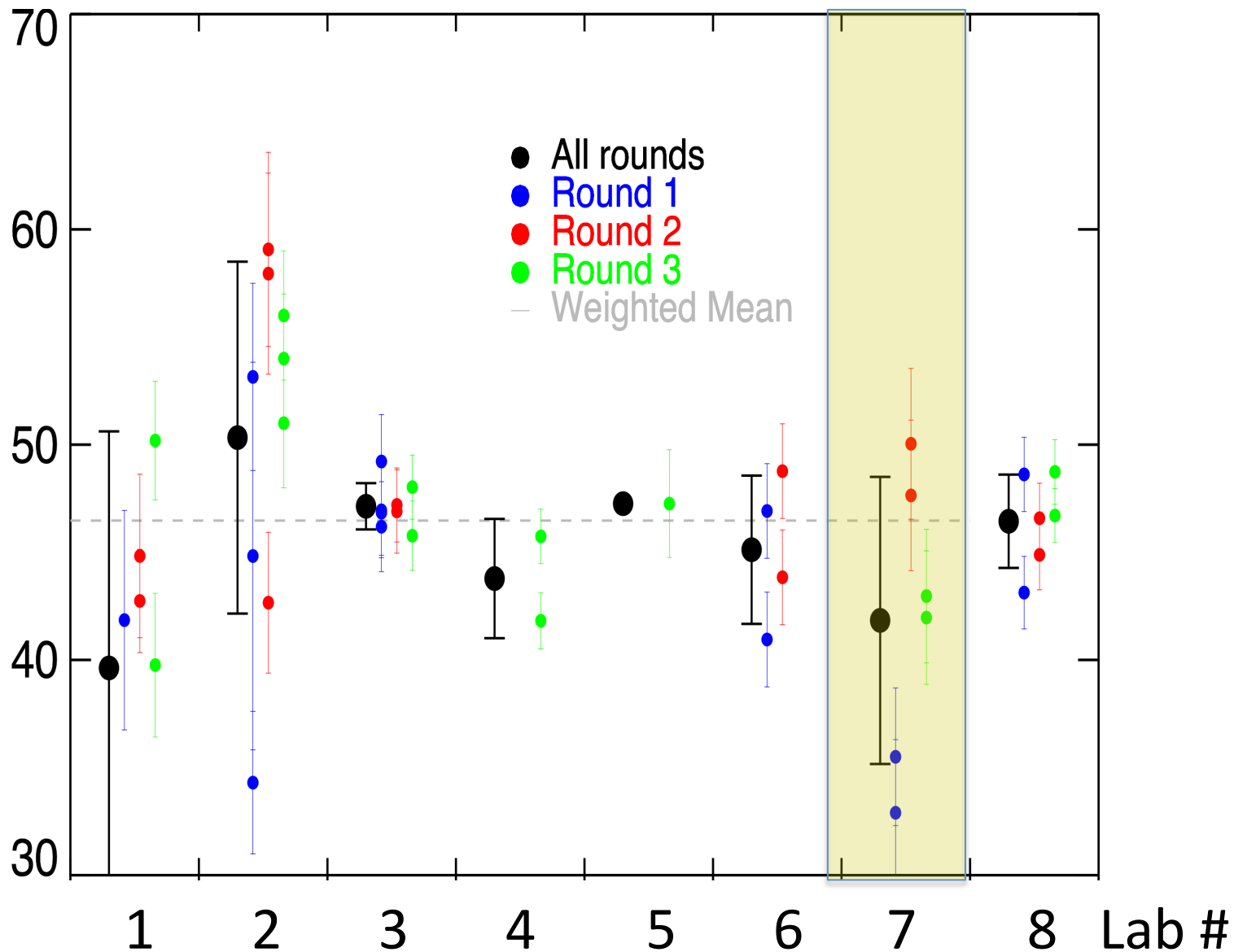
3回に分けて、大気試料を各国の¹⁴C AMS実験室へ

参加グループ

Group Number	Group Name	Extraction Laboratory	Graphitization Laboratory	AMS Laboratory	Method References	Flask Description
1	ANSTO-CSIRO	Australian Nuclear Science and Technology Organisation (ANSTO)	ANSTO	ANSTO	(Fink et al. 2004; Hua et al. 2004)	Elongated borosilicate 3 L, 2 stopcocks
2	CIO	University of Groningen Centre for Isotope Research (CIO)	CIO	CIO	(Meijer et al. 2006)	Borosilicate 2.5 L, 2 Louwers-Happert stopcocks.
3	INSTAAR/UCI	University of Colorado Institute for Arctic and Alpine Research (INSTAAR)	INSTAAR	University of California, Irvine (UCI)	(Turnbull et al. 2007; Lehman et al. 2012)	Borosilicate 2.2 L, 2 Teflon Stopcocks
4	LLNL	Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL)	LLNL	LLNL	(Graven et al. 2007)	Stainless Steel 4 L, dual stopcock
5	NIES/Paleo-Labo	National Institute for Environmental Studies (NIES)	Paleo-Labo	Paleo-Labo	(Kobayashi et al. 2007)	Borosilicate 2.5 L, 2 stopcocks.
6	SIO/LLNL	Scripps Institution for Oceanography (SIO)	LLNL	LLNL	(Graven et al. 2007)	Spherical borosilicate 5 L, single ground-glass greased stopcock
7	Tohoku-Nagoya	Tohoku University	Nagoya University	Nagoya University	(Nakazawa et al. 1993; Nakamura et al. 2004)	Borosilicate 3 L, 2 stopcocks
8	UCI	UCI	UCI	UCI	(Xu et al. 2007)	Spherical Stainless Steel flask 6 L, single valve

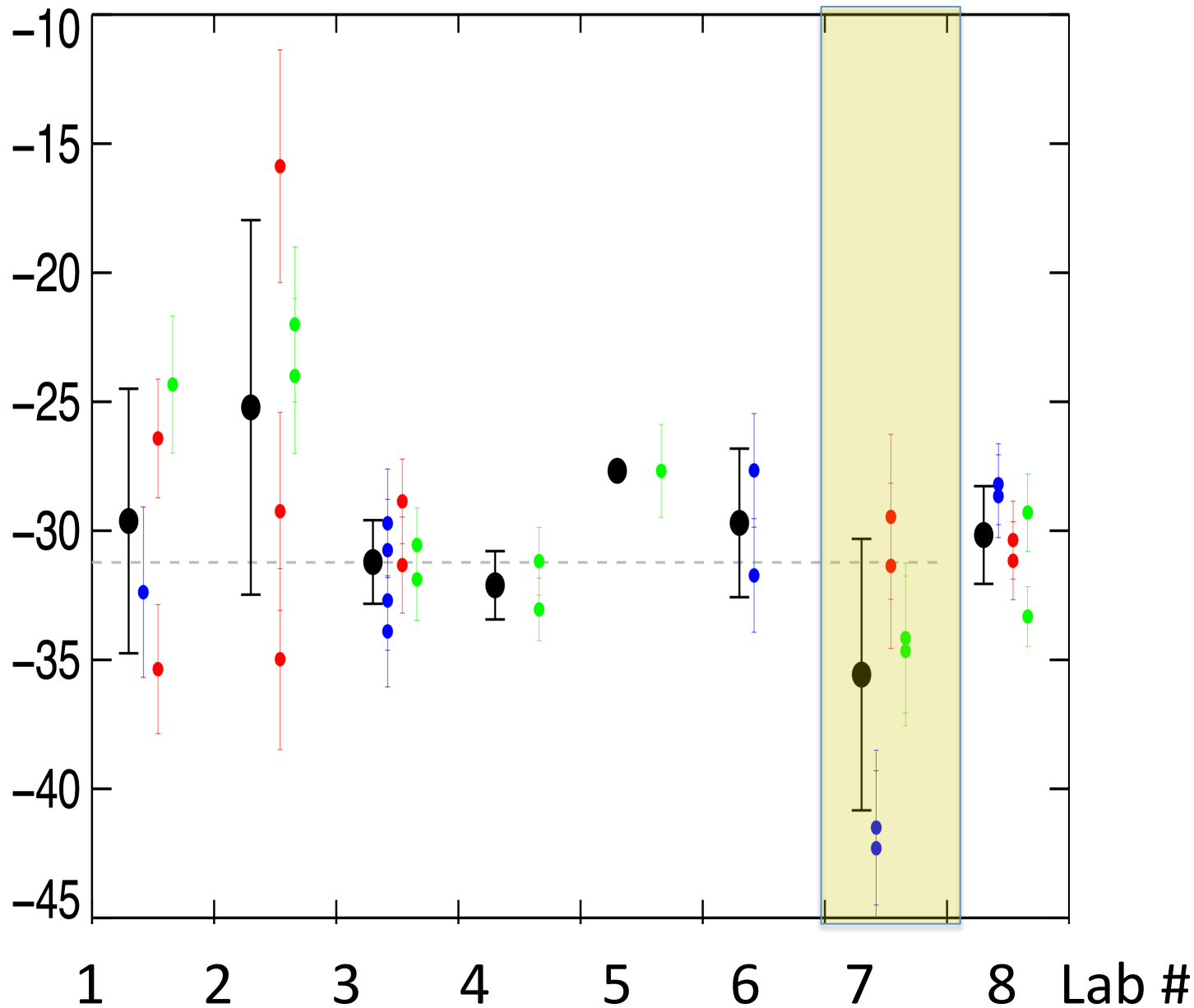
$\Delta^{14}\text{C}$
(‰)

FARI-A (Original data)



$\Delta^{14}\text{C}$
(‰)

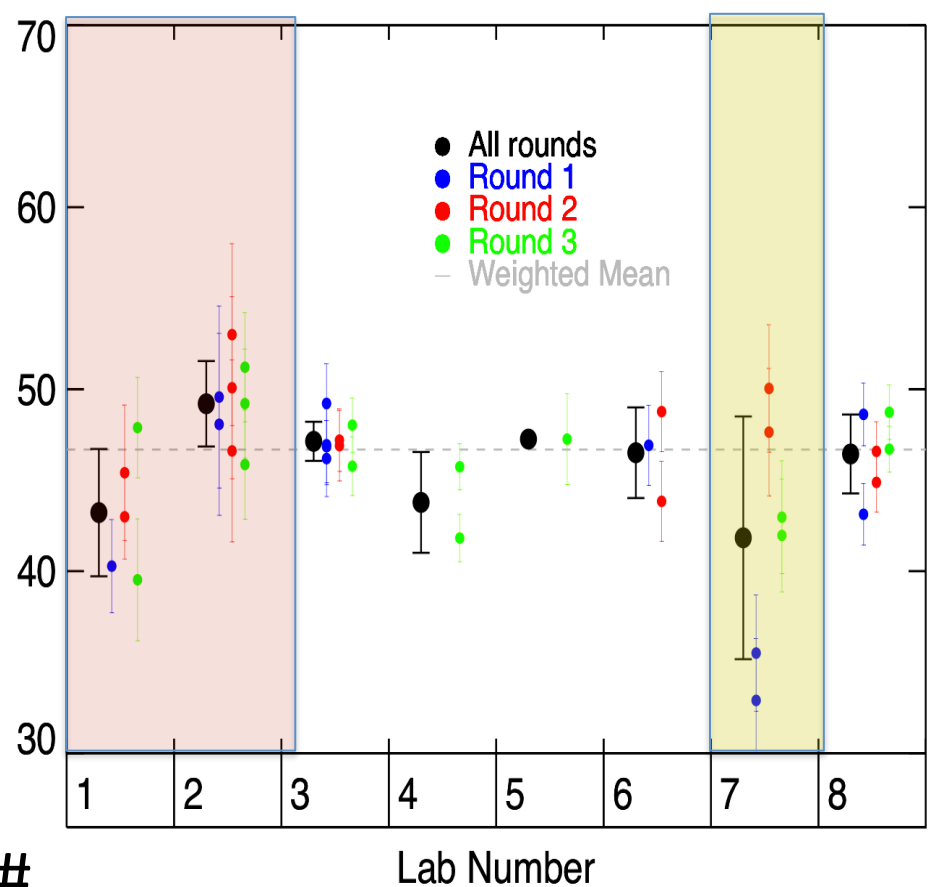
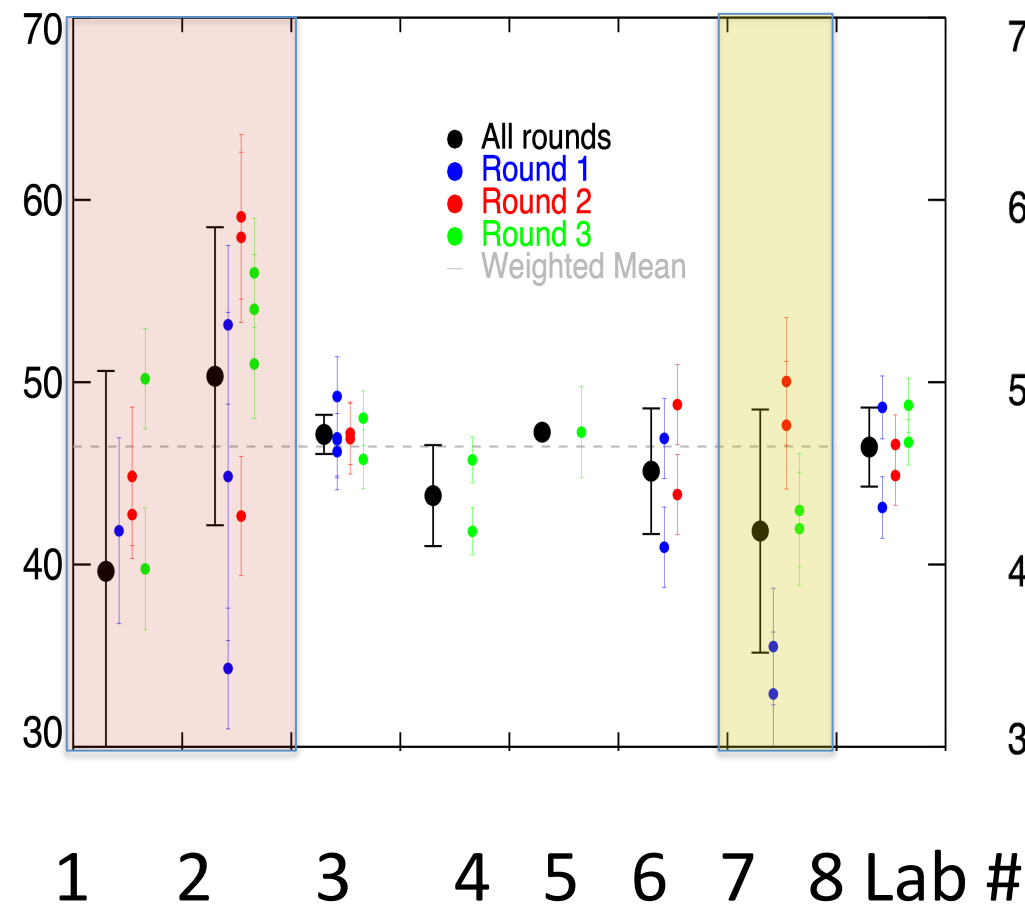
FARI-B (Original data)



試料 : FARI-A

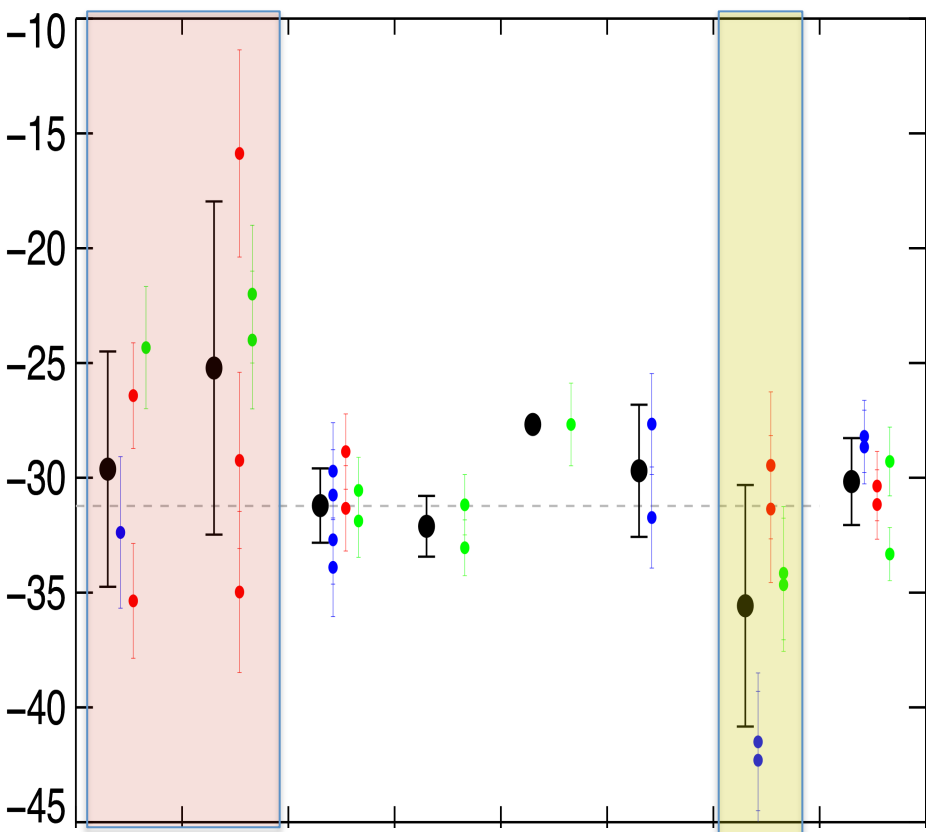
オリジナル報告

論文報告

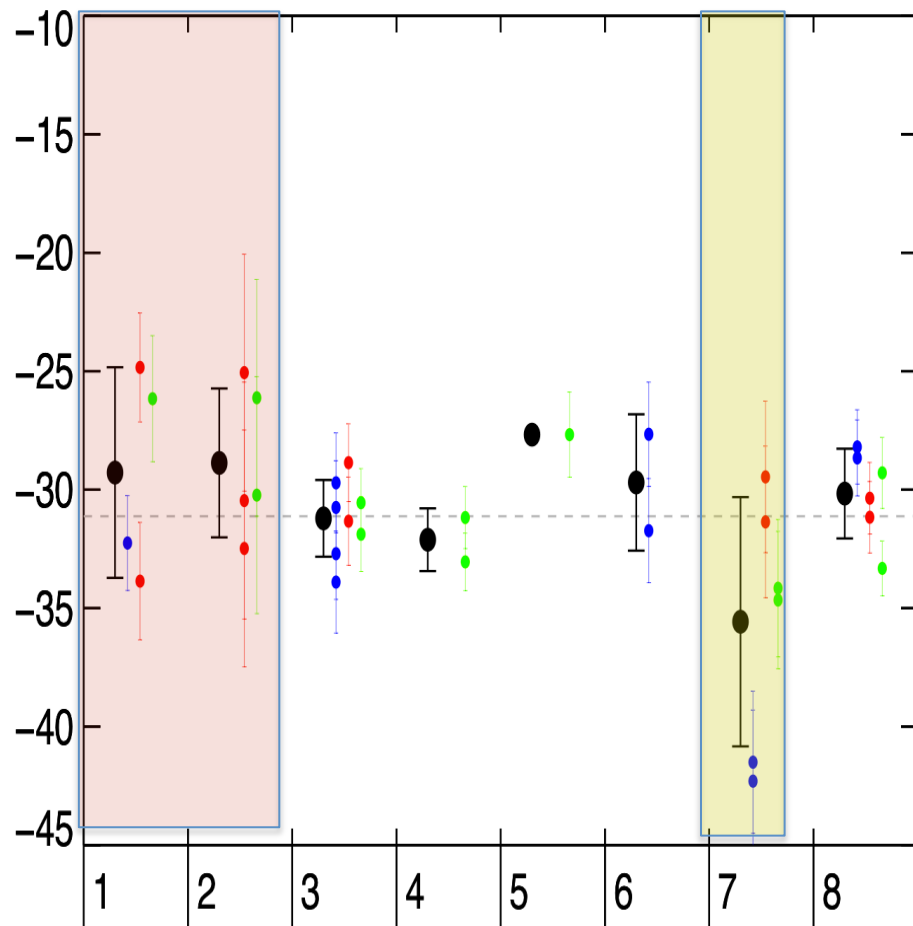


試料 : FARI-B

オリジナル報告



論文報告



Lab Number

Compatibility of atmospheric $^{14}\text{CO}_2$ measurements: comparing the Heidelberg low-level counting facility to international accelerator mass spectrometry (AMS) laboratories (Feb.2014-May 2014)

Samuel Hammer¹, Ronny Friedrich², Bernd Kromer^{1,2}, Alexander Cherkinsky⁹, Scott J. Lehman¹¹, Harro A.J. Meijer⁸, Toshio Nakamura³, V. Palonen⁴, Ron W. Reimer⁵, Andrew M. Smith¹², John R. Southen¹³, Sönke Szidat⁶, Jocelyn Turnbull⁷, Masao Uchida¹⁰ and Ingeborg Levin¹

- 1) Institute Fur Umweltphysik, Heidelberg University, Germany
- 2) Curt Engelhorn Center for Archaeometry gGmbH, Mannheim, Germany
- 3) Center for Chronological Research, Nagoya University, Japan
- 4) Department of Physics, University of Helsinki, Finland
- 5) 14CHRONO Centre for Climate, the Environment and Chronology, School of Geography, 14 Archaeology and Palaeoecology, Queen's University Belfast, U.K.
- 6) Department of Chemistry and Biochemistry & Oeschger Centre for Climate Change 16 Research, University of Bern, Switzerland 17
- 7) National Isotope Centre, GNS Science New Zealand and CIRES, University of Colorado, 18 USA 19
- 8) Centre for Isotope Research (CIO), Energy and Sustainability Research Institute Groningen 20 (ESRIG), University of Groningen, the Netherlands 21
- 9) Center for Applied Isotope Studies, University of Georgia, USA 22
- 10) National Institute for Environmental Studies, Tsukuba, Japan 23
- 11) INSTAAR, University of Colorado, Boulder, Colorado, USA 24
- 12) Australian Nuclear Science and Technology Organisation, Lucas Heights, NSW 2234, 25 Australia 26
- 13) Earth System Science Department, University of California, Irvine, California 92612, USA

比較測定に参加したラボ

Table 1: Participating laboratories in alphabetical order, which is not identical to the lab number used in this paper.

Laboratory/Institution	Affiliation
¹⁴ CHRONO Centre	Queen's University, Belfast, U.K.
Center for Applied Isotope Studies	University of Georgia, USA
Center for Atmospheric and Oceanic Studies & Center for Chronological Research	Tohoku University, Sendai, Japan & Nagoya University, Nagoya, Japan
Centre for Isotope Research (CIO)	University of Groningen, The Netherlands
Curt-Engelhorn-Center for Archaeometrie (CEZA)	Mannheim, Germany
ICOS CRL AMS	University of Heidelberg, Germany
ICOS CRL LLC	University of Heidelberg, Germany
INSTAAR & UCI	University of Colorado, Boulder, CO, USA & University of California, Irvine, CA, USA
Centre for Accelerator Science	ANSTO, Lucas Heights, Australia
LARA AMS Laboratory	University of Bern, Switzerland
NIES-TERRA AMS facility	Ibaraki, Japan
Rafter Radiocarbon Laboratory	GNS Science, Lower Hutt, New Zealand
University of Helsinki AMS facility	University of Helsinki, Finland

大氣中CO₂試料

Table 2: Summary of the ICP samples.

	Sample origin	Sample code	$\delta^{13}\text{C}_{\text{VPDB}}$ [‰]	Collection date
1	CO ₂ from biomass burning	30864	-22.25	01.01.2010
2	NIST Oxalic Acid I (SRM 4990B)	30874	-19.2	01.01.1950
3	atmospheric sample (Cabauw 39)	30993	-10.67	05.12.2012
4	atmospheric sample (Heidelberg 1138)	30996	-9.65	26.08.2013
5	atmospheric sample (Cabauw 32)	31061	-8.38	22.08.2012

Fig. 1: Differences of the individual labs to the consensus value of sample 30874 (OxI). The gray shaded area indicates the uncertainty of the consensus value. The difference between the 3 consensus value and the nominal value of the NIST oxalic acid I (SRM 4990B) is shown as red 4 dashed line. Lab 6 reported insufficient graphitization for this sample 30874. 5

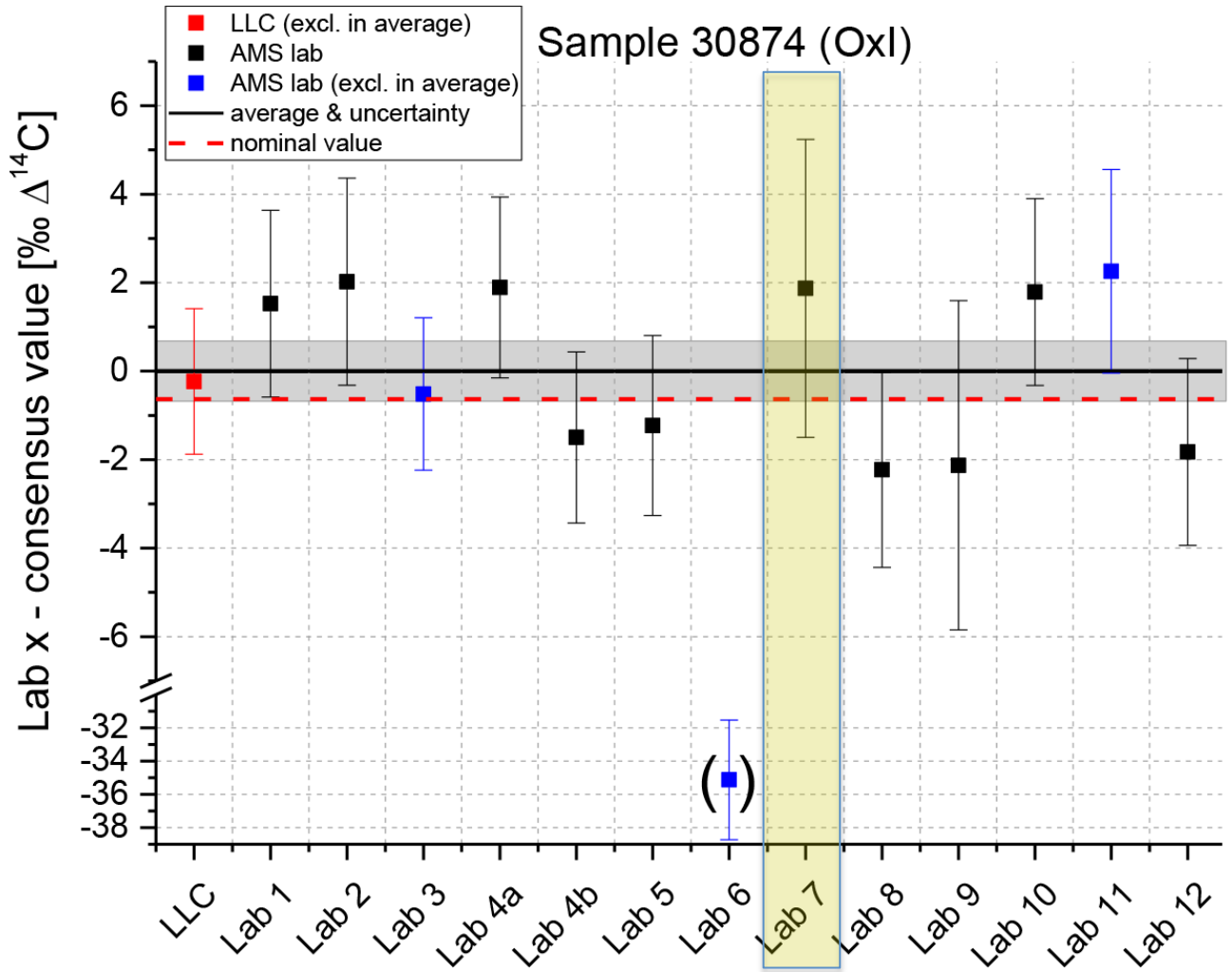
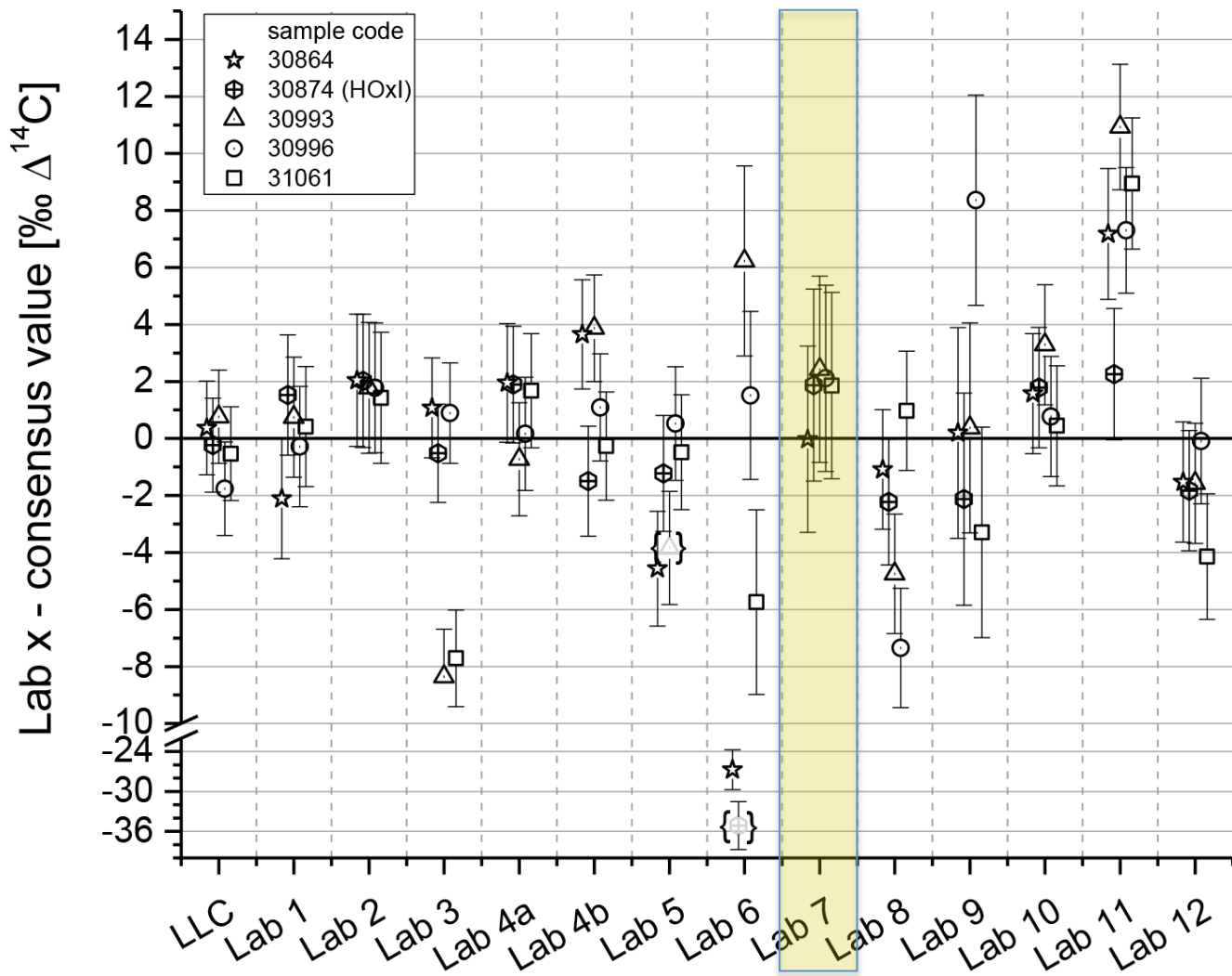


Fig. 2: Summary of all ICP results. The difference for each sample to the consensus value based on 10 labs is shown. Labs 3, 6 and 11 have been excluded from calculation of the consensus value 3 (compare also red. X2 vs. the median in Table 4 for those labs). The measurements in brackets from 4 Lab 5 and 6 are subject to sample handling problems (compare Table 3). 5

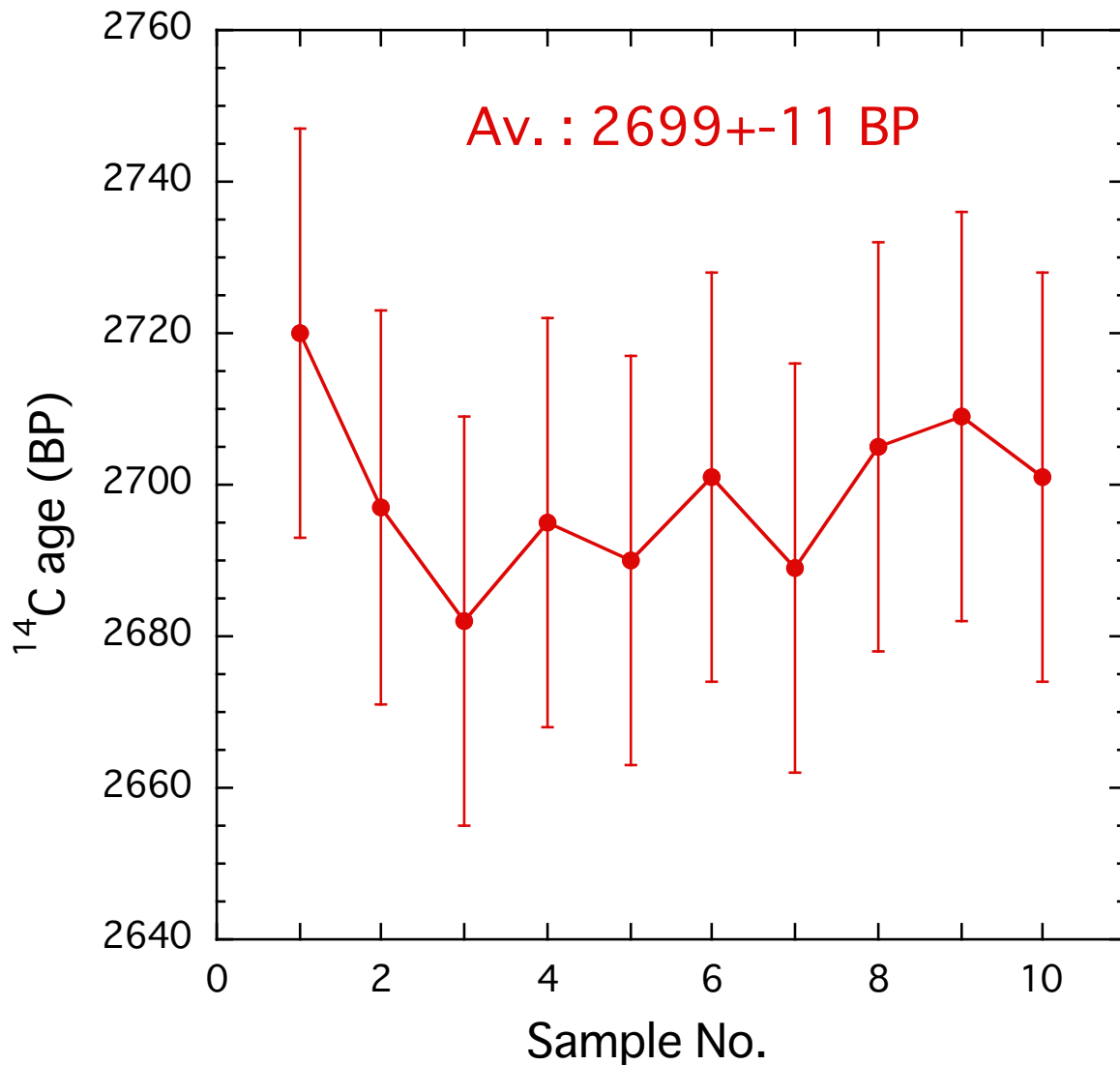


今後の検討課題

- (1) 他流試合(国際比較への参加)
- (2) 正確度への苦悩
- (3) ^{14}C バックグラウンドの怪
- (4) ^{14}C 濃度の誤差を0.1%以下へ

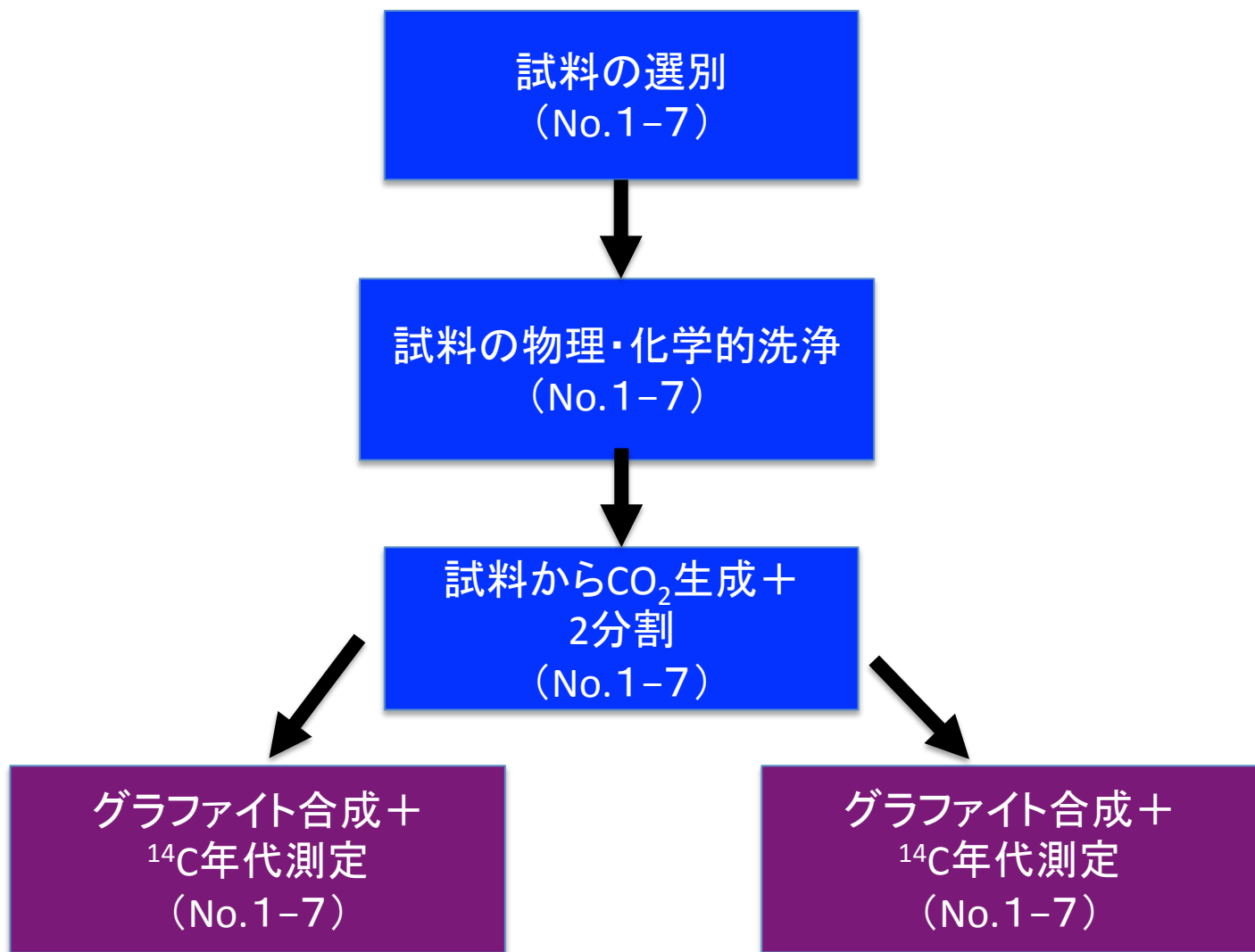
北海道生漕2遺跡のクルミ殻集積層

Reproducibility of ^{14}C ages for 10 chestnut fragments collected at Namabuchi-2 site, Hokkaido Prefecture

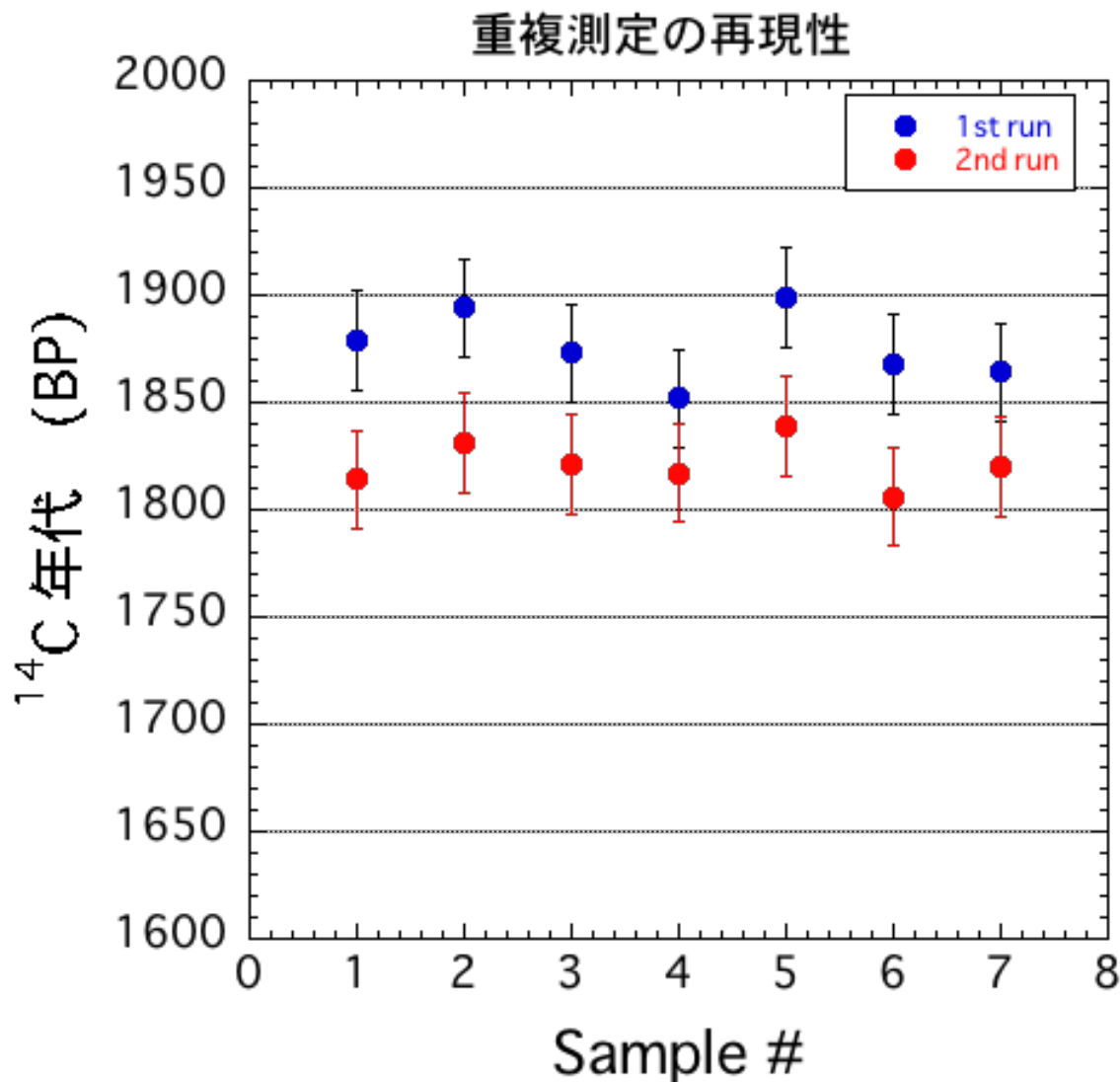


再現性は
非常によい

2分割したCO₂からグラファイト合成

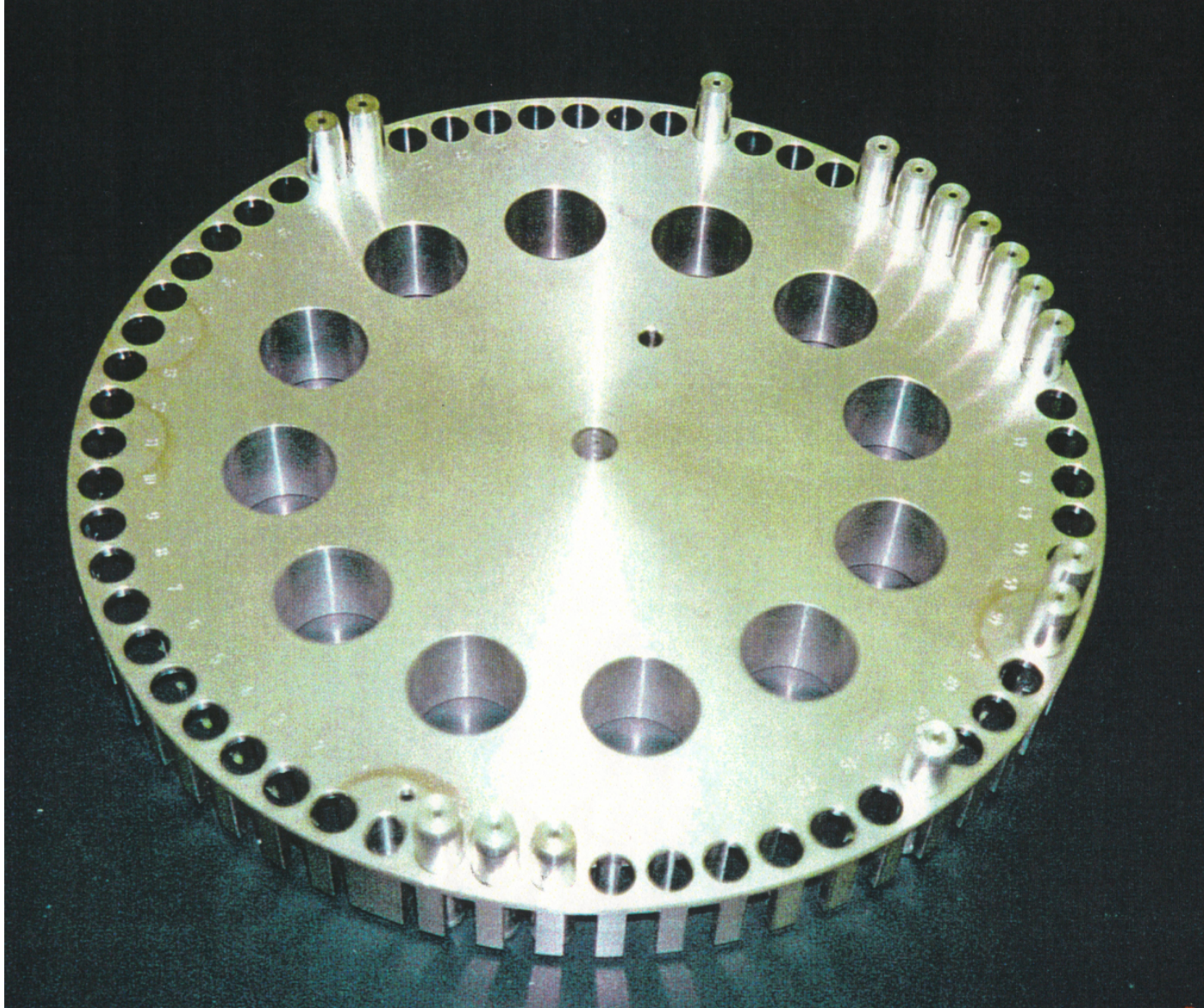


2分割したCO₂の¹⁴C年代測定の実現性 (2号機)



ターゲット ホイール

(59個のグラファイトターゲットが組み込まれる)



^{14}C 濃度既知試料によるクロスチェック

測定条件:

標準体1 (HOxII: NBS-new): 6個

$$A_{\text{abs}}(\text{HOxII}) = 0.7459 \times A_{\text{HOxII}} \times \left\{ \frac{(1-25/1000)^2}{(1+\delta^{13}\text{C}_{\text{HOxII}}/1000)^2} \right\} \times \exp[\lambda(t_m-1950)]$$

標準体2 (HOxI: NBS-old): 2個または4個

チェック項目:

それぞれの標準体から算出される「標準 ^{14}C 初期濃度」の調和性

$$A_{\text{abs}}(\text{HOxII}) = 0.7459 \times A_{\text{HOxII}} \times \left\{ \frac{(1-25/1000)^2}{(1+\delta^{13}\text{C}_{\text{HOxII}}/1000)^2} \right\} \times \exp[\lambda(t_m-1950)]$$

$$A_{\text{abs}}(\text{HOxI}) = 0.95 \times A_{\text{HOxI}} \times \left\{ \frac{(1-19/1000)^2}{(1+\delta^{13}\text{C}_{\text{HOxI}}/1000)^2} \right\} \times \exp[\lambda(t_m-1950)]$$

$$A_{\text{abs}}(\text{HOxII})/A_{\text{abs}}(\text{HOxI}) = 1.00 ?$$

^{14}C 濃度既知試料によるクロスチェック

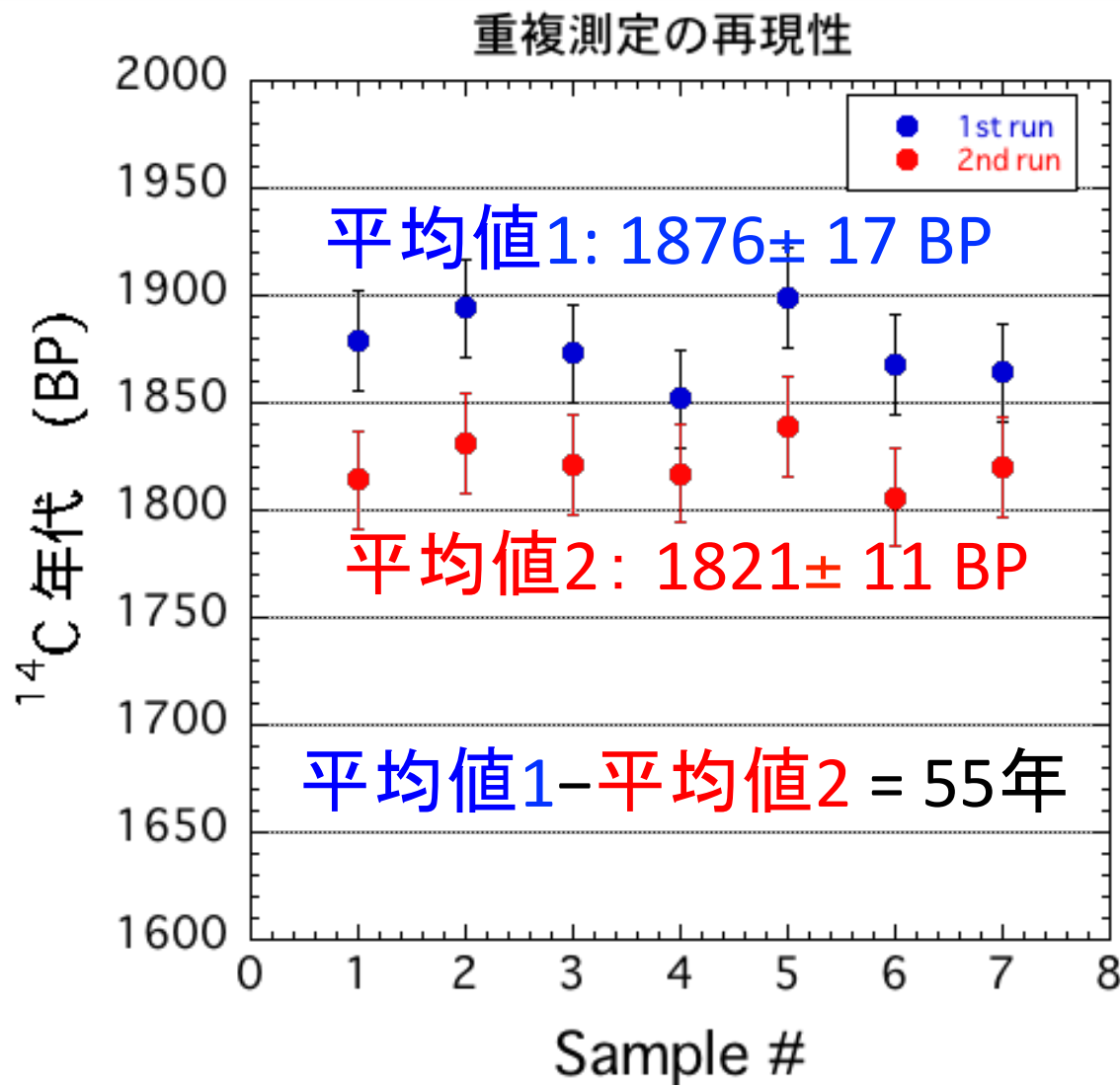
Wheel-1の測定:

$$A_{\text{abs}}(\text{HOxII})/A_{\text{abs}}(\text{HOxI}) = 1.0002 \pm 0.0055$$

Wheel-2の測定:

$$A_{\text{abs}}(\text{HOxII})/A_{\text{abs}}(\text{HOxI}) = 0.9998 \pm 0.0039$$

2分割したCO₂の¹⁴C年代測定の実現性 (2号機)



* 個々の測定の実差は、
±23年

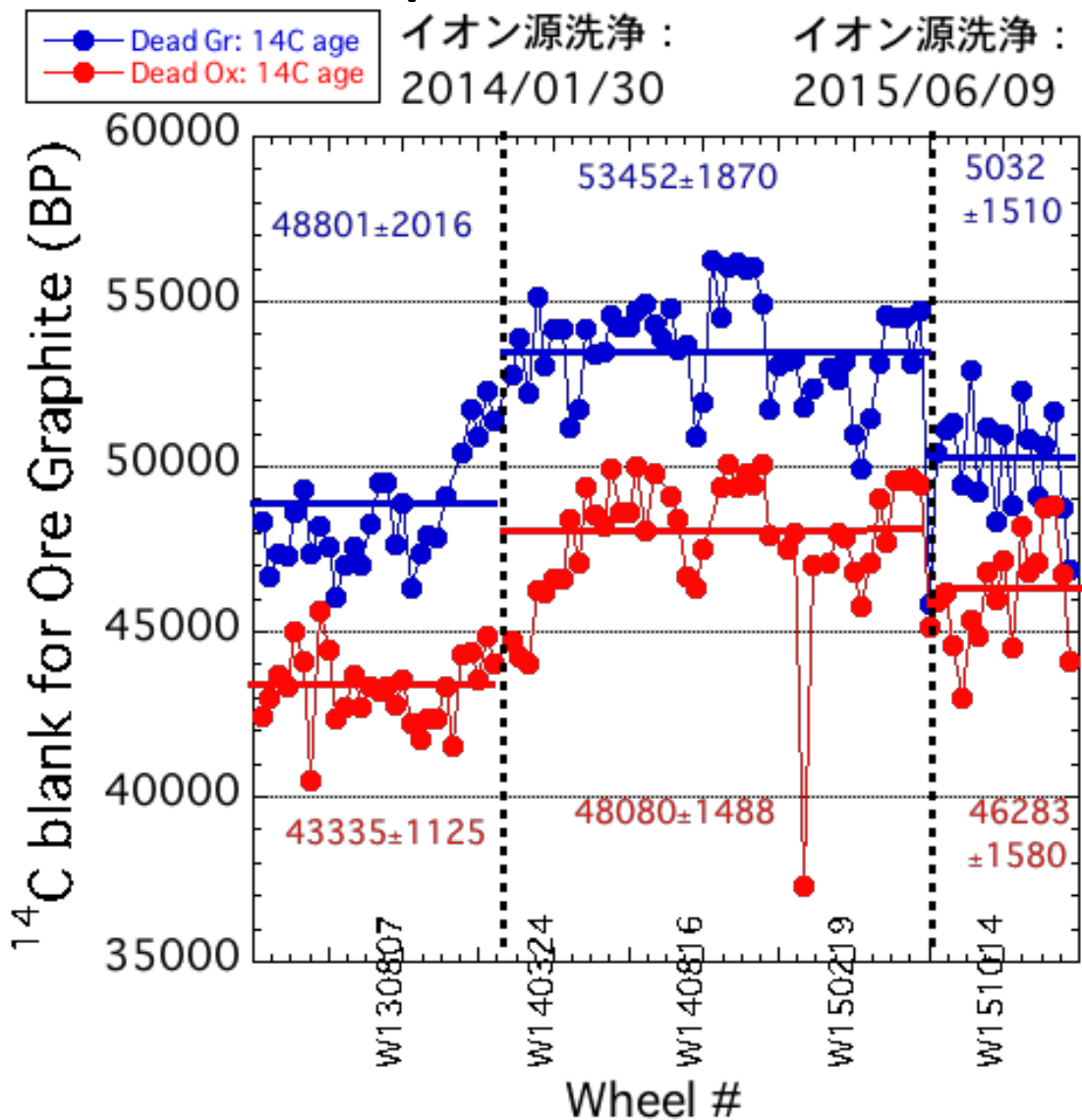
* ばらつきの範囲を
2標準偏差に取ると、

$$17 \times 2 + 11 \times 2 = 56 \text{年}$$

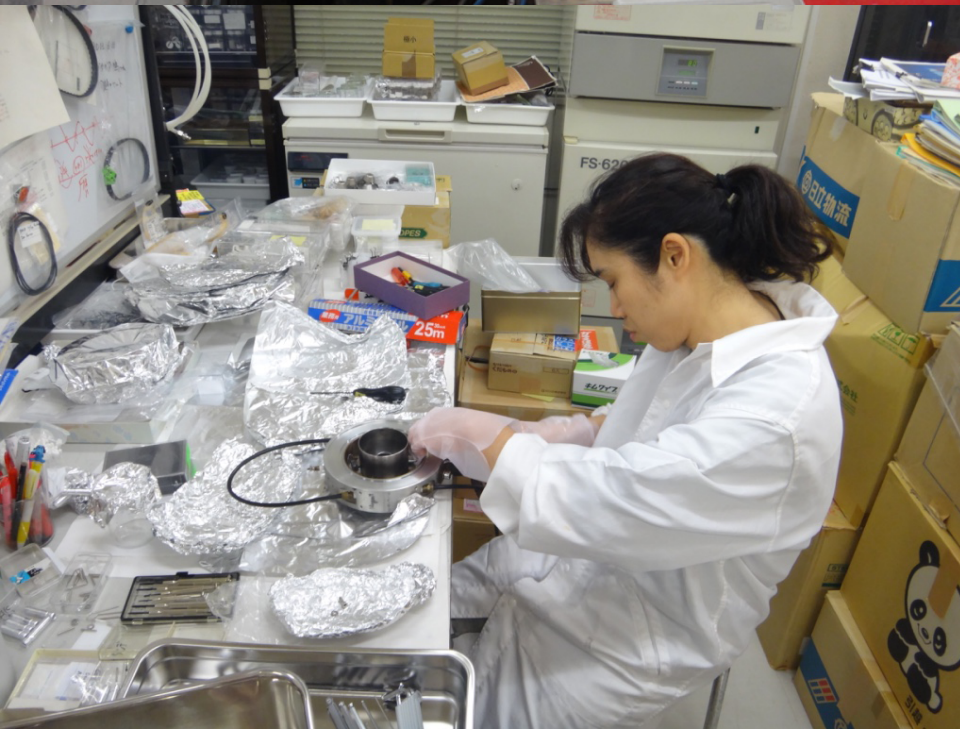
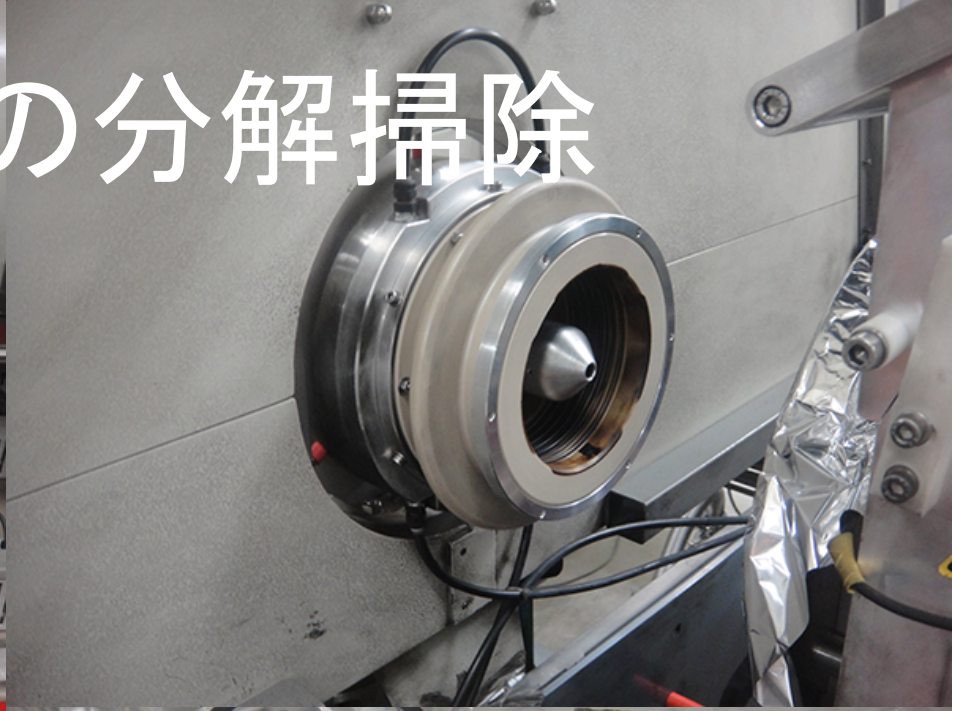
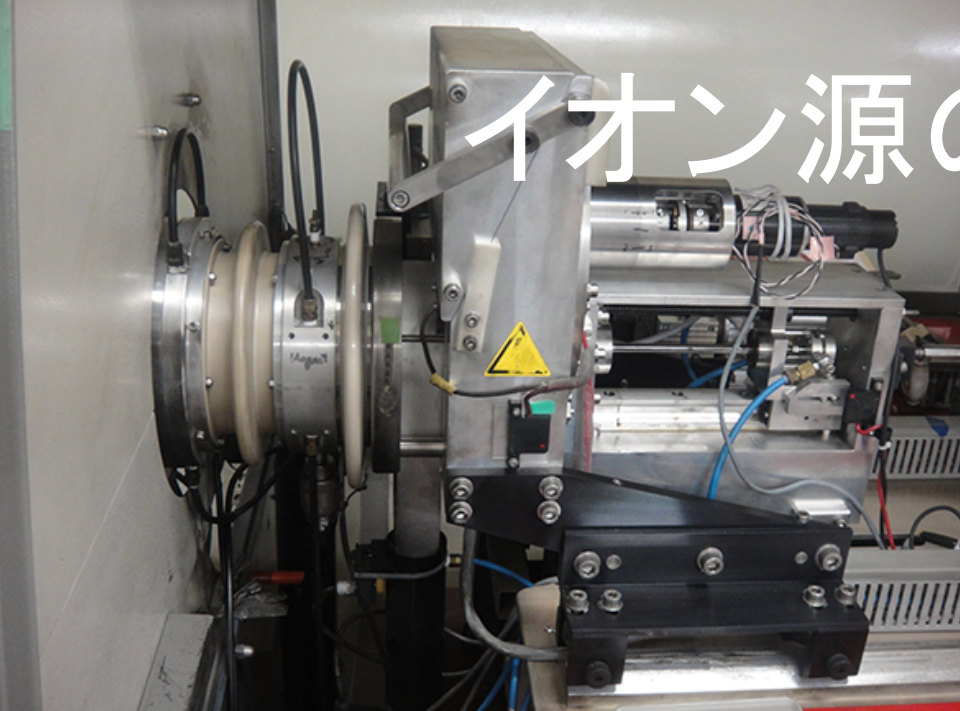
今後の検討課題

- (1) 他流試合(国際比較への参加)
- (2) ^{14}C バックグラウンドの怪
- (3) 正確度への苦悩
- (4) ^{14}C 濃度の誤差を0.1%以下へ

^{14}C Blankの経年変動(名大AMS) (2号機)



イオン源の分解掃除



^{14}C バックグラウンドの怪

1. イオン源以降のビームラインは無関係

2. イオン源の問題

- Cs ----- 同じロット(製造番号, 製造日)を使っている.
- アイオナイザー依存? (交換している)
- 微妙なアライメント(アイオナイザーの組み立て位置)の違い?

東京パミスの ¹⁴C年代:

52,310

±360BP

*C-Ag mix

地質学雑誌,
98-9,
(1992)905

第1表. 東京軽石流堆積物中の炭化木片の ¹⁴C 濃度と ¹⁴C年代値. 年代値の算出条件や誤差については本文参照のこと.

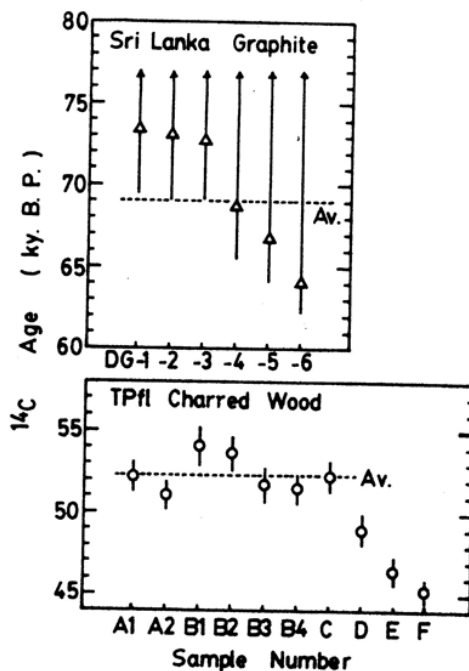
試料番号	試料	Sample RAD 1950	誤差 (1σ)	¹⁴ C年代値 (y. B. P.)	誤差 (1σ)	測定コード番号
HATA-A-1	木炭	0.00151±0.00018		52,210±	970	NUTA-1527
HATA-A-2	木炭	0.00173±0.00018		51,090±	830	NUTA-1606
HATA-B-1	木炭	0.00120±0.00018		54,060±	1,190	NUTA-1528
HATA-B-2	木炭	0.00125±0.00015		53,700±	970	NUTA-1607
HATA-B-3	木炭	0.00159±0.00020		51,780±	1,020	NUTA-1536
HATA-B-4	木炭	0.00164±0.00016		51,560±	790	NUTA-1609
ENDO-C	炭化植物	0.00150±0.00018		52,230±	950	NUTA-1610
ENDO-D	炭化植物	0.00225±0.00028		49,000±	990	NUTA-1525
ENDO-E	炭化植物	0.00308±0.00032		46,480±	850	NUTA-1612
ENDO-F	炭化植物	0.00357±0.00031		45,280±	710	NUTA-1613
上から7試料の平均値		0.00149±0.00007		52,310±	360	
上から6試料の平均値		0.00149±0.00007		52,320±	390	

第2表. Sri Lanka 産の鉱物起源黒鉛の ¹⁴Cバックグラウンド(¹⁴C濃度)と見かけの ¹⁴C年代値.

試料番号	試料	Sample RAD 1950	誤差 (1σ)	みかけの ¹⁴ C年代値*	測定コード番号
DG-1	黒鉛	0.000107±0.000053		73,490+∞/-4,020	NUTA-1526
DG-2	黒鉛	0.000112±0.000056		73,110+∞/-4,020	NUTA-1535
DG-3	黒鉛	0.000117±0.000052		72,760+∞/-3,600	NUTA-1523
DG-4	黒鉛	0.000192±0.000079		68,750+∞/-3,290	NUTA-1608
DG-5	黒鉛	0.000246±0.000082		66,770+∞/-2,690	NUTA-1611
DG-6	黒鉛	0.000341±0.000083		64,170+∞/-1,950	NUTA-1605
平均値		0.000193±0.000030		69,040+∞/-1,220	

*)黒鉛の見かけの年代値は, 測定可能な古い年代の限界を推定する指標となる. 黒鉛の真の年代値は統計誤差以上に古いはずであり, 古い側の誤差は+∞とした.

1号機の 利用



第3図. TPF1 中の炭化木片試料の ¹⁴C年代値(丸印)および鉱物黒鉛の見かけの¹⁴C年代値(三角印).

DKP前後の¹⁴C年代

坂本亨・中村俊夫(1993)

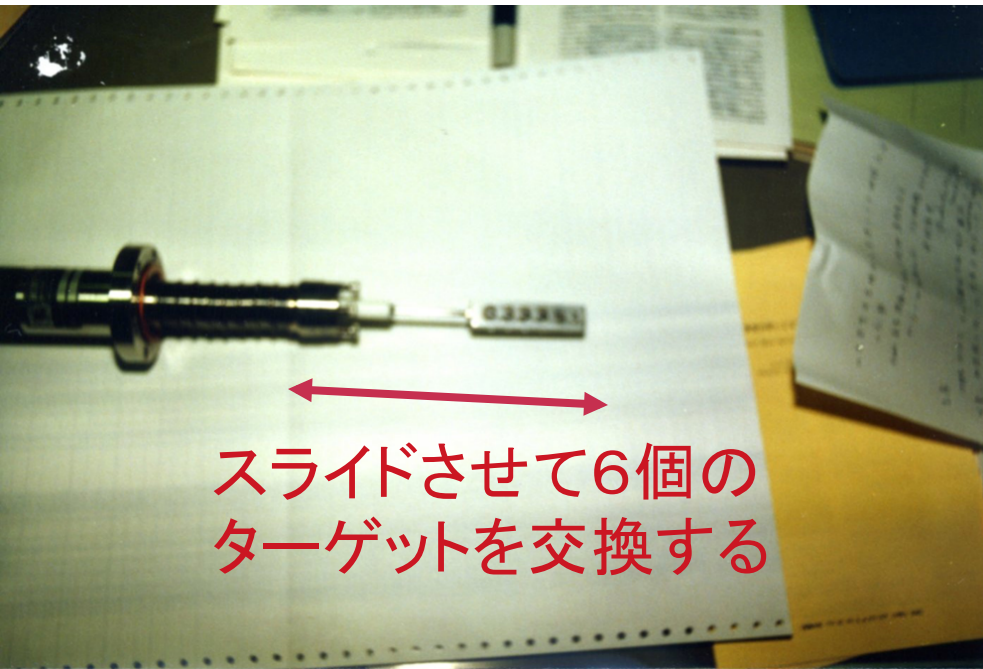
1号機の
利用

表1 DKP層準前後から産出した材化石のタンデトロン¹⁴C年代

Tandetron ¹⁴C ages of wood materials yielded from the horizons near DKP

三瓶山 Mt.Sanbe	大山 Mt.Daisen	御岳山 Mt.Ontake	野尻湖 Lake Nojiri	関東 Kanto
		kmf 木曾川泥流堆積物 ②49850±420	下部野尻湖層Ⅲの基底部 ①49410±970	
Sof 大田火砕流堆積物 三瓶雲南軽石層 SUn	大山倉吉軽石層 DKP		(キゴマ)	
		ks 草木谷火山噴出物 ④53920±970 53930±870		③52310±360 東京軽石流堆積物 TPfl

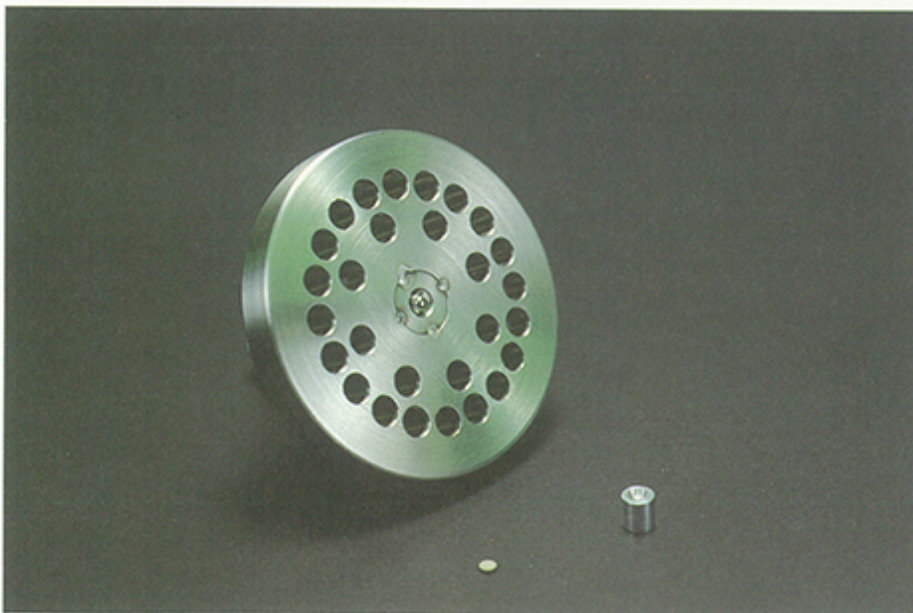
C-Agターゲットと試料交換 (1983～1992)



1号機イオン源の改造 (AD1993～)



自動試料交換装置
コンピューター制御により、自動的に測定試料を交換する。



加速器質量分析用のC-Agペレットターゲット
数ミリグラムの炭素を用いて作ったC-Agペレットターゲット（直径3mm、厚さ2mm）を右側のアルミニウム製のカップ内に入れ、円盤状の試料ボード（ターゲットが28個セットできる）に固定して加速器質量分析計のイオン源に装填する。

1号機の ^{14}C
blank:

イオン源の
改造で,
1桁上昇

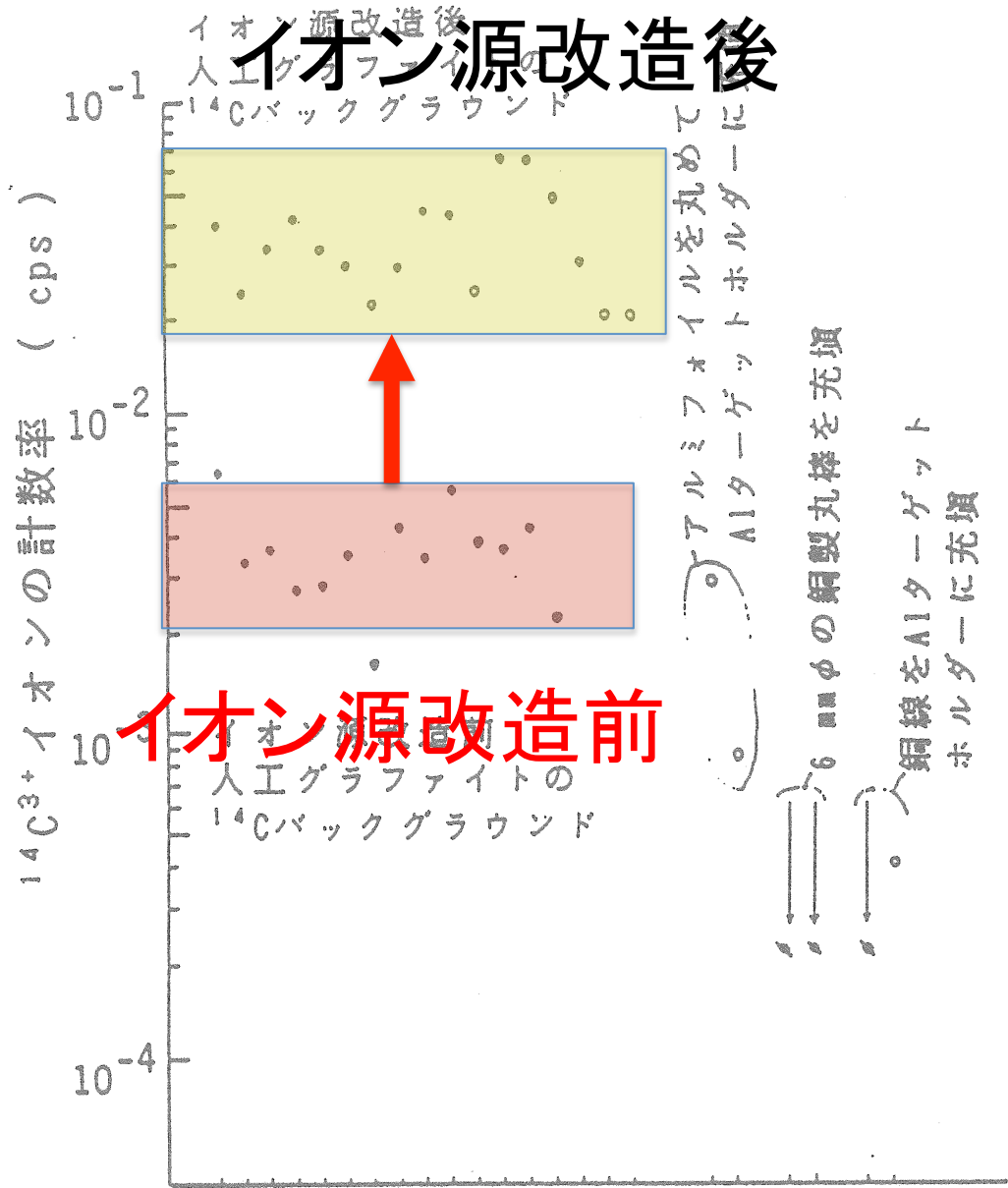


図5. Deadグラファイトを用いて推定した
タンデロン分析計の ^{14}C バックグラウンド

今後の検討課題

- (1) 他流試合(国際比較への参加)
- (2) ^{14}C バックグラウンドの怪
- (3) 正確度への苦悩
- (4) ^{14}C 濃度の誤差を0.1%以下へ

^{14}C 濃度の誤差を0.1%以下へ

(1). AMS-2号機の現状:

* ^{14}C 計数を増やし、統計誤差を小さくしたい

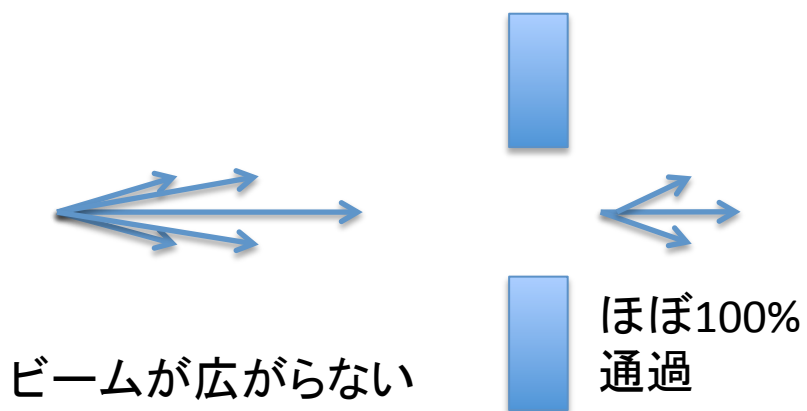
ビーム強度を大きくすると、測定される $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比がばらつく

=>

ビームが広がって、ビームのパイプに当たって、削られる確率が増える。

イオンビーム強度とビームの広がり

ビーム
スリット

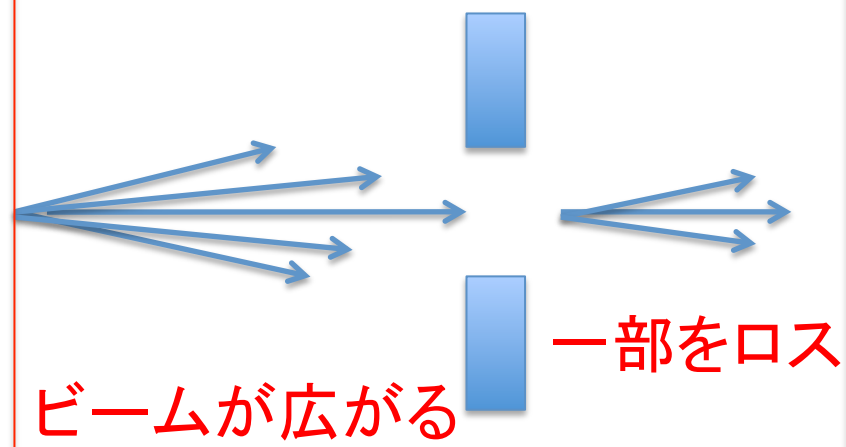


ビームが広がらない

ほぼ100%
通過

ビーム強度: 弱い

ビーム
スリット



ビームが広がる

一部をロス

ビーム強度: 強い

^{14}C 濃度の誤差を0.1%以下へ

1. AMS-2号機の現状:

* ^{14}C 計数を増やし、統計誤差を小さくする。

ビーム強度を大きくすると、測定される $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比がばらつく

=>

ビームが広がって、ビームのパイプに当たって、削られる確率が増える。

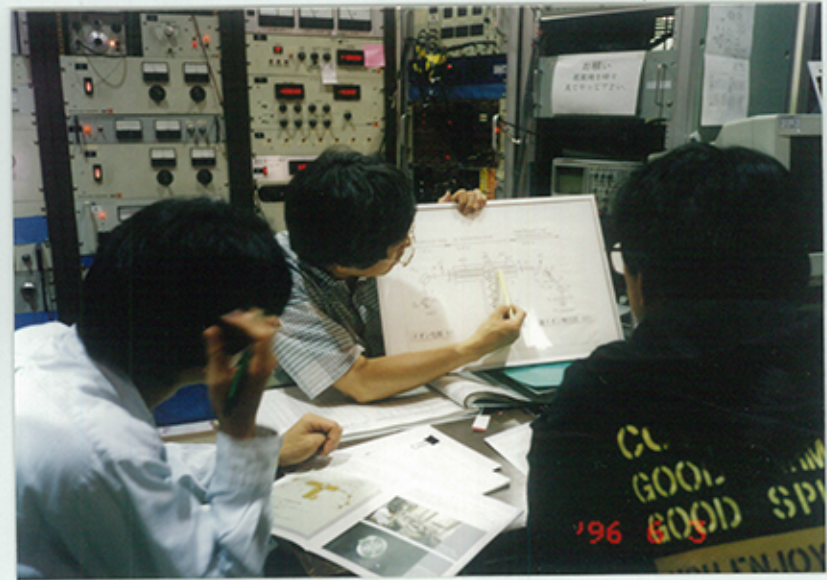
AMSの設計 => 改良されたAMS装置が必要

今後の検討課題

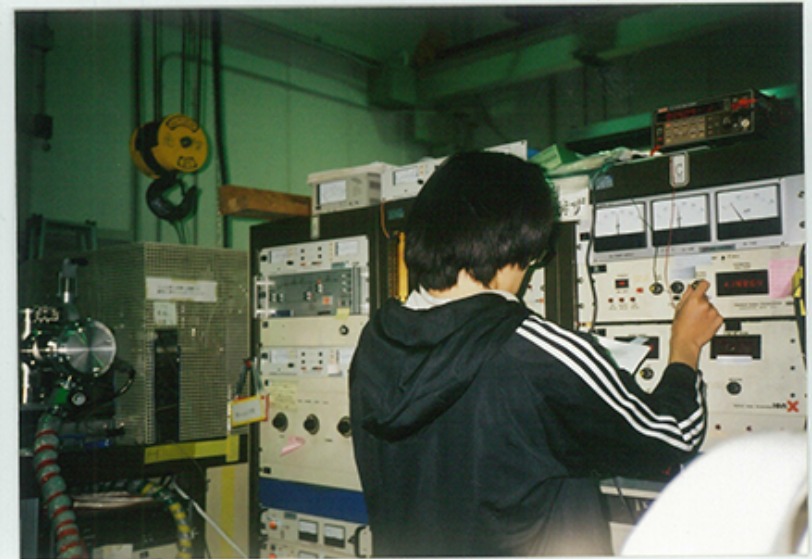
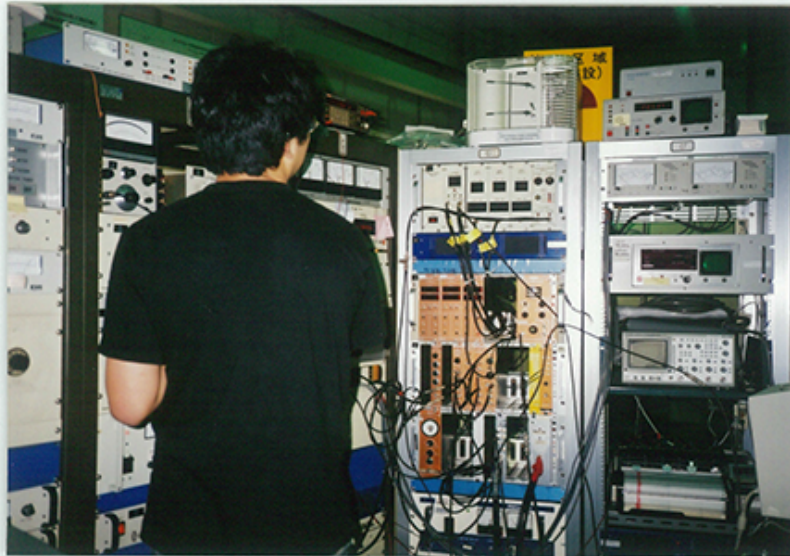
- (1) 他流試合(国際比較への参加)
- (2) ^{14}C バックグラウンドの怪
- (3) 正確度への苦悩
- (4) ^{14}C 濃度の誤差を0.1%以下へ

1号機の運転講習会

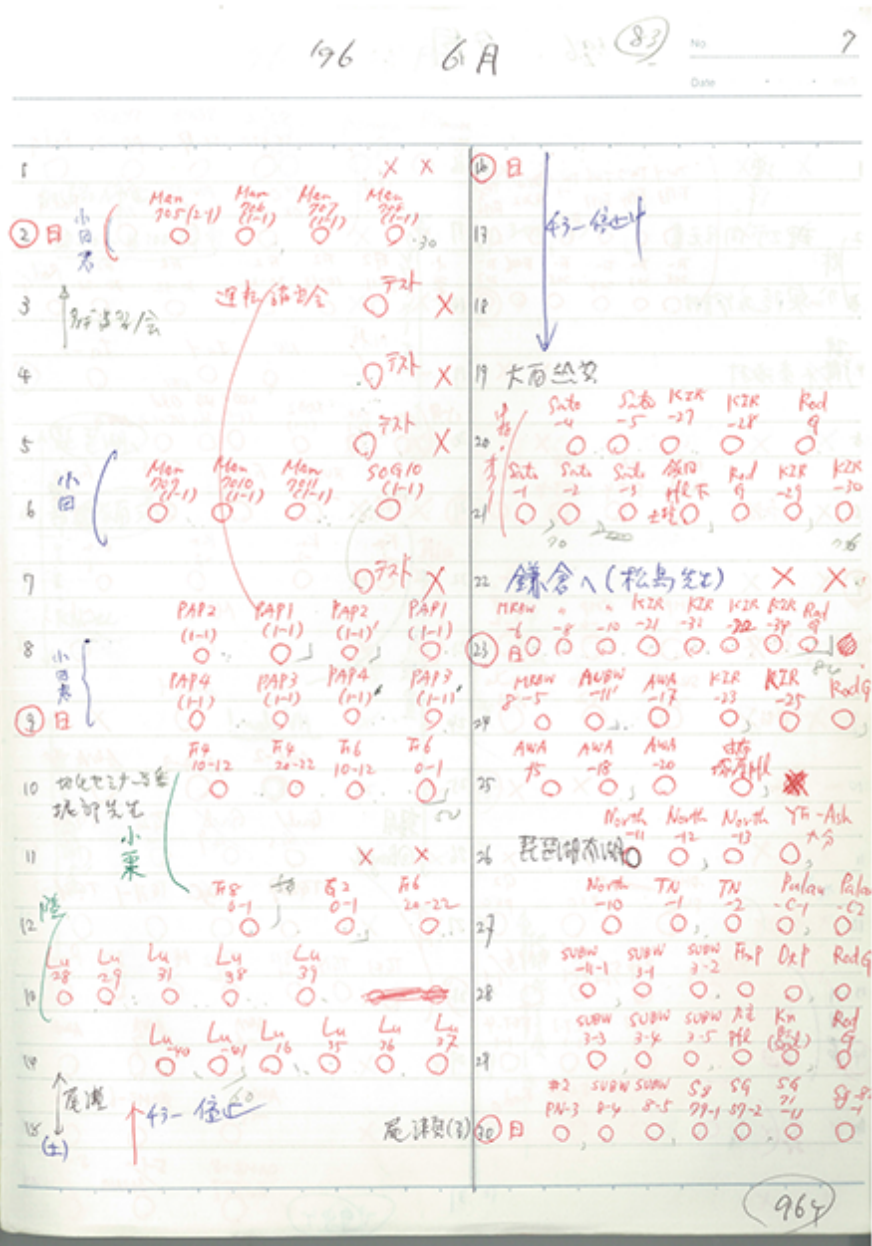
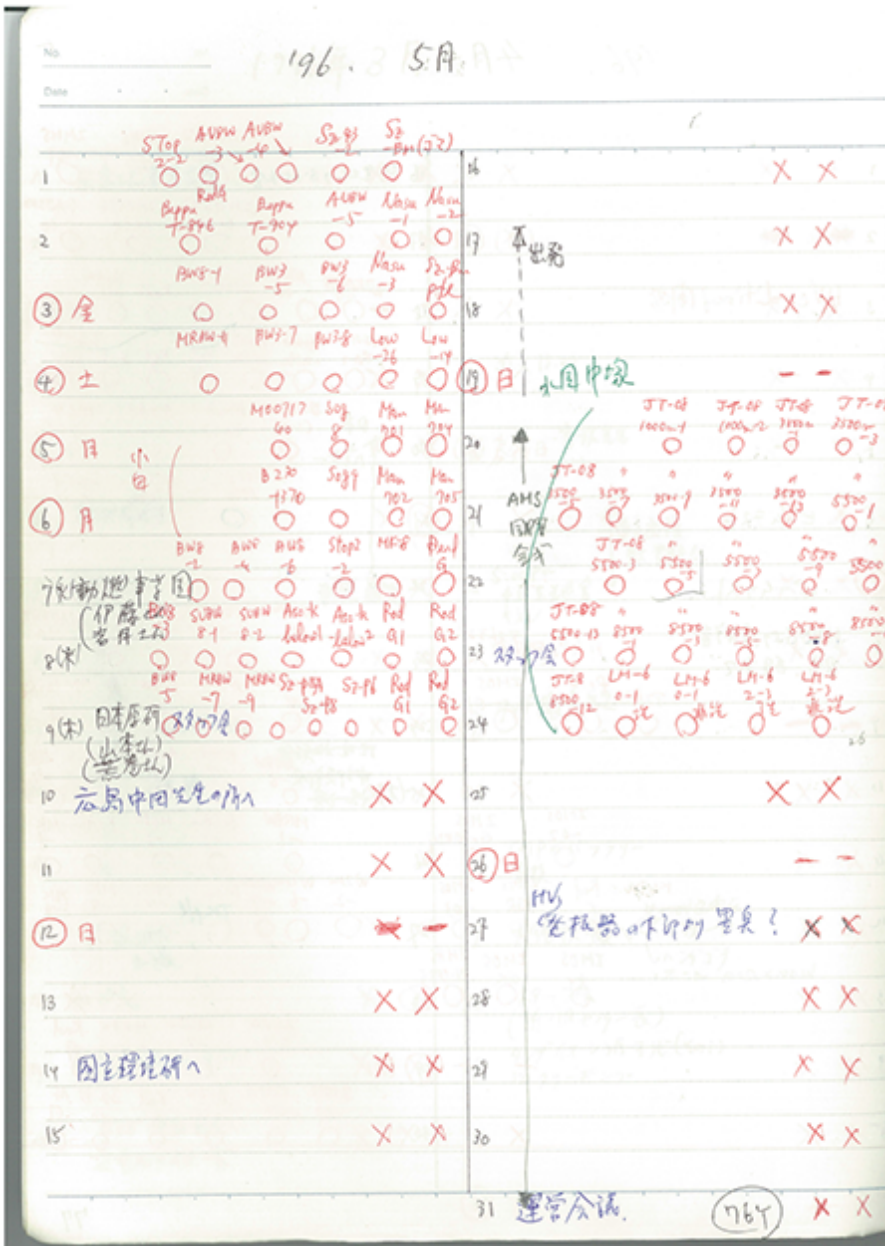
1号機の運転講習会(1996年6月)



1号機の運転講習会



タンデ1号機による測定(1996年5-6月)



「おタンデ病」の話

1. 家庭を犠牲にして、「タンデ」にのめり込む、一地方の病気(?)。

日本の首都では、「おMALT病」も流行っているという。

タンデ1号機による測定(1996年9-10月)

No. 196 9月

Date

①

②

③

④

⑤ Kretschmer

⑥

⑦

⑧

⑨ 岡田理境研

⑩

⑪

⑫

⑬

⑭

⑮

⑯

⑰

⑱

⑲

⑳

㉑

㉒

㉓

㉔

㉕

㉖

㉗

㉘

㉙

㉚

㉛

㉜

㉝

㉞

㉟

㊱

㊲

㊳

㊴

㊵

㊶

㊷

㊸

㊹

㊺

㊻

㊼

㊽

㊾

㊿

No. 196 10月

Date

①

②

③

④

⑤

⑥

⑦

⑧

⑨

⑩

⑪

⑫

⑬

⑭

⑮

⑯

⑰

⑱

⑲

⑳

㉑

㉒

㉓

㉔

㉕

㉖

㉗

㉘

㉙

㉚

㉛

㉜

㉝

㉞

㉟

㊱

㊲

㊳

㊴

㊵

㊶

㊷

㊸

㊹

㊺

㊻

㊼

㊽

㊾

㊿

タンデ2号機による測定(2015年1-2月)

No.	Date	15.1	15.2
1	Batch 150101A1	16	Batch 150116A1
2	Batch 150102A1	17	Batch 150117A1
3	Batch 150103A1	18	(株名) T&A Wheel 150119
4	-	19 3者会 (箱詰め)	4
5	スワフ会, 3者会	20 横断線墨向等研 09-	5 ↑ 事務所 ↓ 3者会
6	-	21	Batch 150121A1
7	環境系勉強会	Batch 150122A1 戦況報告(簡)	7
8	Batch 150123A1	23	Batch 150123A1
9	Batch 150124A1	24	Batch 150124A1
10	Batch 150125A1	25 7:24 3者会	10 ↓ 延内科(率) 延内科準備委員会
11	INOVA 用紙	26 9/19 3号機(7X)	11 建図
12	株名 26	↑ 車測23号	12 ↑ 検査入試
13	Wheel 150128	↓	13 ↓ 9:00-
14	Batch 150129A1	↑ 能率 算A's 2013(中村), INOVA 奇工事 (再査)	14
15	Batch 150130A1	20	15
		21	2/28 (土) INOVA-19 早期参加登録 (60,000円) 2/3 J&U meeting 2015 早期投稿×4 (3000円/14) ~ 修正可 2/18迄 2/13 (金) 19:00 20 成績入力期間 2/24 (水) 業績報告書 原稿×4 (2/25-27 編45分), 2/28 入稿

「おタンデ病」の話

1. 家庭を犠牲にして、「タンデ」にのめり込む、
一地方の病気(?)。

中村家の妻：家庭とタンデとどちらが大切なの！

中村家の夫：パチンコにのめり込んでいるわけでは
ないのだから！ （許して？）

タンデ2号機による測定(2016年1-2月)

No.	Date	Event	Batch	Notes
1	2016.1.11	全日, 自宅に3C	HV trouble	
2		出社(2.4c.7)		
3				
4				
5				
6		環境教授会・小倉さん訪問		
7				
8		RCAN 2016 2016.1.23		水野画科
9		RCAN 2016 2016.1.23		RCAN 2016 2016.1.23
10		RCAN 2016 2016.1.23		RCAN 2016 2016.1.23
11		RCAN 2016 2016.1.23		RCAN 2016 2016.1.23
12				
13				
14		教授会(18:00-18:30) IS66		
15				
16	2016.2.1	重研核工学部		
17				
18				
19				
20				
21		散髪(4450)		
22				
23				
24				
25				
26				
27				
28				
29				
30				
31				

Jan/31 radiocarbon paper submission limit

Feb 19 radiocarbon paper submission limit
 Feb 26 (8) Goldschmidt 2016 申込X印
 2/19 (金) 池田さん 報告書

AMS研究協会

1. 発足：2001年1月12日（第3回AMSシンポジウムにて**第1回総会開催**）
2. 現会員数（～136名）
3. これまでのシンポジウムなどの**開催数：24回**
（2014年度合同大会を入れて）

AMS研究協会が開催してきたシンポジウム

名 称	開催日	開催地	実質的主催者
第1回AMSシンポジウム	1997年6月2-3日	千葉県エアロビクスセンター	永井尚生
第2回AMSシンポジウム	1998年11月	東京大学山上会館	小林紘一
NIES AMS国際ワークショップ	2000年1月6-8日	国立環境研究所	柴田康行
第3回AMSシンポジウム	2001年1月12-13日	東京大学農学部一条ホール	小林紘一
第4回AMSシンポジウム	2002年1月12-13日	名古屋大学豊田講堂会議室	中村俊夫
Pre-AMS-9国際会議	2002年9月7日	東京大学	永井尚生・松崎浩之
AMS-9国際会議	2002年9月9-13日	名古屋大学豊田講堂	中村俊夫
第5回AMSシンポジウム	2003年1月31日～2月1日	名古屋大学シンポジオンホール	中村俊夫
第6回AMSシンポジウム	2003年12月13-14日	東京大学学士会館分館	松崎浩之
第7回AMSシンポジウム	2005年1月13-14日	京都大学大学院理学研究科物理学教室・タンデム加速器棟	田澤雄二
第1回EA-AMS国際シンポジウム	2006年1月26-27日	筑波大学総合研究B棟公開講義室	長島泰夫・笹 公和
第8回AMSシンポジウム	2006年1月27-29日	筑波大学総合研究B棟公開講義室	長島泰夫・笹 公和
第9回AMSシンポジウム	2006年10月20-21日	東京大学武田ホール	松崎浩之
第10回AMSシンポジウム	2008年3月7-8日	東京大学武田ホール	松崎浩之
第11回AMSシンポジウム	2009年1月14-15日	名古屋大学野依記念学術交流会館	中村俊夫
第12回AMSシンポジウム	2010年5月23-24日	群馬県桐生市市民文化会館	伊藤 茂
第13回AMSシンポジウム	2011年1月27-28日	山形市キャッスルホテル	門叶冬樹
第4回EA-AMS国際シンポジウム	2011年12月16-18日	東京大学武田ホール	松崎浩之
第14回AMSシンポジウム	同上	同上	松崎浩之
第15回AMSシンポジウム	2013年3月9-10日	名古屋大学環境総合館	中村俊夫
第16回AMSシンポジウム	2014年3月19-20日	東京大学大気海洋科学研究所	横山祐典
JpGU特別AMSセッション	2014年5月1日	神奈川県パシフィコ横浜	中村、松崎、笹、永井、南
第17回AMSシンポジウム	2015年3月2-3日	筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門	笹 公和
第18回AMSシンポジウム	2016年3月3-4日 予定	東京大学総合研究博物館	米田 穰

日本のAMS 施設

11 AMS facilities
(13 accelerators in future)

Tandetron: HVEC
Tandem: NEC

Yamagata Univ.
Tandem(500kV)

Paleo Labo Co., Ltd.
Tandem (500 kV): ^{14}C

JAEA Mutsu
Tandetron (3 MV): ^{14}C & ^{129}I

JAEA Tono
Tandem (5 MV): ^{10}Be & ^{14}C

Institute of Acceleratory
Analysis Ltd.
Tandem (3 MV): ^{14}C
Tandem (500 kV): ^{14}C

Nagoya University
Tandetron (3 MV): ^{14}C

NIES-TERRA
Tandem (5MV): ^{14}C & ^{129}I
Tandem (500 kV): ^{14}C

University of Tsukuba
Tandem (6 MV): Multi-AMS
 ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{41}Ca , ^{36}Cl , ^{129}I

Kashiwa, The University of Tokyo
SSAMS (250 kV): ^{14}C

Museum, The University of Tokyo
Tandem (500 kV): ^{14}C

MALT, The University of Tokyo
Tandem (5 MV): Multi-AMS
 ^{10}Be , ^{14}C , ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{129}I

超強力雨男：小林AMS研究協会会長

国際会議AMS-9の晚餐会（明治村博物館）
でも、雨が降った．．．．．今日は？



名古屋大学における 中村俊夫の研究の総括:

1. 全てはAMSとの偶然の出会い
から始まった

2. 成果を出しなさい(中井信之教授)
・学内・全国共同利用の推進
・「おタンデ病」に罹った

3. 自身の研究
AMSで出来る研究を探す

4. 後継者

火山噴火史 => 奥野 充さん

環境解析 => 南 雅代さん,
高橋 浩さん

古文化財 => 小田寛貴さん

考古学 => 西本 寛さん

中近東考古学 => 大森貴之さん

大気化学 => 池盛文数さん

AMSの発展 => 北川浩之さん

名古屋大学 年代測定総合研究センター

Nagoya University Center for Chronological Research



TANDETRON 1
(35年前に導入)

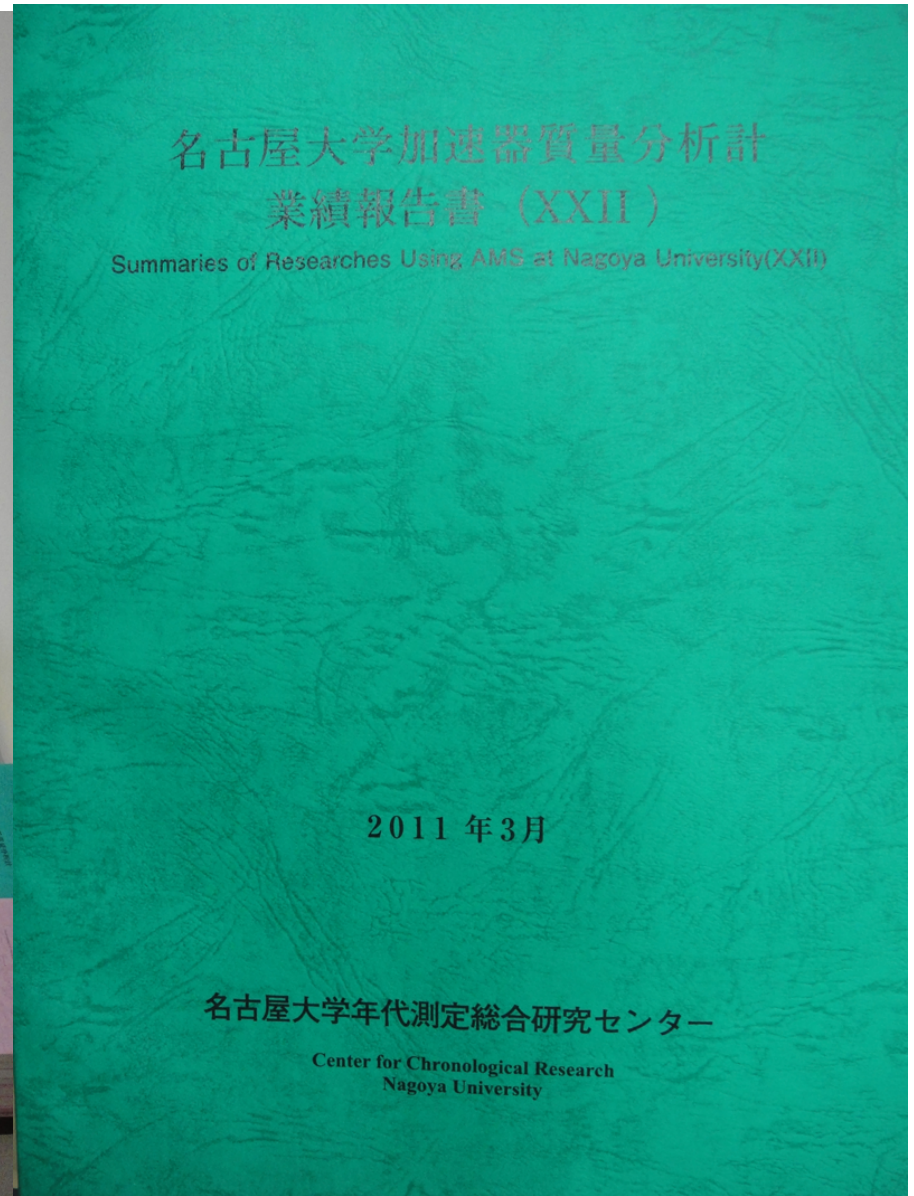


TANDETRON 2
(20年前に導入)



CHIME
(1994年
寄付受入)

年測センター一年間活動報告書(1988~2016) (中村の宝物)



名古屋大学加速器質量分析計
業績報告書 (XXII)

Summaries of Researches Using AMS at Nagoya University(XXII)

2011年3月

名古屋大学年代測定総合研究センター

Center for Chronological Research
Nagoya University

