博士論文

加速器質量分析における
新しい同重体分離技術に関する研究

三宅　泰斗

論文要旨

加速器質量分析(AMS, Accelerator Mass Spectrometry)は質量分析装置とタンデム加速器を組み合わせた分析手法である。AMS は環境中での存在度が非常に低い ^{14}C、^{10}Be、^{26}Al、^{36}Cl、^{129}I などの長半減期放射性核種の測定が可能であり、原子力分野だけでなく、考古学、地球化学等様々な分野で広く利用されている。

福島第一原子力発電所事故では、^{131}I の同位体である ^{129}I は、環境中の挙動が ^{131}I と同じであることから、事故当時の ^{131}I の分布の再構築のために積極的に測定が行われてきた。一方で、^{36}Cl や ^{236}U などは ^{129}I と同様に事故により環境中に漏洩したと予測されるが、測定の困難さからこれまでほとんど報告がされていない。しかしながら、事故事象の解明や事故の環境への影響評価において重要な核種であると考えられ、AMS による測定が必要である。

事故の影響評価だけでなく、福島第一原子力発電所の廃止措置の際にもこれらの長半減期核種の分析は重要な意味を持つ。廃棄物の適切な処分には核種分析による性状把握が必須であるが、特に β 線を放出する長半減期核種は測定に長時間必要であるか、測定施設の問題やまだ測定法が確立されていないものも含まれるため、測定が困難である。これらの中でも ^{59}Ni や ^{135}Cs などは AMS で測定可能とされている核種であり、測定が可能になれば放射性廃棄物の処分の際に大きく貢献できるものと考えられる。また、いずれも長半減期核種であるため、地球化学におけるトレーサー利用等にも活用可能であると考えられる。

これらの核種を高感度で測定するために、AMS では試料の化学処理、負イオン源利用による同重体の選択的イオン化や加速器のターミナルでの同重分子イオンの分解等が積極的に利用されている。しかし、質量電荷比(M/q)が同じイオンについては電磁石や静電偏向器により分離することができない。そのため、AMS ではタンデム加速器によりイオンビームを数十 MeV まで加速することにより、目的の核種と同重体核種での、イオンのエネルギー損失や平衡電荷分布のような物質との相互作用の違いを利用して同重体の分離が行われる。これらはイオンの原子核中の陽子数の違いに起因し、質量数の大きい核種になるほど、測定対象核種と同重体核種の相互作用の違いが相対的に小さくなり分離が困難になる。

近年、陽子数の違いだけでなく、目的核種と同重体核種の電子配置の違い、

すなわち電子親和力(EA; Electron affinity)の違いを利用した同重体の分離の研究が進められており、その一つの技術にレーザー光脱離法(LPD, Laser photo-detachment)がある。LPD では、レーザーにより負イオンに原子の EA 以上のエネルギーを与えることによって、光脱離反応を起こし負イオンを中性化する。目的核種の EA の方が同重体核種の EA より大きい場合、その間のエネルギーのレーザーとイオンビームを反応させることで、同重体核種のみを選択的に中性化し分離できる。LPD では陽子数の違いではなく EA の違いによって同重体の抑制が行われるため、これまで測定できなかった ^{135}Cs や ^{182}Hf などの質量数の大きい核種の測定が可能になり AMS の応用範囲をさらに広げることができると考えられる。既に測定可能な核種についても、LPD と他の分離手法を組み合わせることで検出感度の向上が期待される。

以上から、本研究では福島第一原子力事故の事象解明や環境影響評価に向けた ^{36}Cl をはじめとする難測定核種の測定と、AMS における新しい同重体分離手法である LPD の開発による AMS の応用領域の拡張を目的とした。研究は従来法による実サンプルの測定と、新しい手法のための装置の設計・製作及び装置の性能評価のためのテストベンチビームラインの構築に分けて実施した。実サンプルの測定では難測定核種として ^{36}Cl を選択し、従来法であるガス充填型電磁石とガスカウンターを組み合わせて、福島第一原子力発電所周囲で採取された土壌中の ^{36}Cl の測定を試みた。

LPD における同重体抑制効果を高めるためには、負イオンを減速しレーザーとの相互作用時間を増加させることが重要である。装置の製作では、そのための負イオン減速チャンバーを設計・製作し、構築したテストベンチビームラインに実装した。装置におけるイオンビームの透過効率を評価し、シミュレーションによる計算と比較することにより、設計の妥当性を確かめた。

本研究は 6 章から構成される。

第 1 章では研究の背景として、AMS の技術的概要、福島第一原子力発電所事故への応用研究、AMS における同重体分離について述べた上で、本研究の目的と構成を述べる。

第 2 章では、福島第一原子力発電所事故で ^{36}Cl が環境中に漏洩したかどうか

を調べるために、原発周囲で採取された土壌中の ^{36}Cl の測定を試みた。土壌試料は 2011 年 4 月 20 日に発電所の周囲 60 km から採取されたもので、^{129}I が AMS により既に測定済みのものを用いた。原発から北西方向を中心に 16 点を選択し、AMS 測定のための前処理を行った。

^{36}Cl-AMS の測定には東京大学総合研究博物館タンデム加速器分析室(MALT; Micro Analysis Laboratory Tandem Accelerator, University of Tokyo)の AMS システムを利用した。測定の結果、16 試料のうち 10 試料から有意な ^{36}Cl の値が得られ、塩素同位体比(^{36}Cl/Cl 比)は(1.05 ± 0.60) × 10^{-12} から(2.63 ± 0.54) × 10^{-11} となった。事故前の福島第一原子力発電所周囲の土壌中の ^{36}Cl/Cl 比は 4.6 × 10^{-13} であり、事故前のバックグラウンドよりも高い ^{36}Cl/Cl 比が観測された。原子力発電所からの距離と得られた ^{36}Cl/Cl 比を比較すると、原発から 20 km 付近の 1 点を除き、距離に従って ^{36}Cl/Cl 比が減少することが確認された。同一土壌中の ^{36}Cl と ^{129}I は正の相関を示し、^{36}Cl の沈着量が高かった地点では ^{129}I の沈着量も同様に高かった。これは、ヨウ素と塩素はともにハロゲンであり、揮発性も高いため炉内から放出された後、環境中で近い挙動を示すためであると考えられる。

今回観測された ^{36}Cl から、事故により炉内の ^{36}Cl が環境中に漏洩したことが示唆された。しかしながら、処理可能な土壌試料量が限られていたことやガス充填型電磁石を使用したことによる測定効率の低下の影響により、得られた結果には 20 % ~ 60 %の比較的大きな誤差が見られた。^{36}S の干渉が大きく測定できなかった試料もあり、^{36}Cl の測定による事故の影響評価に向けて、少ない試料量で測定効率を低下させず ^{36}Cl の測定を行うために、新たな同重体抑制技術を導入した測定システムの構築が必要であることの端的な例として示された。

第 3 章ではレーザー光脱離法の中心部となる、負イオン減速チャンバーの設計・製作について説明する。設計の概要は次の通りである。負イオン減速チャンバーは主に減速部、高周波四重極部、加速部から構成される。減速部ではイオン源から引き出されたイオンビームを電場により減速する。その際に拡がろうとするビーム束をトラップするために、減速部の後には高周波四重極が設置される。さらに、四重極内に He ガスを導入することでイオンをさらに減速し、内部での滞留時間を増加させ、レーザーとの相互作用時間を伸ばす。導入した He ガスが外部に漏洩しないよう、四重極の入口と出口にアパーチャーを設置し、アパーチャーでビームを損失させないために、減速部・加速部の間にはイオン

の集束を調整するためにガイド電極を設置した。十分に減速されたイオンは、四重極内に設置されたDC電極が作る進行方向の電場により引き出され､加速部で元のエネルギーまで再加速される。

設計にはイオン光学系設計ソフトSIMION8.1を使用し、製作したチャンバーについて、チャンバー内のイオンの挙動を計算し、ガス圧を0 ~ 6 Paにした時のイオンの滞留時間と透過効率の変化を評価した。入射イオンは^{36}Cl及び^{36}Sを想定し、直径3 mm、半頂角0.3°の円錐分布、半値幅で8 eVの正規分布を仮定したエネルギー分布を持つ 46 keV のイオンビームを減速チャンバーに入射させた。この時、減速部、四重極部、加速部をそれぞれ通過したイオンを計数し、入射イオンの数と比較してイオンの透過効率を求めた。計算の結果、イオンビームの透過効率として90 %程度を実現できると予想された。^{36}Sについてはレーザーにより1/200程度まで抑制されることが計算され、この設計に基づき、実際に負イオン減速チャンバーを製作した。

第 4 章では製作した負イオン減速チャンバーの性能を調べるため、テストベンチビームラインを構築した。テストビームラインは負イオン源、電磁石、減速チャンバー、そしてスリットやファラデーカップなどのビームラインを構築する要素からなる。負イオン源で発生したイオンビームは、質量電荷比が電磁石で分析され減速チャンバーに入射する。減速チャンバー通過後、静電偏向器によって目的の核種は曲げられ、ビームラインの最後に設置されたファラデーカップで電流値として計測される。減速チャンバー前に設置されたファラデーカップの電流値と通過後のファラデーカップで得られる電流値を比較することで、イオンビームの減速チャンバー内の透過効率を評価すること可能である。減速チャンバーの電位構成については、イオンビームの減速の精密な制御ができるよう設計・構築した。

第5章では、テストベンチビームラインで^{35}Clの負イオンビームを用いて透過効率を評価し、第3章における設計の妥当性を検証した。まずはHeガス導入のための差動排気系について、設計通りの真空度の差が実現されていることを確認した。次に、減速チャンバー内の高周波四重極内に導入するイオンビームを減速しエネルギーを徐々に落としていくと、透過率は次第に落ちていくものの、単調ではなく複数のピークが観測された。この現象は、減速に伴いビーム

の節の位置が変化することにより、電極構造のジオメトリの影響で生じることを SIMION によるシミュレーションにより明らかにした。さらに、イオンビームを減速した状態でも、新たに導入したガイド電極によりレンズ構造を構成することにより、ビームの透過率が改善することを実験的にも証明した。以上により、負イオン減速チャンバーの設計の妥当性を実証した。

第 6 章は結論である。

以上をまとめると、本研究ではレーザー光脱離法の実装を目標として負イオン減速チャンバーを設計し、実際に製作し、構築したテストベンチビームラインにより設計の妥当性を確かめた。既存の施設による測定では、福島第一原子力発電所周辺で採取された表層土壌から事故により漏洩したと考えられる ^{36}Cl を検出したが、同時に試料量が限られた場合や同重体の妨害が大きい場合にはレーザー光脱離法により測定効率を稼ぎつつ検出限界を下げることの必要性が示された。

福島第一原子力発電所事故により環境中に放出された難測定核種は、本研究を含めて、これまで ^{129}I や ^{36}Cl についての報告が行われてきた。しかしながら、放出された核種には、既存の測定手法では測定が困難であるか、測定手法が確立していないものも多数存在し、事故事象の解明や環境への影響評価のために今後も継続した調査と測定手法の検討が必要である。これらの知見は福島第一原子力発電所の廃炉作業においても非常に重要になると考えられる他、長半減期核種である性質を利用したトレーサー研究などを通して、地球化学や環境化学の領域において研究を大きく進める可能性がある。本研究で得られた知見が加速器質量分析の応用範囲を拡大し、加速器質量分析が福島第一原子力発電所事故の収束を含む様々な学問領域の進展の一助になることが期待される。

目次

図目次

第１章

第２章

第３章

第 4 章

第 5 章

Appendix

表目次

第 1 章

第 2 章

第 3 章

第 4 章

第 5 章

1. 研究の背景

加速器質量分析(AMS; Accelerator Mass Spectrometry)は質量分析装置とタンデム加速器を組み合わせた分析手法である。AMS は環境中の存在度が非常に低い長半減期放射性核種の測定が可能であり、原子力分野だけでなく、考古学、地球化学等様々な分野で広く利用されている[1]。

1.1. 加速器質量分析の装置構成

質量分析の装置構成は通常、試料をイオン化するイオン源、イオンビームを質量電荷比(M/q 比)で分析するための電磁石､エネルギー電荷比(E/q 比)で分析するための静電偏向器、そして、電磁石や静電偏向器を通過したイオンを検出する検出部で構成される(Fig. 1-1)。

一方、AMS の測定システムは負イオン源、静電偏向器と入射電磁石からなる低エネルギー系、タンデム加速器、そして分析電磁石や静電偏向器、検出器からなる高エネルギー系から構成される。負イオン源で生成された負イオンビームは入射電磁石によって質量電荷比で分析され、測定したい質量電荷比の負イオンのみがタンデム加速器に入射される。タンデム加速器では入口と出口が接地電位、ターミナルと呼ばれる中央部が最高電位を持ち、ターミナルから入口と出口に向かって電場が作られる(Fig. 1-1)。負イオンビームが入射した際、まずはターミナルから入口に向かう電場によりターミナルに向かって加速される。

ターミナル部にはストリッパーガスと呼ばれる薄いガスの層があり、加速された負イオンはストリッパーガスとの衝突により電子が剥ぎ取られ、正イオンに変化する。この過程は荷電変換と呼ばれる。荷電変換後の正イオンは、今度はターミナルから出口に向かう電場により再度加速される。タンデム加速器の「タンデム」とはこの 2 段階の加速方式に由来する。タンデム加速器による加速により､入射前は数十 keV であったイオンのエネルギーは数十 MeV まで増加する。

加速器通過後に正イオンビームは分析電磁石によって分析され、入射時と同様に測定したい質量電荷比のイオンのみが電磁石を通過することができる。質量電荷比で選別されたイオンはさらに静電偏向器でエネルギーを分析され、測定対象である質量とエネルギーを持ったイオンのみが最終検出器まで到達する。

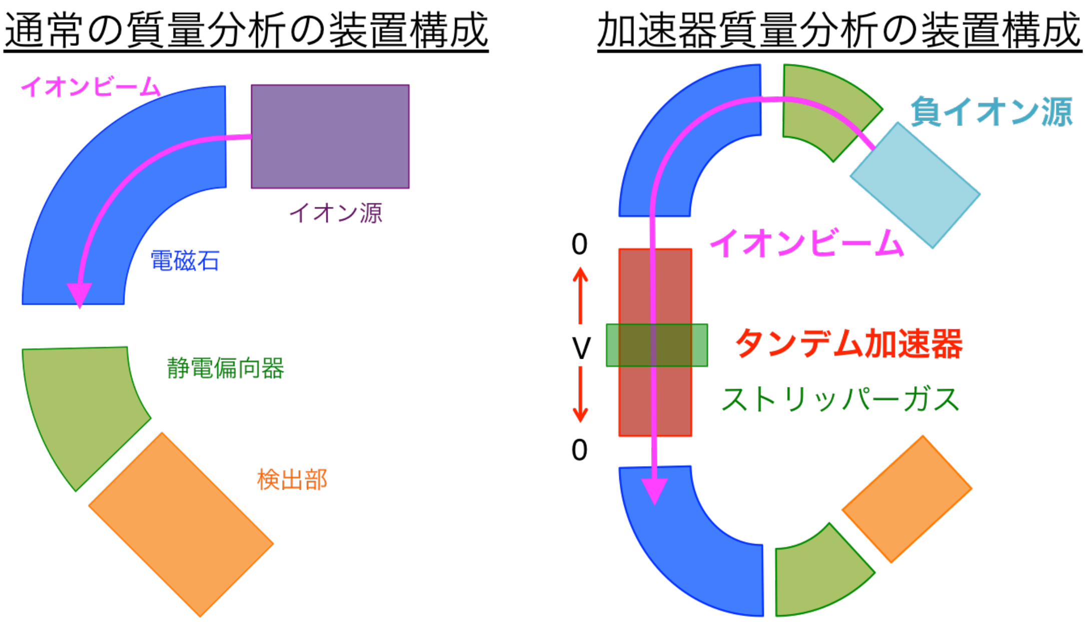


Figure 1-1 加速器質量分析の装置構成

最終検出器は半導体検出器やガスカウンターであり、目的核種が計数により検出される。

1.2. AMS の測定対象核種例

Table 1-1 に AMS の測定対象核種の一例を示す。^{14}C は AMS の対象核種の中でも最も広範に利用されており、放射性炭素年代測定だけでなく、海水中の ^{14}C の測定による海流の循環モデルの研究や、近年では ^{14}C 放射性標識化合物を用いたマイクロドーズ臨床試験など、医学や薬学にも利用されている[2]。

^{10}Be や ^{26}Al は氷河の後退年代や隕石の落下年代、河川の侵食速度の評価に利用されている。原子力分野では、高レベル放射性廃棄物の最終処分場を選択する際の地盤の安定性の評価に活用されている[2]。

^{36}Cl や ^{129}I、^{236}U は天然では ^{238}U の自発核分裂、^{235}U の中性子の捕獲反応や宇宙線による核破砕反応で生成されるが、^{235}U の核分裂やその際生じる中性子の捕獲によっても生成される。1950 年代以降の大気圏核実験や核燃料再処理工場からの漏洩など、人類の原子力利用に伴い環境中に大量に放出されてきたため、これらの核種は原子力利用の環境への影響の評価に活用される。特に ^{129}I に関しては福島第一原子力発電所事故でも環境中に漏洩したことが報告されており、事故の環境影響評価において重要な核種である[3, 4]。

Table 1-1　AMS の測定対象核種例

核種	半減期	天然存在比	妨害要素	同重体分離方法
^{14}C	5730 y	^{14}C/^{12}C = 10^{-14} ~ 10^{-11}	^{14}N, ^{13}CH, …	GC
^{10}Be	1.4×10^{6} y	^{10}Be/^{9}Be = 10^{-11} ~ 10^{-5}	^{10}B	GC
^{26}Al	7.2×10^{5} y	^{26}Al/^{27}Al=10^{-14} ~ 10^{-8}	^{26}Mg	GC, GFM
^{36}Cl	3×10^{5} y	^{36}Cl/Cl=10^{-15} ~ 10^{-8}	^{36}S	GC, GFM, SS, LPD
^{129}I	1.57×10^{7} y	^{129}I/^{127}I=10^{-12} ~ 10^{-8}	^{129}Xe	GC
^{236}U	2.3×10^{7} y	^{236}U/^{238}U=10^{-12} ~	^{235}UH	GC, TOF

GC = Gas counter, SSD = Solid-state detector, GFM = Gas-filled magnet,
TOF = Time of flight, SS = Second stripper foil, LPD = Laser photo-detachment

いずれの核種も天然の存在度が安定同位体と比較して 10^{-12} 程度しかないため、通常の質量分析では同重体や同じ重さの分子イオンからの干渉を防ぐことができず、測定は困難である。

1.3. AMS の福島第一原子力発電所事故への応用

福島第一原子力発電所事故により環境中に多種多量の放射性核種が放出された。それらの中でも人体への被ばくの影響が大きいと考えられる ^{134}Cs、^{137}Cs や ^{131}I は事故以降注目され、これまでに多くの報告があった。これらの核種の半減期は数日から数十年と比較的短く、また、γ 線放出核種であるため検出が容易である。

一方、^{129}I や ^{36}Cl などの長半減期核種は測定が困難であり、^{129}I を除いてほとんど報告がされていない。^{129}I は ^{131}I とともに ^{235}U の核分裂で生成され、^{131}I と同位体であるため、環境中の挙動が同じであると考えられる。^{129}I の半減期は 1570 万年であるため、^{131}I が崩壊した後でも、事故当時の ^{129}I/^{131}I 比が分かれば、^{129}I を測定することにより事故当時の ^{131}I の分布を再構築することが可能である。

事故当時の ^{129}I/^{131}I 比は Miyake (2012, 2015)[3,4]や Muramatsu (2015)[5]により報告され、2011 年 3 月 11 日時点の原子数比で 22 ~ 26 と見積もられている。この同位体比を用いて、文部科学省により「ヨウ素 129 の測定を通じたヨウ素 131 の土壌濃度マップの精緻化」の調査が行われ、AMS による ^{129}I の測定は事故当時の ^{131}I の再構築に大きく貢献している[6, 7]。

他の長半減期核種については測定の困難さからほとんど報告がされていない。

しかしながら、核分裂で生成する ^{129}I と異なり、^{36}Cl や ^{236}U は、^{35}Cl や ^{235}U の中性子捕獲反応で生成し、事故時の炉内の事象の研究等のために重要な核種であると考えられる。

福島第一原子力発電所の廃止措置を考慮した場合、放射性廃棄物の処分の際に廃棄物中の核種分析は非常に重要である。特に、福島第一原子力発電所事故の場合、通常の廃炉作業と異なり廃棄物中にどのような核種が含まれているか判明していない。廃棄物の処分において、廃棄物の性状把握は必須であり、東京電力により重要核種候補として 38 核種が選定されている[8]。これらの中には ^{59}Ni、^{126}Sn や ^{135}Cs など、国内の既存の設備では測定が困難であるか、まだ分析法が確立されていないものが多く含まれる。

1.4. AMS における同重体の分離

Table 1-2 に AMS の測定対象核種を示す。対象核種のうち、^{14}C、^{26}Al や ^{129}I など同重体が負の電子親和力を持ち、負イオンを形成しにくいものやアクチノイド核種など質量が大きく同重体が存在しないものを除き、ほとんどの核種で同重体の分離が必要であると考えられる。

これらの核種を高感度で測定するために、AMS では試料の化学処理、負イオン源の利用による同重体の選択的イオン化や加速器のターミナルでの同重分子イオンの分解等が積極的に利用されている。さらに、タンデム加速器によりイオンビームを数十 MeV まで加速することにより、目的の核種と同重体核種での物質との相互作用の違いを利用して同重体の分離が行われる。

実際、Table 1-1 に示したように、AMS では核種に応じて様々な同重体の分離が行われている。中でも ^{36}Cl は同重体である ^{36}S の分離の困難さから多くの手法が適用される核種であり、本項では ^{36}Cl を例に AMS における同重体分離手法について説明する。

Table 1-2 AMS の測定対象核種[2, 8, 9]

Nuclides	Half life	Nuclides	Half life	Nuclides	Half life
^{3}H	12.3 y	^{55}Fe	2.737y	^{138}Ba	stable
^{7}Be	53 d	^{59}Ni	7.5×10^{4} y	^{146}Sm	1.08×10^{8} y
^{10}Be	1.5×10^{6} y	^{60}Fe	1.5×10^{6} y	^{182}Hf	8.9×10^{6} y
^{14}C	5730 y	^{63}Ni	100 y	^{205}Pb	1.5×10^{7} y
^{22,24}Na	2.6 y	^{79}Se	3.0×10^{5} y	^{233}U	1.59×10^{5} y
^{26}Al	7.1×10^{5} y	^{81}Kr	2.3×10^{5} y	^{236}U	2.34×10^{7} y
^{32}Si	140 y	^{85}Kr	10.8 y	^{237}Np	2.14×10^{6} y
^{36}Cl	3.01×10^{5} y	^{90}Sr	28.8 y	^{239}Pu	2.41×10^{4} y
^{39}Ar	269 y	^{107}Pd	6.5×10^{6} y	^{240}Pu	6.56×10^{3} y
^{41}Ca	1.04×10^{5} y	^{126}Sn	2.3×10^{5} y	^{242}Pu	3.73×10^{5} y
^{44}Ti	60 y	^{129}I	1.57×10^{7} y	^{244}Pu	8.1×10^{7} y
^{53}Mn	3.7×10^{6} y	^{135}Cs	2.3×10^{6} y	^{247}Cm	1.56×10^{7} y

同重体の妨害なし　　Tandem+Linacで分離　　重要核種候補
同重体の分離が必要　　AMSに関する報告なし

1.4.1. ^{36}Cl に関する同重体分離手法

^{36}Cl を測定する際、同重体である ^{36}S が妨害要素となる。^{36}S は天然の存在度が 0.02 %の安定同位体であるため、^{36}Cl よりも遥かに多く存在し、測定の際には ^{36}Cl から分離しなければならない。しかしながら、S の電子親和力は 2.08 eV であり容易に負イオンを形成するだけでなく、分子イオンではないためターミナルによる荷電変換で分離することは困難である。さらに、化学処理による分離で ^{36}S のバックグラウンドを ^{36}S/Cl ~ 10^{-15} に抑えることが可能であるが、化学処理後の試料をイオン源に装填するまでの間に 、環境中の ^{36}S が混入し結果として ^{36}S のバックグラウンドが高くなってしまうことが知られている[10]。

そのため、塩素と硫黄のエネルギー損失の違いを利用した分離が必要であり、これまで様々な手法により測定が行われてきた。

1.4.2. ガス充填型電磁石による同重体の分離

ガス充填型電磁石(GFM; Gas-filled magnet)は N_2 ガスなどが充填された電磁石である。イオンビームが入射すると、内部でのエネルギー損失の違いと平衡電荷分布(equilibrium charge distribution)の違いにより、目的核種と同重体核種を空

間的に分離することが可能である。

物質をイオンが通過する間に、イオンの電荷分布は平衡に達し、その平均電荷数の分布は平衡電荷分布と呼ばれる。平衡電荷分布は実験的に求められており、正規分布を仮定した場合、分布の中心である $\bar{q}$ は例えば次のように表される[11]。

$$\frac{\bar{q}}{Z} = 1 - 1.03\exp\left(-47.2Z^{-0.380}\left(\frac{v}{c}\right)^{0.860}\right) \tag{1-1}$$

$$\frac{\bar{q}}{Z} = 1 - 1.08\exp\left(-80.1Z^{-0.506}\left(\frac{v}{c}\right)^{0.996}\right) \tag{1-2}$$

ここで、c は光速、v はイオンの速さ、Z は陽子数である。式(1-1)、式(1-2)は $Z \geq 16$ のイオンをそれぞれカーボンストリッパーフォイルとガスストリッパーに入射した場合の $\bar{q}$ であり、GFM を用いる場合、式(1-2)が適用される。

また、分布の拡がり d は次の式で与えられる[12]

$$d = d_0 Z^{\aleph} \tag{1-3}$$

d_0 と ℵ の値も媒体によって異なり、N_2 ガスを用いる場合、d_0 = 0.32、ℵ = 0.45 が適用される。

式(1-2)と式(1-3)から、40 MeV のエネルギーを持つ ^{36}Cl と ^{36}S を N_2 ガスに入射した場合にそれぞれの核種が取り得る平衡電荷分布を図示すると、Fig. 1-2 のようになる。

Cl と S の N_2 ガス中のエネルギー損失も異なるため、これらの違いから、^{36}Cl と ^{36}S は GFM 内部で Fig. 1-3 のように空間的に分離されるため、同重体の影響を抑制することが可能となる。

同重体の抑制率(Suppression factor)は

(抑制した場合の同重体の検出数)/(抑制しなかった場合の同重体の検出数)

で定義され、GFM を用いた場合、$10^{-3} \sim 10^{-4}$ の抑制率が得られることが報告されている[14]。

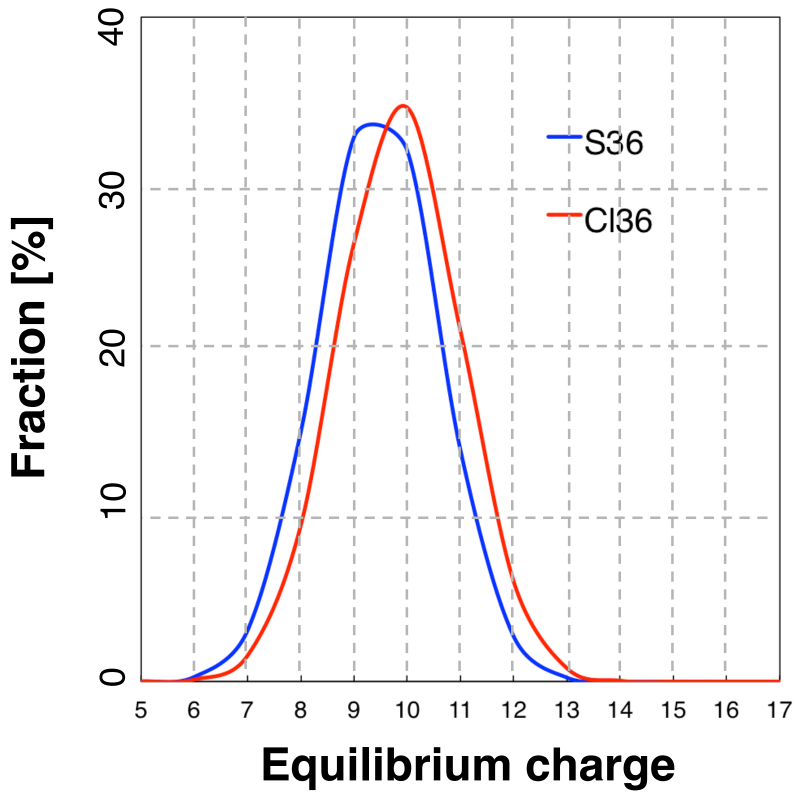


Figure 1-2 平衡電荷分布[13]

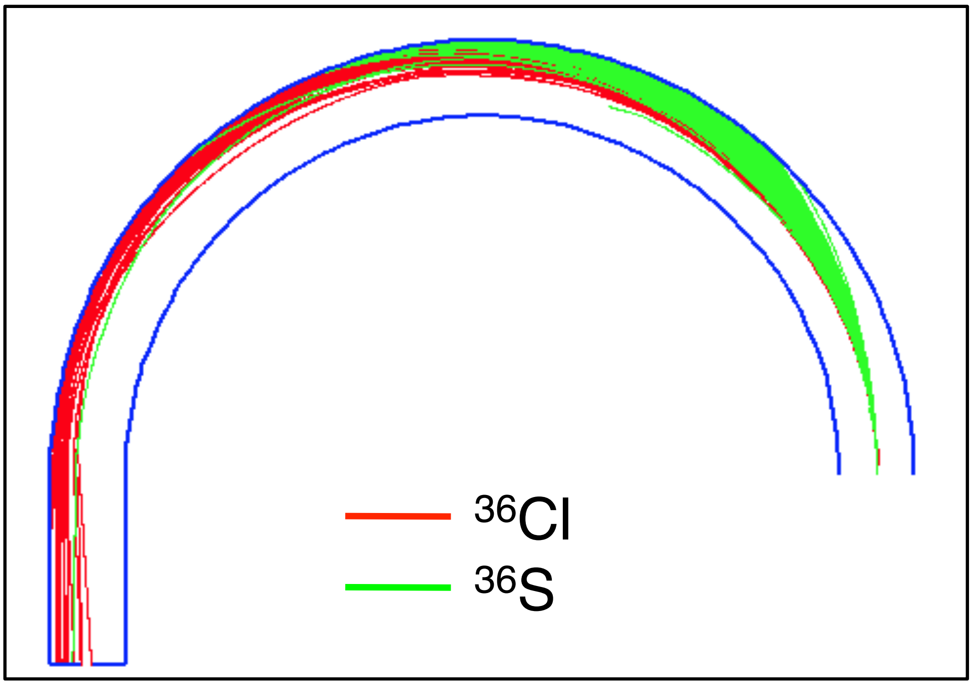


Figure 1-3 GFM 内の ^{36}Cl と ^{36}S の軌道[13]

1.4.3. セカンドストリッパーフォイルによる同重体の分離

セカンドストリッパーフォイル(SS; Second stripper foil)はGFMと同様に高エネルギー側のビームラインに設置される薄膜である。加速されたイオンビームが入射するとエネルギー損失の他に、物質との相互作用によりイオンから電子がさらに剥ぎ取られ電価数が変化する。

セカンドストリッパーフォイルには窒化シリコン薄膜などが用いられる。厚さ1 µmのSi_3N_4薄膜に30 MeVのエネルギーを持つ$^{36}Cl^{5+}$が入射した時、エネルギー損失は7 MeVであり、電価数は10+のものが多く生成される[15]。^{36}Sの場合、^{36}Clより失うエネルギーが少なく、かつ通過後の電荷も^{36}Clより小さくなると考えられる[16]。したがって、エネルギーと電荷の分布が異なるため静電偏向器等で^{36}Clと^{36}Sの分離が可能となる。

Kleinらによると、CEREGEのAMS施設において、セカンドストリッパーフォイルを用いた場合、高エネルギー系での同重体抑制の効果は4×10^{-7}まで到達すると報告されている[16]。CEREGEでは荷電変換され、分析電磁石で分析されたイオンビームを厚さ1 µmのSi_3N_4薄膜に通過させ、静電偏向器でエネルギーを分析後ガスカウンターで^{36}Clを測定している。静電偏向器による同重体の抑制率は少なくとも5×10^{-2}、ガスカウンターによる抑制率は10^{-4}とされており、セカンドストリッパーフォイルによる抑制率は$4 \times 10^{-7}/((5 \times 10^{-2}) \times (10^{-4})) = 8 \times 10^{-2}$と見積もられる[16]。

いずれの手法でもイオンビームを気体や固体に通過させるため、イオンビームが散乱し測定効率が減少してしまう。そのため、近年ガスカウンターの性能向上によりGFMやSSを使わずに非常に高い感度で^{36}Clを測定する手法が開発されている。

1.4.4. ガスカウンターによる同重体の分離

高エネルギーのイオンが気体中を移動する時、気体が電離され電子が生じる。電子の生成量はイオンのエネルギー損失に依存するため、電離で生じた電子を検出することで、気体中のイオンのエネルギー損失の様子を知ることが可能である。イオンのエネルギー損失はイオンの原子の陽子数に依存するため、目的核種と陽子数の異なる同重体核種を分離することが可能である。以上の原理を利用して同重体の分離を行う装置がガスカウンターであり、AMSの最終検出器

として幅広く利用されている[1]。

ガスカウンターの構造は主にイオンの入射窓(entrance foil)、電子収集用電極、グリッド電極、カソード電極から構成される(Fig. 1-4)。ガスカウンター内部はガスを封入するため、真空度が数十 Torr に調整されるが、ガスカウンター外の真空度は $10^{-7} \sim 10^{-8}$ Torr の高真空であるため、入射窓でガスの漏洩を防ぐ。カソード電極は接地電位であるが、グリッド電極及び電子収集用電極には 200 V 程度の電圧が印加されるため、電子収集用電極に電子を集めることが可能である。グリッド電極には電子の流れを整える役割がある。

ガスカウンターに入射したイオンのエネルギーを損失の変化を入射後の距離で表したものはブラッグカーブと呼ばれ、Fig. 1-5 のようになる。Fig. 1-5 は 30 MeV 程度まで加速された ^{36}Cl と ^{36}S が Fig. 1-4 に示すガスカウンターに入射した時のブラッグカーブを表す。^{36}Cl と ^{36}S はそれぞれ厚さ 3 µm のポリプロピレン膜(PP 膜)と厚さ 0.8 µm のポリエチレンナフタレート膜(PEN 膜)の入射窓を通過後、ガス圧 40 Torr の P10 ガス中を移動する。

ブラッグカーブのうち、エネルギー損失が最大になる箇所はブラッグピークと呼ばれる。Fig. 1-5 において、イオンが 1〜3 枚目の電極(P1〜P3)の領域を通過する時に失うエネルギーをそれぞれ dE1、dE2、dE3 とすると、dE1、dE2、dE3 の組み合わせから 2 次元のスペクトルが得られる。Fig. 1-5 では PEN 膜を用いた場合、2 枚目電極と 3 枚目電極の間で ^{36}Cl と ^{36}S のブラッグカーブが交差し逆転する。この時、dE1 と dE2 は ^{36}Cl の方が ^{36}S よりも大きいが、dE3 は ^{36}S の方が大きくなる。したがって、例えば dE1+dE2 と dE3 の組み合わせからスペクトルを作成すれば、スペクトル上で ^{36}Cl と ^{36}S を分離することが可能である。

しかしながら、イオンが入射窓を通過する時、エネルギーストラグリングにより通過後のエネルギーに幅が生じるため、実際に得られるスペクトルはある広がりを持つ。目的核種と同重体核種のスペクトルの干渉を防ぐためには、スペクトルの中心位置が十分に離れることが重要となる。そのためには目的核種と同重体核種のブラッグカーブの差を大きくすることが必要である。

ガスカウンター内におけるブラッグカーブの差は入射時のイオンのエネルギーに依存する。例えば、30 MeV の ^{36}Cl 及び ^{36}S が PP 膜と PEN 膜を通過する際、それぞれ 10 MeV と 3 MeV のエネルギーを失う。この時、PEN 膜を用いた場合の方がガスカウンター入射後のイオンのエネルギーが高いため、Fig. 1-5 のよう

にブラッグカーブの差が大きくなり、結果としてスペクトルの分離が良くなると考えられる。

以上のように、ガスカウンターにより同重体を分離するためには、イオンのエネルギーを高く保ったままガスカウンターに入射することと、ブラッグピークの位置に合わせて電子収集用電極を配置することが重要である。

このような考えから、同重体の分離を効果的に行うことが可能なガスカウンターの開発が進められた。Maden らは入射窓として厚さ 50 nm の SiN 薄膜を使用し、5 枚の分割電極からなるガスカウンターを開発した[17]。40 MeV の ^{36}Cl のイオンビームをこのガスカウンターに入射した時、SiN 薄膜でのエネルギー損失は 0.35 MeV であり、^{36}S とのガスカウンター内部のブラッグカーブの差は十分大きくなる。さらに SiN 薄膜を通過する際に生じるエネルギーストラグリングも小さくなるため、スペクトルの広がりも小さくなる。Maden らはこの手法により ^{36}Cl 測定のバックグラウンドとして ^{36}Cl/Cl ~ 3 × 10^{-15} を達成した。Wilchken らは入射窓として厚さ 30 nm の SiN を使うなどして、検出感度をさらに高くした[18]。他に、TOF と組み合わせたガスカウンターも開発されているが、SiN 薄膜と分割電極からなるガスカウンターは広く導入されている[19, 20]。

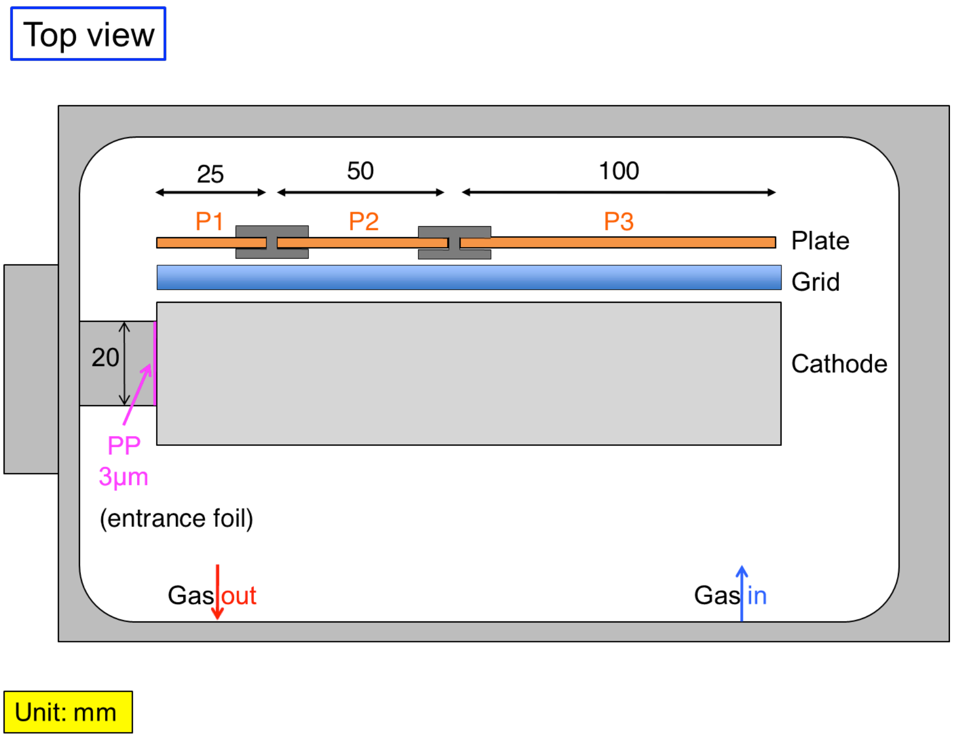


Figure 1-4 ガスカウンターの構成[13]

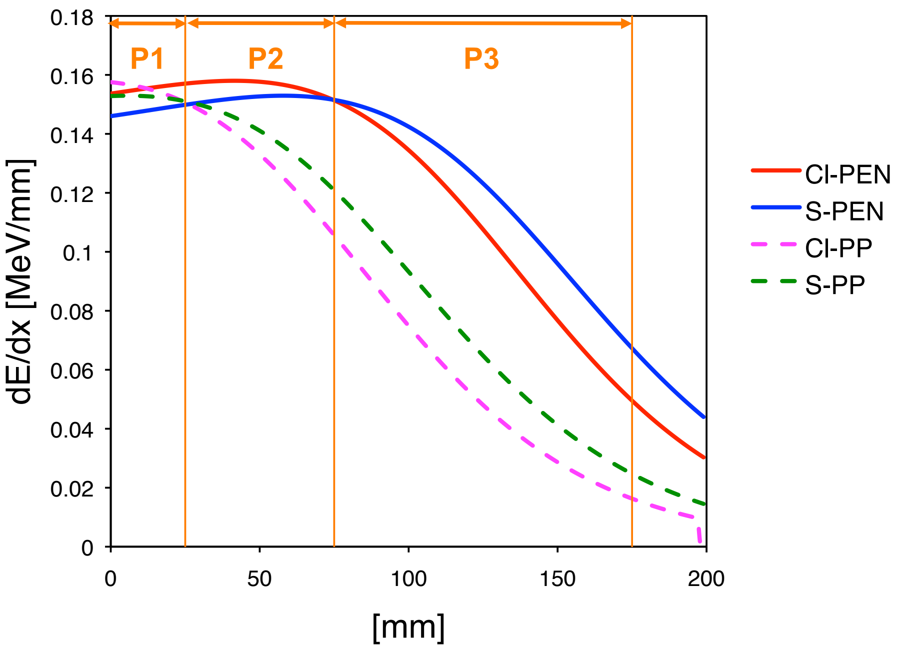


Figure 1-5 ブラッグカーブ[13]

1.5. 新たな同重体分離手法の開発

近年 AMS における手法として、原子の電子構造の違い、すなわち電子親和力(Electron Affinity; EA)の違いを利用した分離手法の開発が研究されている。一つはレーザー光脱離法であり、他はリアクションセルを利用したものである[21]。レーザー光脱離法の場合、レーザーにより同重体核種の選択的中性化が行われるが、リアクションセルの場合、負イオンと NO_2 などの反応性ガスを衝突させ選択的に中性化が行われる。本項では先行研究として、それぞれの手法の研究例を紹介する。

1.5.1. レーザー光脱離法による同重体分離手法の開発

① レーザー光脱離法の AMS への導入 [22, 23]

1980 年代後半に Weizmann Institute of Science で AMS において初めてレーザー光脱離法が導入された。レーザーによる負イオンの選択的分離を目的に研究は行われ、1989 年には波長 532 nm の Nd:YAG レーザーと $^{32}S^-$、$^{37}Cl^-$、$^{40}Ca^{16}O^-$、1990 年には波長 1064 nm の Nd:YAG レーザーと $^{58}Ni^-$、$^{59}Ni^-$、$^{59}Co^-$の相互作用が試された。

Table 1-3　LPD の適用核種例

目的核種	電子親和力（eV）	同重体核種	電子親和力（eV）
^{36}Cl	3.62	^{36}S	2.08
^{59}Ni	1.156	^{59}Co	0.661

レーザー光脱離法では原子の電子親和力以上のエネルギーをレーザーで与えることにより、光脱離反応を起こし負イオンを中性化することが利用される。レーザー光脱離法の対象核種例を Table 1-3 に示す。それぞれの核種の電子親和力は S (EA = 2.08 eV)、Cl (EA = 3.62 eV)、Ni (EA = 1.156 eV)、Co (EA = 0.661 eV) である。レーザーの波長とレーザー中の光子一つ当たりの持つエネルギーの関係は次の式で表される。

$$E = h\nu[eV] = h[m^2kg/s]\frac{c[m/s]}{\lambda[m]}\frac{1}{1.602\times10^{-19}[J/eV]} \tag{1-4}$$

ここで、h はプランク定数 h = 6.626 × 10^{-34} (m^2kg/s)、ν は光の周波数、c は光速、λ はレーザーの波長を表す。波長 532 nm と 1064 nm のレーザーの場合、光子一つ当たりのエネルギーは 2.33 eV と 1.17 eV となる。したがって、波長 532 nm のレーザーにより EA が 2.33 eV 以下、1064 nm のレーザーにより EA が 1.17 eV 以下の負イオンを中性化できると考えられる。

実際、1989 年に行われた実験ではレーザーによる $^{32}S^-$ と $^{40}Ca^{16}O^-$ の抑制が観測されたが $^{37}Cl^-$ では抑制が見られなかった。$^{40}Ca^{16}O^-$ の EA は不明であったが、本実験により 2.33 eV 以下であることが示唆された。1990 年の実験では $^{59}Co^-$ のみが抑制され、$^{58}Ni^-$、$^{59}Ni^-$ に影響はなかった。

これらの実験ではレーザー光脱離法による同重体の抑制が確認されたが、レーザーとイオンビームの相互作用する時間がわずか数 μs であり、十分な抑制効果が得られなかった。

② Ion cooler の開発 [24 – 29]

Berkovits らによる実験ではレーザーとイオンビームの相互作用時間が短く、同重体の抑制効果が十分に得られなかった。相互作用時間を増加させるためにはイオンビームを減速させることが重要であり、Liu らによってイオンビームの減速機構が開発された。

Liu らにより開発された機構は Collisional RF-quadrupole ion guide と呼ばれ、イオンビームを減速するための減速電極、減速したイオンビームをトラップするための高周波四重極(RFQ; Radio-Frequency Quadrupole)、減速後のイオンを元のエネルギーまで加速する加速電極で構成される。高周波四重極電場には He ガスが導入される。

Liu らの実験では、^{35}Cl と ^{32}S、^{16}O (EA = 1.46 eV)と ^{19}F (EA = 3.40 eV) 、^{59}Co と ^{58}Ni の核種の組み合わせについて光脱離反応による同重体の抑制が試みられた。^{35}Cl と ^{32}S の場合、分離に波長 527 nm (2.357 eV)が用いられ、He のガス圧 6 Pa において $^{32}S^-$が 99.97 %抑制された。^{16}O と ^{19}F の場合、同じ波長のレーザーが用いられ、He 6 Pa において $^{16}O^-$が 99.9 %抑制された。^{59}Co と ^{58}Ni では、波長 1064 nm (1.168 eV)が用いられ、He 10 Pa において $^{59}Co^-$が 99.9 %抑制された。この場合、レーザーのエネルギーは Co の EA だけでなく、Ni の EA (= 1.1561 eV)よりも大きいため、Ni についても 22 %の抑制が見られた。

いずれの場合も 99.9 %以上の妨害要素の抑制が達成されたが、イオンの装置の透過効率が ^{35}Cl は 51 %、^{32}S は 45 %、^{16}O は 24 %、^{19}F は 38 %、^{59}Co は 43 %、^{58}Ni は 52%と、20 %から最大 52 %であり、実用的な測定のためには改善の必要がある[25]。

1.5.2. リアクションセルによる同重体分離手法の開発

リアクションセルとは、イオンビームを O_2 や NO_2 など反応性ガスと反応させ、妨害要素を分子イオン化して分離する装置のことである。イオンビームを捕獲するために四重極電極が用いられるが、分子イオンとなり質量が変化したイオンは捕獲されず、発散し四重極電極を通過することができない。これにより同重体核種を分離することが可能なため、ICP-MS など質量分析装置の感度を向上させるために利用される。

AMS では ^{36}Cl と ^{36}S を分離するために NO_2 ガスが用いられた[30-33]。Cl^-、S^- と NO_2 の反応は次の式で表される。

$$Cl^- + NO_2 \rightarrow NO_2^- + Cl \tag{1-5}$$

$$S^- + NO_2 \rightarrow NO_2^- + S \tag{1-6}$$

式(2-5)と式(2-6)の反応が生じるために必要なエネルギーは電子親和力の差により計算される。NO_2 の電子親和力は 2.27 eV であるから、式(1-5)、式(1-6)における電子親和力の差は

$$\Delta EA(Cl - NO_2) = 1.34eV \tag{1-7}$$

$$\Delta EA(S - NO_2) = -0.19eV \tag{1-8}$$

となる。式(1-7)の反応は吸熱反応となり自発的には起こらないが式(1-8)の反応は熱エネルギー(〜ev)で生じることになる。したがって、Cl^-とS^-をNO_2と反応させれば、S^-の選択的な中性化が生じ分離が可能である。

しかしながら、イオンビームの透過効率は 20 %程度であり、改善のために開発が進められている[34]。

1.6. 本論文の目的

AMS における同重体の分離では、従来法である物質との相互作用を利用した分離は原子核の電荷に依存する相互作用を利用していることから、質量数が大きくなると目的核種と同重体の原子核の電荷が相対的に小さくなり、抑制能力が落ちる[35]。

一方、新しい同重体手法であるレーザー光脱離法やリアクションセルによる同重体の分離は原子核の電荷だけでなく、原子の電子構造の違いに着目した分離手法である。これらは原子核の電荷に依存されない分離方法であるため、基本的には質量数が大きくなっても適用することが可能である。そのため、従来法では測定が困難であった質量の大きい核種を AMS で分析することが可能になると考えられる。

レーザー光脱離法の原理は実証されているものの、実際の AMS のシステムには実装されていない。レーザー光脱離法により、^{59}Ni や ^{135}Cs のような従来は検出が困難であった核種を測定可能になれば、福島第一原子力発電所事故の収束に向けた研究だけでなく、地球化学など様々な分野において研究を大きく進めることが可能であると考えらえる。

そこで、本研究では福島第一原子力発電所事故研究に向けた ^{36}Cl を含む難測定核種の測定と、AMS における新しい同重体分離手法として、レーザー光脱離法の開発による AMS の応用領域の拡張を目的とした。レーザー光脱離法の開発では実装を前提とした負イオン減速チャンバーの製作を行った。チャンバーを製作し、性能の評価と設計の妥当性の検証のためテストベンチビームラインの構築を行い、イオンビームの透過効率を評価した。

1.7. 本論文の構成

本論文の構成を Fig. 1-6 に示す。本論文は 6 章より構成される。

第 1 章では研究の背景として、AMS の福島第一原子力発電所事故への応用研究、AMS における同重体分離、そして、新しい同重体分離手法と応用研究の拡がりについて述べた上で、本研究の目的を述べた。

第 2 章では福島第一原子力発電所周辺土壌中の塩素 36 の測定について述べる。塩素 36 は事故に伴って環境中に漏洩する可能性があり、その検出や分布を調べることは環境影響評価上重要である。本研究では AMS における従来技術として、ガス充填型電磁石とガスカウンターを組み合わせた分析により土壌中の塩素 36 の測定を試みた。

第 3 章はレーザー光脱離法の中心部となる、負イオン減速チャンバーの設計・製作について述べる。レーザー光脱離法において、同重体抑制能を高めるためにはレーザーとイオンとの相互作用時間を大きくする必要がある。そのためにイオンを減速することが効果的であり、負イオンを減速するための装置として、減速チャンバーの設計・製作をイオン光学系設計ソフト SIMION8.1 により行った。

第 4 章は、負イオン減速チャンバーを評価するためのテストベンチビームラインの構築について説明する。製作した負イオン減速チャンバーを実装するとともに、負イオン源および電磁石による質量分析系、ビーム評価のためのファラデーカップなどを実装した。また、イオン源からの負イオンビームの引き出し及び減速チャンバーでの減速制御のための電位構成を設計・構築した。

第 5 章はテストベンチビームラインにおいて、負イオンビームを用いて透過効率を評価し、第 3 章における設計の妥当性を検証した。また、チャンバー内への He ガス導入のための差動排気系についても確認した。

第 6 章は結論である。

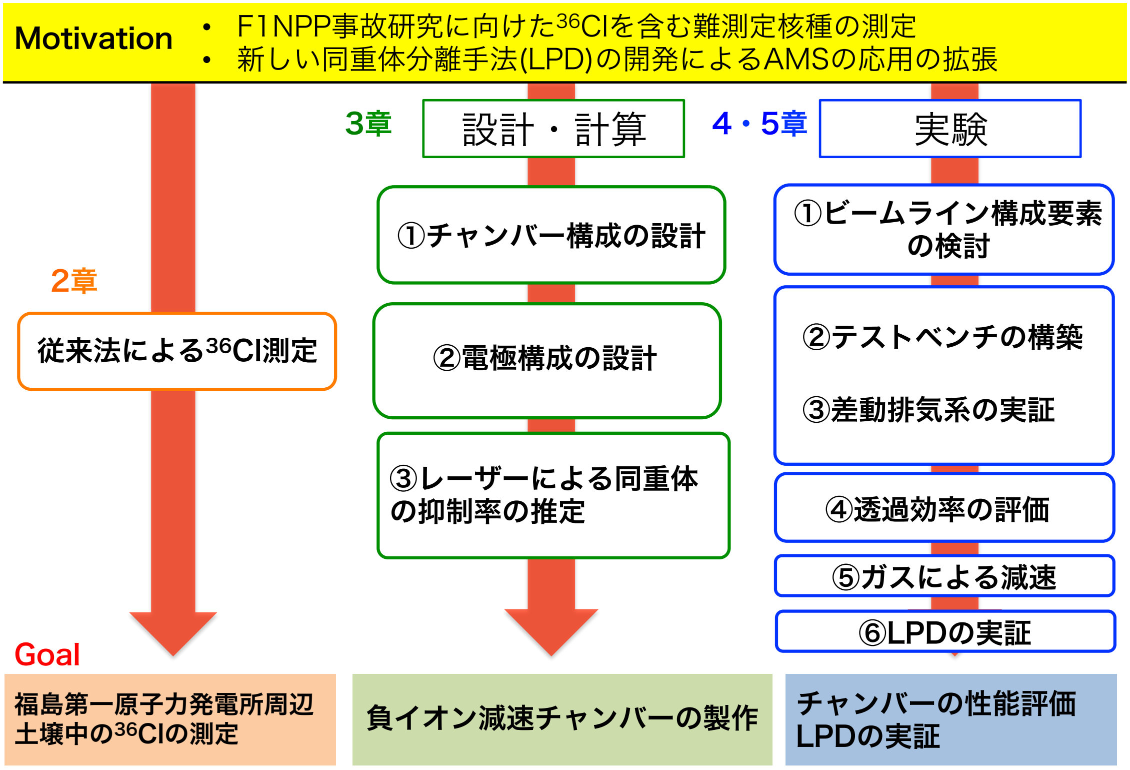


Figure 1-6 本研究の構成

2. 福島第一原子力発電所周囲の表層土壌中の塩素 36 の測定

^{36}Cl は原子炉内では、冷却材中や構造材中に不純物として含まれる ^{35}Cl から中性子捕獲反応で生成されると考えられる[36]。実際、福島第一原子力発電所の 1 号機から 3 号機の冷却材中のから ^{36}Cl が検出されており、運転中に生成し、炉内に蓄積していたと予想される[37, 38]。

福島第一原子力発電所事故では環境中に様々な放射性核種が放出されたため、^{36}Cl が炉内に存在すれば他の核種と同様に放出されたと考えられる。しかしながら、調査のため事故後に原発構内のがれきや木々に含まれる ^{36}Cl の測定が試みられたが、ガスフロー検出器の検出限界である 5×10^{-2} Bq/kg 以下であり、福島由来の ^{36}Cl を検出したという報告はこれまでまだない[39]。

一方、1990 年にチェルノブイリ原子力発電所の周囲の苔中の ^{36}Cl と ^{129}I の測定がなされ、事故起源とされる ^{36}Cl が AMS により検出されている。検出された ^{36}Cl/Cl 比は $3 \times 10^{-12} \sim 9.6 \times 10^{-11}$ の範囲であり、福島第一原子力発電所事故で放出された場合も同様の値を示す可能性がある[36]。

さらに、^{36}Cl は ^{129}I と同様に福島第一原子力発電所の廃炉作業に伴い放出される可能性のある核種であり、廃炉の環境への影響を評価するためにも原発周囲の ^{36}Cl/Cl 比を把握しておくことが重要である[39]。

以上の理由から、本研究では福島第一原発周囲から採取された土壌中の ^{36}Cl の測定を試みた。

2.1. 土壌試料

分析した土壌は 2011 年 4 月 20 日に福島第一原子力発電所の周囲 60 km から採取された[40]。採取には U8 容器が使われ、採取後乾燥し γ 線測定によりヨウ素 131 や放射性セシウムの測定が行われた[40]。

Figure 2-1 に土壌採取地図を示す。土壌の採取地点数は全 50 点であり、その中から、ヨウ素 129 の沈着量が高かった、原発から北西方向を中心に 16 点を選び塩素 36 の測定を試みた。図中に赤で示した点はヨウ素 129 を測定済みの点であり、青で示した点はさらに塩素 36 を測定した地点である[3, 4]。

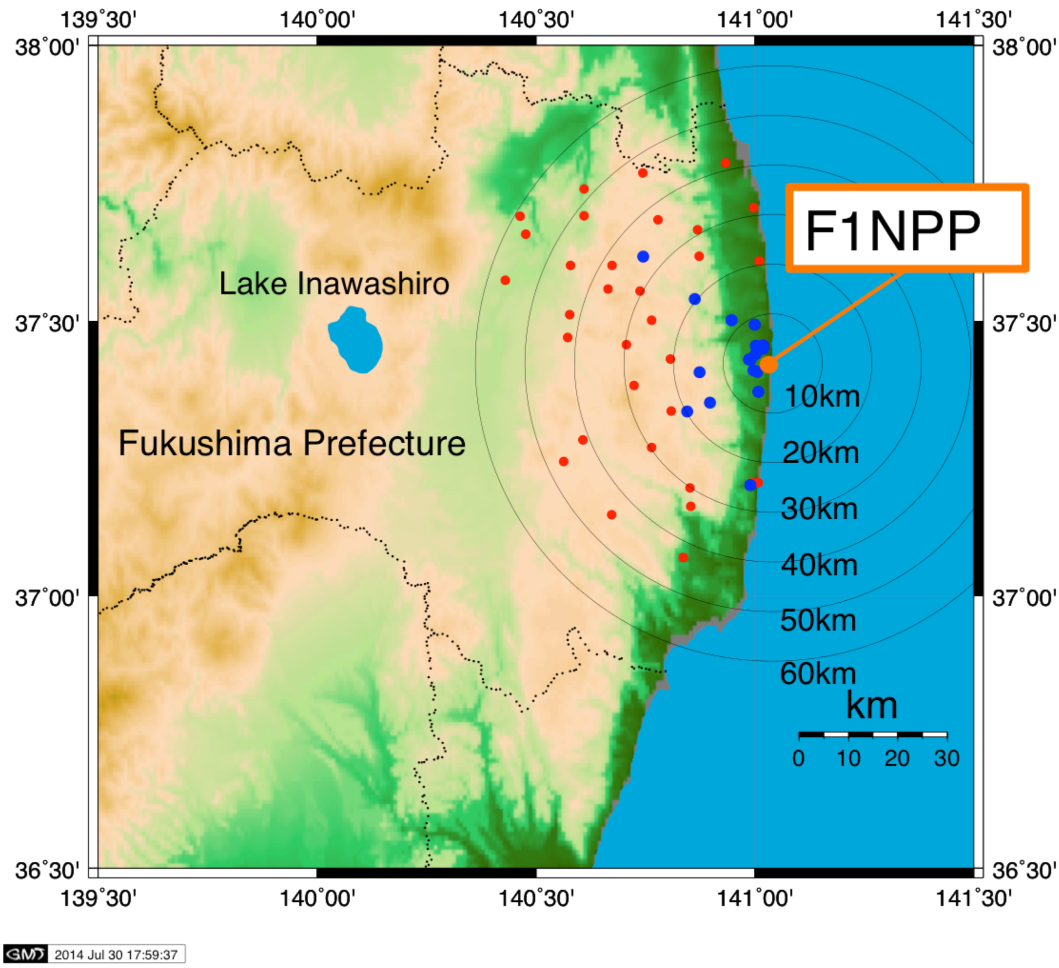


Figure 2-1 土壌採取地図

Table 2-1 ^{36}Cl-AMS の測定条件

Pre-acceleration	0.076 MeV	GFM entrance foil	150 nm SiN
Terminal voltage	5 MV	GFM Mfield	7350 Gauss
Charge state	6+	GFM gas	N_2 1.5 Torr
Ion energy	35.076 MeV	GC entrance foil	0.8 µm PEN
		GC gas	P10 50 Torr

2.2. 実験方法

Figure 2-2 に実験方法の概要を示す。乾燥後均質化された土壌から 5~10 g 分取し、0.01 M の硝酸を加え、一晩超音波洗浄にかけ土壌中の塩素を硝酸に溶かし出した。塩素の回収率を上げるため、上澄みを回収した残渣に再び硝酸を加え、遠心分離で上澄みと残渣を分離した。次に、回収した上澄み溶液に活性炭を 1 g 加え、有機物を吸着させた。0.2 μm のフィルターを通した後、上澄みに 30 %の過酸化水素水を加え、吸着しきれなかった有機物の分解を行った。さらに 3 M アンモニア水を加えることで、溶液中に含まれる金属イオンを水酸化物として沈殿させた。その後、上澄みを回収し液量が 10 ml 程度になるまでホットプレートを用いて濃縮した。

濃縮した溶液に濃硝酸と 0.5 M 硝酸銀溶液を加え、塩素を AgCl として沈殿させた。5 回ほど沈殿を Milli-Q 水で洗浄し、乾燥させて AMS のターゲットとした。

AMS の測定は東京大学総合研究博物館タンデム加速器分析室(MALT; Micro analysis laboratory Tandem accelerator, The University of Tokyo)の装置を使って行われた。測定の条件を Table 2-1 に示す。加速器入射前の前段加速電圧は 0.076 MeV、ターミナルの電圧は 5 MV、そして荷電変換後のイオンの電価は 6+を選択した。前段加速電圧を V_{pre}、ターミナルの電圧を V_T、イオンの電価を q とおくと、加速後のイオンのエネルギーは

$$E = (q+1)V_T + V_{pre} \tag{2-1}$$

で計算され、35.076 MeV となる。

同重体である ^{36}S を分離するために、GFM と GC を組み合わせて測定を行った。GFM の入り口には厚さ 150 nm の SiN 薄膜が設置され、GFM 内に N_2 ガスを圧力 1.5 Torr で封入した。GFM の磁場は ^{36}Cl の計数率が最大になる 7350 Gauss に設定した。

GFM 通過後イオンは GC に入射し、計数される。GC の入り口には厚さ 0.8 μm の PEN 薄膜があり、GC 内は P10 ガス(He: 10% Ar: 90%の混合ガス)が圧力 50 Torr に設定される。MALT の ^{36}Cl-AMS の詳細な性能は[41]に述べられている。

測定結果は Sharma らによって調整された、$^{36}Cl/Cl$ 比が 5×10^{-13}、1.6×10^{-12}、5×10^{-12} の標準試料により較正した[42]。

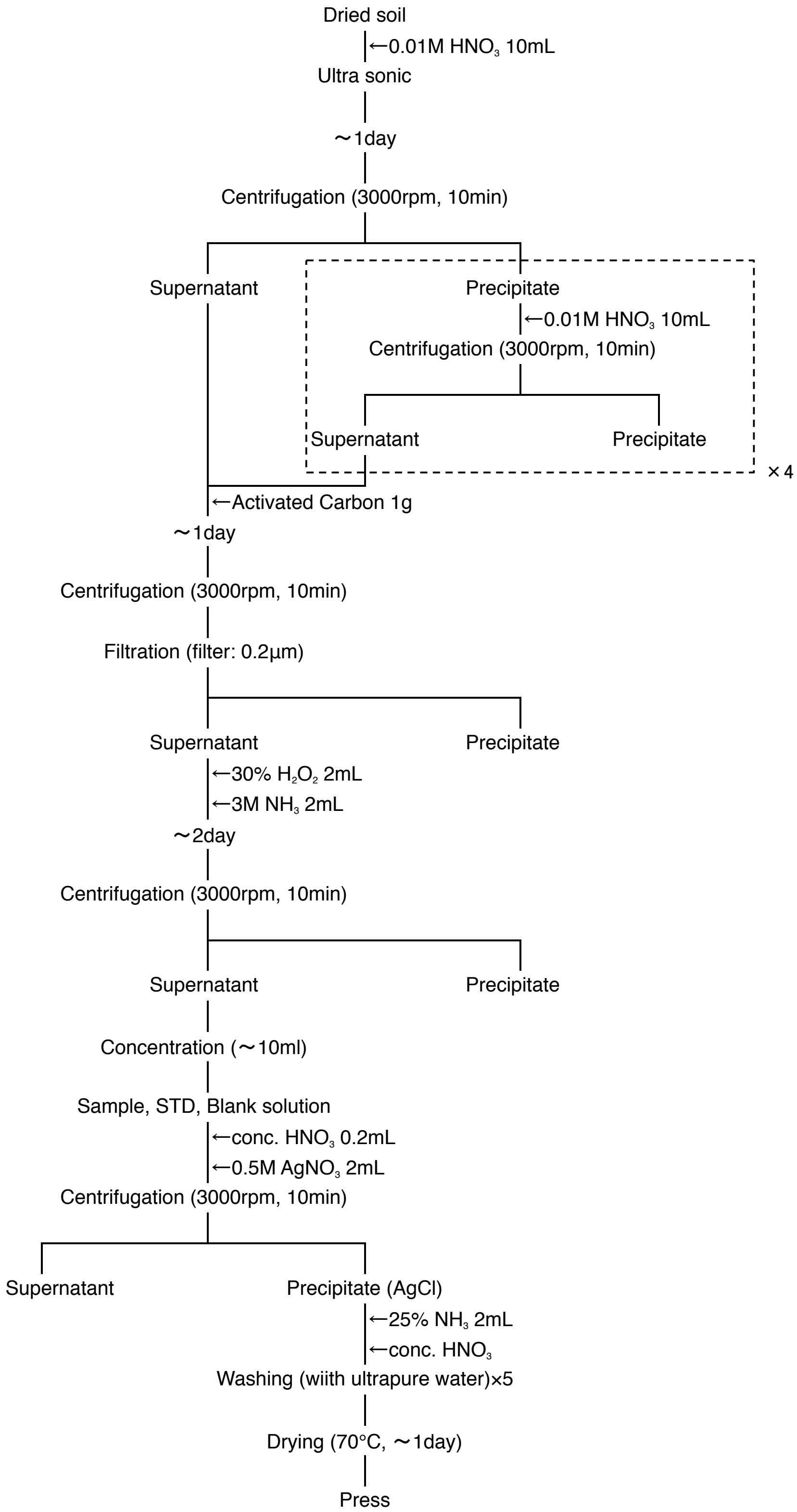


Figure 2-2 塩素の実験方法

2.3. 測定結果

Table 2-2 に測定の結果を示す。Table 中の安定塩素濃度(Cl)はイオンクロマトグラフィーにより測定した。AMS の結果、16 試料のうち 10 試料から有意な値が得られた。残りの 6 試料は AgCl 作成の際、十分な量の沈殿が得られなかったため、^{36}Cl が有意に検出されなかった。測定の結果、塩素同位体比(^{36}Cl/Cl 比)は$(1.05 \pm 0.60) \times 10^{-12}$から$(2.63 \pm 0.54) \times 10^{-11}$となった。事故前の福島第一原子力発電所周囲の土壌中の ^{36}Cl/Cl 比は 4.6×10^{-13} であり、事故前のバックグラウンドよりも高い ^{36}Cl/Cl 比が観測された[43]。

原子力発電所からの距離と得られた ^{36}Cl/Cl 比を比較すると、20 km 付近の 1 点を除き、距離に従って ^{36}Cl/Cl 比が減少することが確認された(Fig. 2-3)。また、原発近傍で特に高い ^{36}Cl/Cl 比が観測された。

イオンクロマトグラフィーにより得られた安定塩素濃度は 25 ppm から 40 ppm であった。安定塩素濃度が 40 ppm であった場合、5 g の土壌中に存在する塩素量は 0.2 mg となる。したがって、実験による塩素回収の収率が 100 %であったとすると、得られる AgCl の沈殿量は $0.2 \times 143.4/35.5 = 0.808$ mg である。安定した測定のためには 1 mg 程度沈殿が必要であり、実験で生成した沈殿量は比較的少ないと考えられる。得られた結果には 20 %～60 %の比較的大きな誤差があったが、扱った沈殿の量が少なかったことも一つの原因であると考えられる。

2.4. ^{129}I との比較

Table 2-3 に ^{36}Cl を測定した地点の ^{129}I と ^{129}I/^{131}I 比を示す。また、Fig. 2-4 は ^{36}Cl と ^{129}I の濃度を比較したグラフである。特に原発近傍では ^{36}Cl と ^{129}I は正の相関を示し、^{36}Cl の濃度が高かった地点では ^{129}I の濃度も同様に高かった。これは、ヨウ素と塩素はともにハロゲンであり、揮発性も高いため炉内から放出された後、環境中で近い挙動を示すためであると考えられる。

^{129}I は ^{235}U の核分裂で生成するのに対し、^{36}Cl は ^{35}Cl の中性子捕獲反応により生成する。異なる生成プロセスを持つ核種に相関があったことは、これらの核種が事故により炉内から放出されたことを示唆すると考えられる。

Table 2-2 ^{36}Cl の測定結果のまとめ

安定塩素濃度の測定誤差は 5 %以内である。福島第一原子力発電所からの距離は福島第一原子力発電所(北緯 32 度 25 分 17 秒、東経 141 度２分 1 秒)を基準として計算した。”V”は原発近郊 (<10km) を示し、NW、W、S、SW はそれぞれ原発からの方向が北西、西、南、南西であることを意味する。

Sample ID	Cl (mg/kg)	^{36}Cl (mBq/kg)	^{36}Cl/Cl ratio (10^{-12} atoms/atoms)	Distance from NPP	Positional relationship to NPP
S8	29.0 ± 1.4			36.4	NW
S14	31.7 ± 1.6			7.3	V (NW)
S15	26.4 ± 1.3			12.0	NW
S16	28.7 ± 1.4	0.039 ± 0.021	1.11 ± 0.53	21.7	NW
S32	29.3 ± 1.5	0.038 ± 0.022	1.05 ± 0.60	19.6	S
S33	37.9 ± 1.9	0.077 ± 0.023	1.64 ± 0.49	4.6	V (NW)
S34	29.5 ± 1.5			3.7	V (NW)
S35	23.4 ± 1.4	0.372 ± 0.119	12.9 ± 4.13	3.4	V (NW)
S36	28.7 ± 1.2	0.256 ± 0.123	7.23 ± 3.47	3.9	V (NW)
S37	33.1 ± 1.7	1.078 ± 0.216	26.3 ± 5.27	4.5	V (W)
S38	28.4 ± 1.4			5.3	V (W)
S44	24.6 ± 1.2	0.552 ± 0.260	18.2 ± 8.56	22.2	SW
S45	27.6 ± 1.4	0.055 ± 0.032	1.62 ± 0.95	16.3	SW
S46	38.0 ± 1.9	0.180 ± 0.050	3.84 ± 0.95	3.4	V (SW)
S47	24.5 ± 1.2	0.729 ± 0.299	24.2 ± 9.90	4.2	V (SW)
S48	30.4 ± 1.5			5.2	V (S)

Table 2-3 ^{36}Clを測定した地点の ^{129}I、$^{129}I/^{131}I$

$^{129}I/^{131}I$ 比は 2011 年 3 月 11 日に補正した。

Sample ID	^{129}I (mBq/kg)	$^{129}I/^{131}I$ (atoms/atoms)
S8	1.18.E+01	30.2 ± 0.6
S14	1.27.E+00	26.5 ± 0.9
S15	6.65.E+00	21.6 ± 0.4
S16	2.55.E+01	24.4 ± 0.4
S32	1.51.E+01	34.1 ± 0.6
S33	8.88.E+00	33.9 ± 0.7
S34	8.85.E+00	29.2 ± 0.6
S35	3.59.E+01	23.7 ± 0.4
S36	6.31.E+00	16.9 ± 0.3
S37	7.81.E+01	23.3 ± 0.4
S38	2.67.E+01	26.5 ± 0.5
S44	1.59.E+00	29.8 ± 1.0
S45	1.59.E+00	23.7 ± 0.7
S46	2.03.E+01	25.3 ± 0.4
S47	8.27.E+01	21.7 ± 0.3
S48	1.85.E+01	26.3 ± 0.5

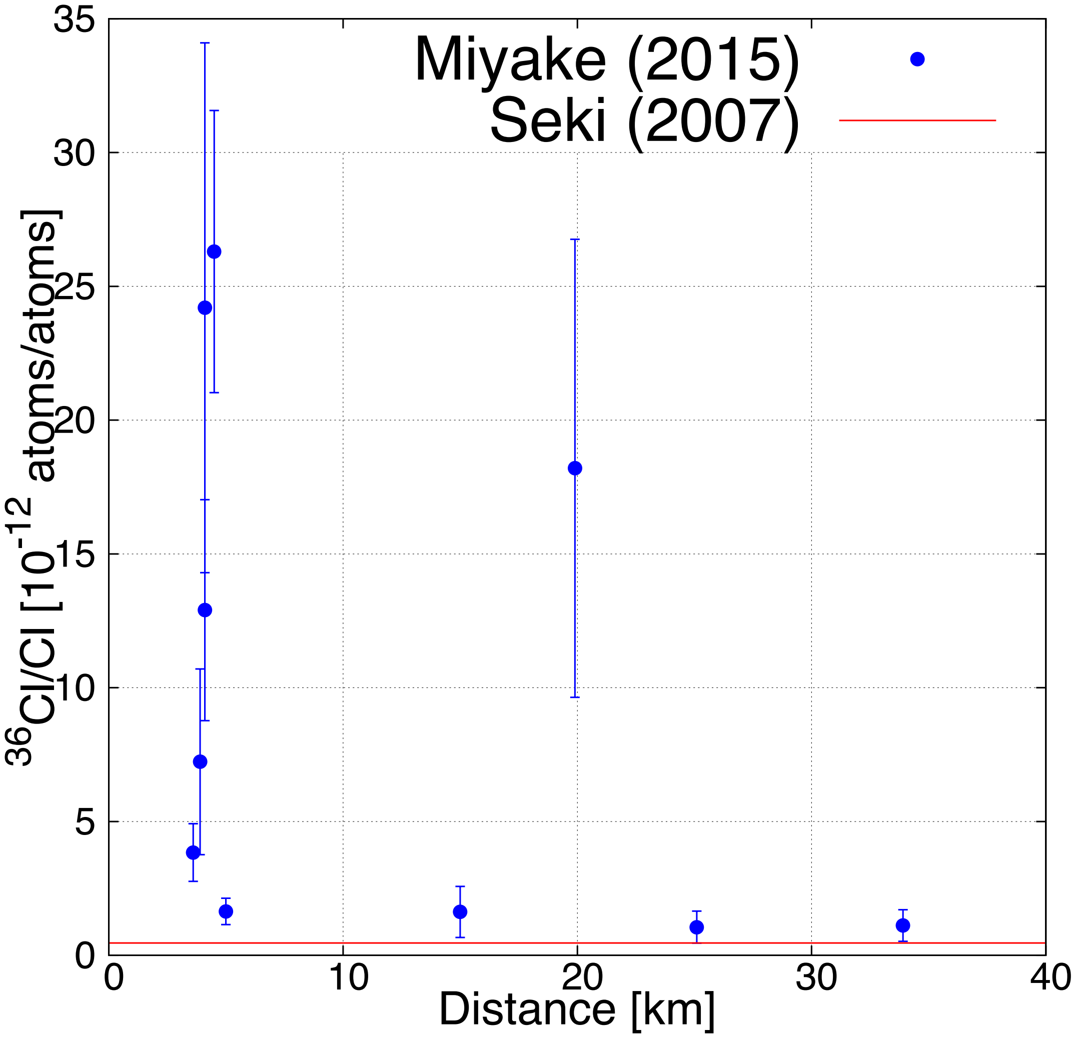


Figure 2-3 原発からの距離と ^{36}Cl/Cl 同位体比の関係[4, 43]

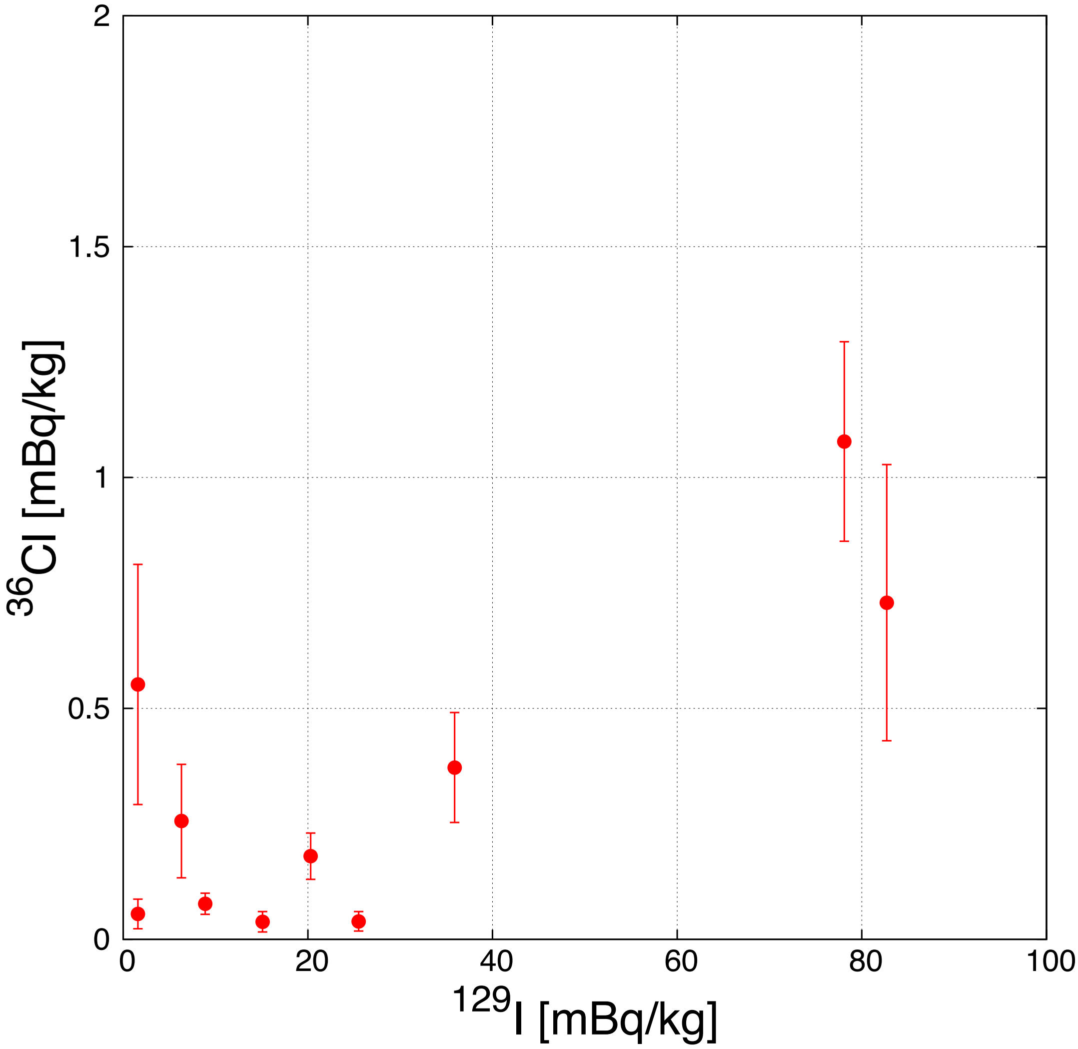


Figure 2-4　^{36}Cl と ^{129}I の濃度の比較

2.5. ^{36}Cl の起源

今回観測された ^{36}Cl の起源は主に 2 つあると考えられ、(1)炉内で事故前に生成・蓄積されていた ^{36}Cl と(2)事故後海水中の ^{35}Cl を起源として新たに生成した ^{36}Cl である。

2.5.1. 事故前に生成・蓄積されていた ^{36}Cl

炉内には原子炉内の冷却材中に不純物として含まれる ^{35}Cl から生成する ^{36}Cl が存在している。^{36}Cl の濃度は 1×10^{-6} Bq/mL であり、これは 1×10^{7} atoms/ml と等しい[37]。冷却材中の塩素濃度を 1 ppb と仮定すると、冷却材中の ^{36}Cl/Cl 比は 10^{-5} に相当し、環境中の ^{36}Cl/Cl 比よりも極めて高い。したがって、炉内の ^{36}Cl が環境中に漏出した場合、環境中の安定塩素によって希釈されるが、事故前よりも高い ^{36}Cl/Cl 比を示す可能性がある。

2.5.2. 事故後海水中の ^{35}Cl から新たに生成した ^{36}Cl

事故当時、炉心冷却のために海水注入が行われたため、中性子場が存在すれば、海水中の ^{35}Cl を起源として ^{36}Cl が新たに生成した可能性が考えられる。

事故当時の 2011 年 3 月 13 日早朝、3 月 14 日夜から 3 月 15 日未明にかけて 2 つの期間に福島第一原子力発電所構内の正門付近のモニタリングカーで中性子が検出された[44]。検出された中性子の線量率は 0.01 μSv/h と 0.02 μSv/h と非常に小さく、検出された場所も原子炉建屋から約 1 km の距離とかなり離れていたため、原子炉から直接飛来した中性子が検出されたわけではないと考えられている。

東京電力によると、中性子は注水による原子炉圧力の上昇が始まった後に検出されており、注水に伴う水−ジルコニウムが反応から燃料が溶融し、ウランやプルトニウムなどのアクチノイドが放出され、これらの自発核分裂により放出された中性子が検出された可能性がある[44]。

計測された中性子は、原子炉内で生成した中性子が計測された訳ではないと考えられるため、事故後に ^{35}Cl から中性子捕獲反応により ^{36}Cl が生成した可能性は少なく、今回検出された ^{36}Cl は運転中に炉内に蓄積されたものが放出されたものと考えられる。

2.6. MALT における ^{36}Cl-AMS の現状

最後に、実験を行った MALT における ^{36}Cl-AMS の現状について述べる。^{36}Cl-AMS では GFM とガスカウンターを組み合わせて同重体である ^{36}S の分離が行われる。しかしながら、GFM 内でイオンビームは内部のガスと衝突し、散乱してしまうことにより測定効率が減少する。

Figure 2-5 は ^{36}Cl/Cl 比が $1 \times 10^{-14} \sim 1 \times 10^{-11}$ までの標準試料を測定した時の検量線とそれぞれの点における測定効率を示したものである[13]。測定条件は加速電圧 5 MV、加速後の ^{36}Cl の電価は 7 価が選択された。

タンデム加速器内の荷電変換では 1 価の負イオンが多価の正イオンに変換されるが、その際の電価ごとに生成する正イオンの割合はチャージフラクションと呼ばれる。加速電圧 5 MV における Cl の荷電変換では 4 価が最大であり、5

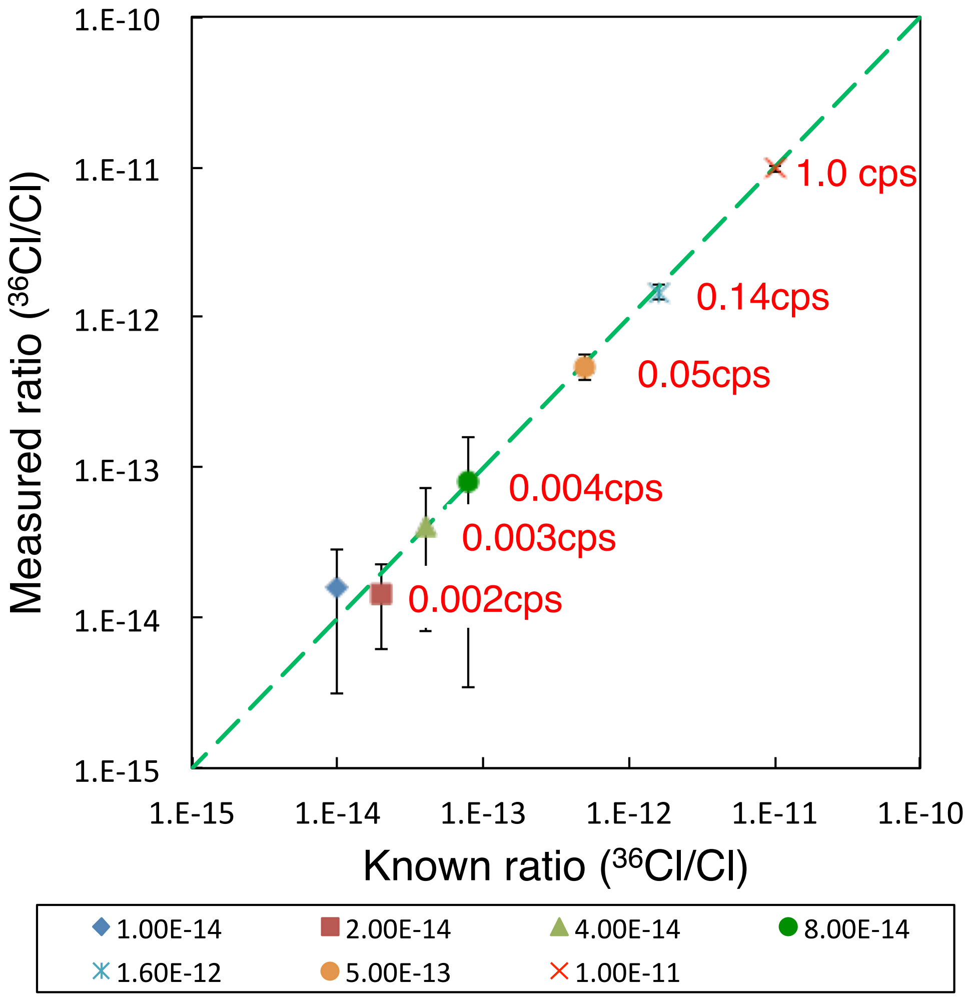


Figure 2-5 7 価 5 MV での ^{36}Cl 標準試料の測定結果[13]

価、6 価、7 価と価数が大きくなるほどチャージフラクションは小さくなる。したがって、価数が大きいほど測定効率が向上すると考えられるが、加速後のイオンのエネルギーはそれぞれ 25 MeV (4 価)、30 MeV(5 価)、35 MeV (6 価)、40 MeV(7 価)と小さくなってしまう。そのため、GFM 通過後にガスカウンターに入射する際のエネルギーも小さくなり、ガスカウンター内での ^{36}Cl と ^{36}S のエネルギー損失の差が小さくなり分離が困難となる。

本研究では測定効率向上のため 6 価を選択したが、検出限界を下げるためには 7 価を選択する方が望ましい。しかしながら、7 価で測定すると検出限界である ^{36}Cl/Cl 比が 1×10^{-14} の試料を測定する際、測定効率が 0.002 cps となり極めて低下してしまう。6 価のチャージフラクションは 7 価の 2.8 倍であるが、測定効率は最大でも 3 倍程度であり、測定効率を低下させず ^{36}Cl の測定を行うことが可能な測定システムの構築が必要である。

2.7. 2 章のまとめ

本章では ^{36}Cl の測定の実例として、福島第一原子力発電所周囲で採取された土壌中の ^{36}Cl の測定を試みた。測定の結果、16 試料のうち 10 試料から有意な値が得られ、塩素同位体比(^{36}Cl/Cl 比)は$(1.05 \pm 0.60) \times 10^{-12}$から$(2.63 \pm 0.54) \times 10^{-11}$となった。事故前の福島第一原子力発電所周囲の土壌中の ^{36}Cl/Cl 比は 4.6×10^{-13} であり、事故前のバックグラウンドよりも高い ^{36}Cl/Cl 比が観測された。

分析した土壌はすでに ^{129}I を測定済みのものであり、^{36}Cl と ^{129}I は正の相関を示し、^{36}Cl の濃度が高かった地点では ^{129}I の濃度も同様に高かった。これは、ヨウ素と塩素はともにハロゲンであり、揮発性も高いため炉内から放出された後、環境中で近い挙動を示すためであると考えられる。

検出された ^{36}Cl の起源は冷却材中に不純物として含まれる ^{35}Cl が放射化して生成された ^{36}Cl と考えられ、事故前に炉内に蓄積していたものが環境中に漏洩したと予想される。

しかしながら、処理可能な土壌試料量が限られていたことやガス充填型電磁石を使用したことによる測定効率の低下の影響により、得られた結果には 20 % ~ 60 %の比較的大きな誤差が見られた。^{36}S の干渉が大きく測定できなかった試料もあり、^{36}Cl の測定による事故の影響評価に向けて、少ない試料量で測定効率を低下させず ^{36}Cl の測定を行うことが可能な測定システムの構築が必要である。

3. 負イオン減速チャンバーの設計と製作

本章ではレーザー光脱離法による同重体の抑制効果を高めるための負イオン減速チャンバーの設計と製作について述べる。まずはレーザー光脱離法の原理について述べ、レーザー光脱離法におけるイオンビームの減速の重要性について説明する。次に、本研究ではイオンビームの減速・集束方法として、電場による減速とガスとの衝突による減速を採用しており、それぞれの原理について説明する。そして、負イオン減速チャンバーの設計について述べた後、設計したチャンバーを導入した際の同重体抑制効果について、シミュレーションによる計算から推定する。

3.1. レーザー光脱離法の原理

3.1.1. 電子親和力の定義

安定な負イオンを形成するためには、その結合エネルギーの和がもとの中性原子の結合エネルギーの和よりも大きくなる必要がある。今、Z 個の電子を持つ中性原子 N に電子が付与されることにより、負イオン N^-が形成される場合を考える。

E_i^0: 電子付与前の i 個目の電子の結合エネルギー

E_i^-: 電子付与後の i 個目の電子の結合エネルギー

E_1: 付与される電子の結合エネルギー

とすると、以下の条件が負イオンの形成には必要である。

$$E_1 + \sum_{i=1}^{Z} E_i^- > \sum_{i=1}^{Z} E_i^0 \tag{3-1}$$

$$E_1 - \sum_{i=1}^{Z} (E_i^0 - E_i^-) > 0 \tag{3-2}$$

式(3-2)の左辺を電子親和力(Electron Affinity, EA)と呼び、中性原子が負イオンになる時に生じるエネルギーを指す。また、EA はイオンから最も弱く結合している電子を剥ぎ取るために必要なエネルギーと等しく、このエネルギーは detachment energy と呼ばれる。EA が正である時、その負イオンが安定であることを表す[45]。

3.1.2. 光脱離(photo-detachment)

光脱離とは、負イオンが光子を吸収し、電子を放出して中性原子となる反応である。前節で考えた負イオン N^-にエネルギーhν の光子が吸収されることを考える。このとき放出される電子の運動エネルギーを K とすると、エネルギー保存則より以下の関係が成り立つ。

$$X^- + h\nu \rightarrow X + e^- \tag{3-3}$$

$$-\left(E_1 + \sum_{i=1}^{Z} E_i^-\right) + h\nu = -\sum_{i=1}^{Z} E_i^0 + K \tag{3-4}$$

式(3-2)、(3-4)より、電子の運動エネルギーは次のように計算される。

$$\begin{aligned} K &= h\nu - \left(E_1 + \sum_{i=1}^{Z} E_i^-\right) + \sum_{i=1}^{Z} E_i^0 = h\nu - \left(E_1 - \sum_{i=1}^{Z} (E_i^0 - E_i^-)\right) \\ &= h\nu - EA \end{aligned} \tag{3-5}$$

光脱離が起きる場合、放出される電子の運動エネルギーK は正である必要があるため、光脱離が起きる条件は

$$K = hv - EA > 0 \Leftrightarrow hv > EA \tag{3-6}$$

となる。つまり、負イオンの電子親和力よりも大きいエネルギーの光子を負イオンに吸収させると、光脱離が生じ、負イオンが中性原子になる。

このことから、脱離した光電子のエネルギーを測定することにより正確な電子親和力を調べることが可能である。光電子のエネルギーは静電偏向器や飛行時間測定法(TOF; Time-of-flight)で分析され、前者では負イオン源で生成したイオンビームと連続レーザーを作用させ、生じた光電子のエネルギーを静電偏向器で分析し、マイクロチャンネルプレートで検出する方法が取られている。TOF の場合、パルス状のイオンビームにパルスレーザーを作用させ、生じた光電子の飛行時間がエネルギーによって異なることを利用し、光電子のエネルギーが測定されている[46]。

3.1.3.　レーザー光脱離による同重体の分離

式(3-6)に示した通り、負イオンの電子親和力よりも大きいエネルギーの光子が負イオンに吸収された時、光脱離反応が起こり負イオンは中性化される。逆に、光子のエネルギーが電子親和力よりも小さい場合、光脱離反応は起こらない。

AMSにおいて同重体核種N_1と測定対象核種N_2の電子親和力がそれぞれEA_1、EA_2であり、$EA_1 < EA_2$である場合を考える(Fig. 3-1)。EA_1よりも大きいがEA_2よりも小さいエネルギーのレーザーがN_1とN_2が混在する負イオンビームと相互作用した時、光脱離反応により同重体のみが選択的に中性化される。一方、測定対象核種については、光脱離反応は生じず負イオンのままである。したがって、光脱離反応後に電磁石や静電偏向器などを設置すれば、荷電粒子と中性粒子として測定対象核種と同重体核種を分離することが可能である(Fig. 3-2)。この手法はレーザー光脱離法(Laser photo-detachment)と呼ばれる[22]。

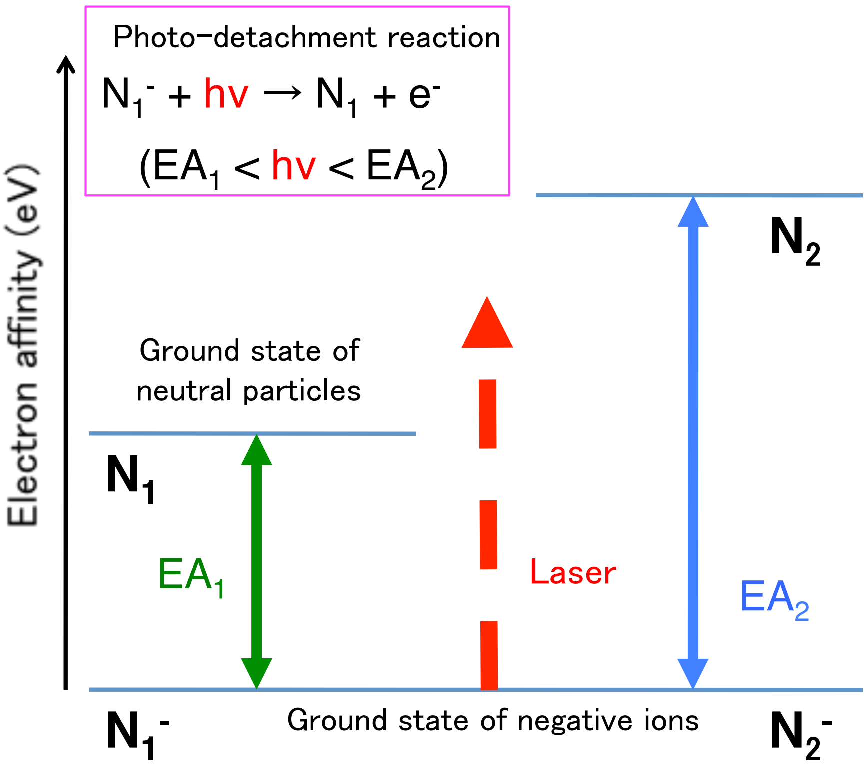


Figure 3-1 レーザー光脱離反応の概要

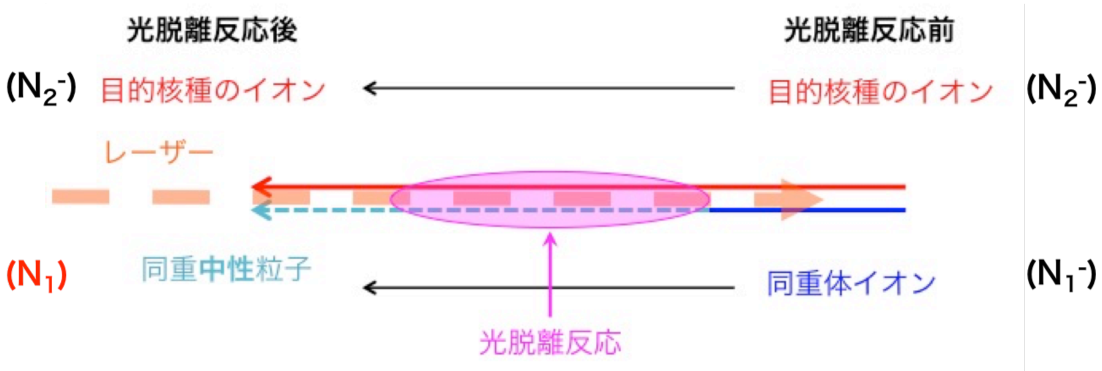


Figure 3-2 レーザー光脱離法による同重体の分離

3.1.4. レーザー光脱離による同重体の抑制率

イオンビーム中のイオンの密度を N (1/cm^3)、イオンの断面積を σ (cm^2)、イオンビームの断面積を S_1(cm^2)、単位時間当たりのイオンビームの長さを D (cm)とする。また、レーザーのフラックスを Φ (photons/cm^2/s)、断面積を S_2 (cm^2)とする(Fig. 3-3)。

イオンと光子が衝突した時に光脱離反応が起こるとすると、イオンと入射した光子が衝突する確率は、イオンビームの断面におけるイオンが占める割合と等しくなる。また、光脱離反応はレーザーが存在する範囲でしか起こらないため、レーザーの断面積 S_2 内に存在するイオンの数を考える。長さ D のイオンビーム中に存在するイオンの数は NS_2D であるから、イオンビームの断面において、イオンが占める割合は

$$\frac{\sigma NS_2D}{S_1} = \sigma ND\frac{S_2}{S_1} \tag{3-7}$$

で表される。

単位時間に入射する光子数は ΦS_2 なので、単位時間当たりのイオンと光子の衝突数は

$$\Phi S_2 \cdot \sigma ND\frac{S_2}{S_1} = \sigma\Phi ND\frac{S_2^2}{S_1} \tag{3-8}$$

となる。イオンと光子の衝突数は光脱離反応が起こる回数と等しいから、単位

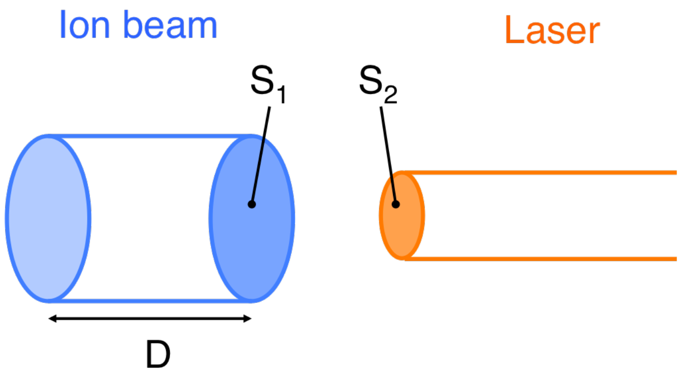


Figure 3-3 イオンビームとレーザーの反応

体積当たりの光脱離反応回数を R とすると、R は次のように計算される。

$$R = \frac{\sigma\Phi ND\frac{S_2^2}{S_1}}{S_2 D} = \sigma\Phi N\frac{S_2}{S_1} \tag{3-9}$$

・$S_1 = S_2$ の場合

イオンビームの断面積(S_1)とレーザーの断面積(S_2)が等しい場合、式(3-9)は次のように書くことができる。

$$R = \sigma\Phi N \tag{3-10}$$

R は単位体積当たりに光脱離反応により中性化される負イオンの数に等しいから、イオンビーム中のイオンの数の時間変化は

$$\frac{d(NDS_1)}{dt} = -RDS = -\sigma\Phi N \cdot DS_1 \tag{3-11}$$

$$\frac{dN}{dt} = !\ \sigma''\ N \tag{3-12}$$

と表せる。したがって、光脱離反応前($t = 0$)のイオンの密度を N_0 ($1/cm^3$)とすると、光照射開始後のイオン数は

$$N = N_0 \exp(-\sigma\Phi t) \tag{3-13}$$

と書くことができる。

　また、光脱離反応の抑制率 S は

$$S = 1 - \frac{N}{N_0} = 1 - \exp(-\sigma\Phi t) \tag{3-14}$$

と表される。

・$S_1 > S_2$ の場合

　レーザーの断面積がイオンビームの断面積より小さい場合、光脱離反応はレーザーが存在する領域のみで生じる。そのため、式(3-11)及び(3-12)は次のように表される。

$$\frac{d(NDS_1)}{dt} = -\sigma\Phi N \frac{S_2}{S_1} \cdot DS_1 \tag{3-15}$$

$$\frac{dN}{dt} = -\sigma\Phi N \frac{S_2}{S_1} \tag{3-16}$$

この時、式(3-13)及び(3-14)も次のように書くことができる。

$$N = N_0 \exp(-\sigma\Phi \frac{S_2}{S_1} t) \tag{3-17}$$

$$S = 1 - \frac{N}{N_0} = 1 - \exp(-\sigma\Phi \frac{S_2}{S_1} t) \tag{3-18}$$

　光脱離反応の反応断面積は核種によらず 10^{-17} cm^2 程度であるため、抑制率 S はレーザーのフラックス Φ とイオンとレーザーの相互作用時間 t に依存する[22]。したがって、光脱離反応により同重体を抑制するには、大強度のレーザーを用いて、さらにレーザーとイオンの相互作用時間を増加させることが効果的である[24 – 27]。

Figure 3-4 はレーザーとイオンビームの相互作用時間とレーザー強度を変えた場合の、同重体の抑制率の変化を示したものである。同じレーザーの強度に着目すると、相互作用時間が長くなるほど抑制率が高くなることが分かる。同様に、レーザーとイオンビームの相互作用時間が一定の場合、レーザーの強度が大きいほど抑制率が高くなる。実際にはレーザーの強度を無限に大きくできる訳ではないため、効果的な同重体の抑制にはイオンビームを減速して相互作用時間を稼ぐことが重要になる。

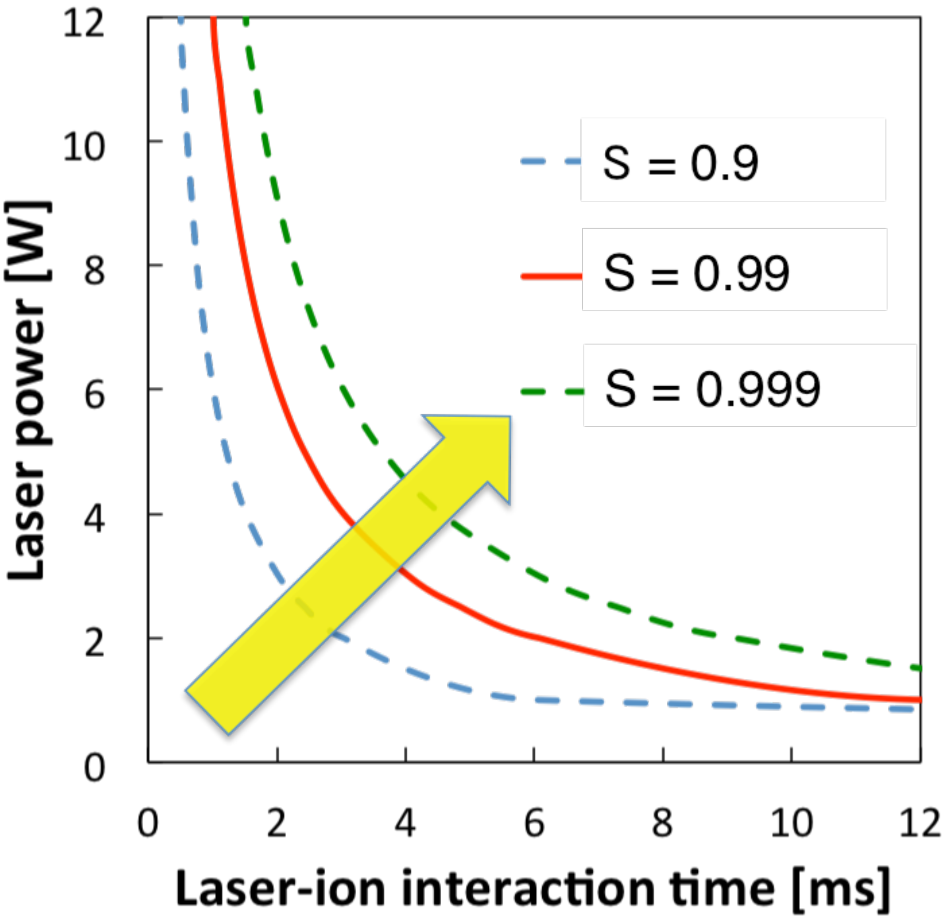


Figure 3-4 レーザー強度、相互作用時間に対する抑制率の違い

3.2. 電場によるイオンビームの加速・減速と集束

3.2.1. 電場中のイオンの運動方程式

本研究で扱うイオンビームのエネルギーは高くても数十 keV のものであり、光速より十分遅いため、計算では非相対論として扱う。

質量 m、電荷 q のイオンがある電場の中を移動する時、イオンの運動方程式は次のように表される。

$$\frac{d}{dt}(m\vec{v}) = q\vec{E} \tag{3-19}$$

電場 E と電位 V の関係は $\vec{E} = -\nabla V$ であるため、式(3-19)は次のように表される。

$$\frac{d}{dt}(m\vec{v}) = q\vec{E} = -q\nabla V \tag{3-20}$$

式(3-19)より、電場中でのイオンの加速度は $\frac{d\vec{v}}{dt} = \frac{q\vec{E}}{m}$ で表され、イオンの電荷が正である時、進行方向の電場中ではイオンは加速し、進行方向と反対向きの電場中ではイオンは減速する。イオンの電荷が負である場合は逆になる。

3.2.2. イオンの軌道の近軸近似

イオンビームの減速による集束を、近軸近似を用いて説明する。イオンビームの中心軸を光軸とすると、近軸とは光軸となす角が小さく、経路が光軸の近くを通る光線のことである。 Fig. 3-5 のようにイオンビームの断面 P1 と P2 について、光軸と近軸の距離を x_1、x_2、断面 P1 と P2 における光軸と近軸の角度を α_1、α_2 とする。光軸の進行方向に z 軸を取ると、α と x の関係は次のように書くことができる。

$$\tan\alpha = \frac{dx}{dz} \tag{3-21}$$

特に、近軸の場合には $\tan\alpha \approx \alpha$ が成り立つ。この時、$(x_1, \frac{dx_1}{dz})$と$(x_2, \frac{dx_2}{dz})$の関係はある行列を用いて次のように表される。

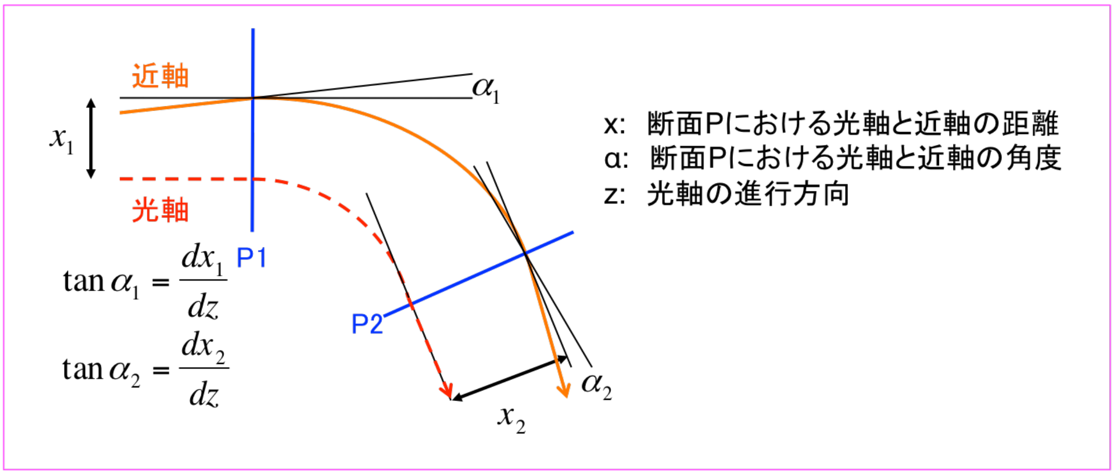


Figure 3-5 近軸近似

$$\begin{pmatrix} x_2 \\ \dfrac{dx_2}{dz} \end{pmatrix} = R \begin{pmatrix} x_1 \\ \dfrac{dx_1}{dz} \end{pmatrix} \tag{3-22}$$

この行列 R は伝送行列(Transfer matrix)と呼ばれ、断面間の Transfer matrix を求めることで、イオンビームの拡がりの変化を評価することが可能である[47]。

3.2.3. 近軸軌道方程式 (paraxial ray equation)

近軸軌道方程式の導出及びその解法は[48, 49, 50]に従った。イオンの動径方向に x、y 軸を取りイオンの進行方向を z 軸とすると、式(3-20)の各成分は次のように書くことができる。

$$\frac{d}{dt}(mv_x) = -q\frac{\partial V}{\partial x} \tag{3-23}$$

$$\frac{d}{dt}(mv_y) = -q\frac{\partial V}{\partial y} \tag{3-24}$$

$$\frac{d}{dt}(mv_z) = -q\frac{\partial V}{\partial z} \tag{3-25}$$

ここで、x 方向と y 方向はイオンの進行方向に対して回転対称であるため、今後の議論では x 軸についてのみ扱う。

z 方向について以下のように d/dt を v_z で表すことを考える。

$$v_z = \frac{dz}{dt} \to \frac{d}{dt} = v_z \frac{d}{dz} \tag{3-26}$$

この時、

$$v_x = \frac{dx}{dt} = v_z \frac{dx}{dz} = v_z x', \quad v_y = v_z \frac{dy}{dz} = v_z y' \tag{3-27}$$

$$v^2 = v_x^2 + v_y^2 + v_z^2 = v_z^2\left(1 + x'^2 + y'^2\right) \tag{3-28}$$

と変形できる。ここで、式(3-23)を式(3-27)により書き換えると、

$$\frac{d}{dt}\left(m v_z x'\right) = -q\frac{\partial V}{\partial x} \tag{3-29}$$

となる。左辺を計算すると

$$x'\frac{d}{dt}\left(m v_z\right) + m v_z x'' = -q\frac{\partial V}{\partial x} \tag{3-30}$$

の関係が得られ、式(3-30)に式(3-23)を代入すると、

$$x'\left(-q\frac{\partial V}{\partial z}\right) + m v_z^2 x'' = -q\frac{\partial V}{\partial x} \tag{3-31}$$

したがって、式(3-28)と式(3-31)から x 方向と y 方向に関する近軸軌道方程式(paraxial ray equation)が次のように得られる。

$$x'' = \frac{q}{mv^2}\left(1 + x'^2 + y'^2\right)\left(x'\frac{\partial V}{\partial z} - \frac{\partial V}{\partial x}\right) \tag{3-32}$$

$$y'' = \frac{q}{mv^2}\left(1 + x'^2 + y'^2\right)\left(y'\frac{\partial V}{\partial z} - \frac{\partial V}{\partial y}\right) \tag{3-33}$$

円筒座標系において電位は$V(r,\varphi,z)$で表される。回転対称系であるから電位はφに依存しないため、V は r と z の関数で表すことができる。円筒電極において、内部に電荷が存在しないため、電位$V(r,z)$はラプラス方程式を満たす。円筒座標系におけるラプラス方程式は、回転対称系を考慮して、

$$\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial V}{\partial r}\right) + \frac{\partial^2 V}{\partial z^2} = 0 \tag{3-34}$$

と書くことができる。

電位は軸からの距離 r のべき級数として書くことができ、軸上の電位を V(z) として r についてのべき級数展開を次のように書く。

$$V(r,z) = \sum_{n=0}^{\infty} V(z) r^n \tag{3-35}$$

式(3-35)を式(3-34)に代入すると、動径方向の電位分布は

$$V(r,\varphi,z) = V(z) - \left(\frac{r}{2}\right)^2 \frac{d^2V}{dz^2} + \frac{1}{(2!)^2}\left(\frac{r}{2}\right)^4 \frac{d^4V}{dz^4} + \cdots = \sum_{n=0}^{\infty}(-1)^n \frac{V^{(2n)}}{(n!)^2}\left(\frac{r}{2}\right)^{2n} \tag{3-36}$$

と表すことができる。直交座標系では

$$V(x,y,z) = V(z) - \frac{x^2 + y^2}{4}\frac{d^2V}{dz^2}\cdots \tag{3-37}$$

となる。

したがって、近軸近似であるから、$x'^2 = \left(\dfrac{dx}{dz}\right)^2 << 1$ かつ $y'^2 = \left(\dfrac{dy}{dz}\right)^2 << 1$ が成り立つため、式(3-37)の最初の 2 項を取り、式(3-32)と式(3-33)に代入すると、次の近軸軌道方程式が得られる。

$$x'' = \frac{q}{pv}\left(x'V' + \frac{x}{2}V''\right) \tag{3-38}$$

$$y'' = \frac{q}{pv}\left(y'V' + \frac{y}{2}V''\right) \tag{3-39}$$

3.2.4. 電場によるイオンビームの集束

今、Fig. 3-6 に示すような電位 V_1、V_2($V_1 < V_2$)の 2 つの円筒電極間を負イオンが通過することを考える。電極間の電位の関係は Fig. 3-7 で与えられ、電位の変化は一様であるとする。

2 つの電極間の z 座標をそれぞれ z_1、z_2 とすると、z_1 及び z_2 における x'の微小な変化は次のように表される。

$$\Delta x' = \lim_{\Delta z \to 0}\int_{z_i-\Delta z}^{z_i+\Delta z} x'' dz = \frac{q}{pv}\lim_{\Delta z \to 0}\int_{z_i-\Delta z}^{z_i+\Delta z}\left(x'V' + \frac{x}{2}V''\right)dz \quad i = 1,2 \tag{3-40}$$

z_1 及び z_2 において、$V' = 0$ であり $\int_{z_i-\Delta z}^{z_i+\Delta z}(x'V')dz$ は無視できるから、式(3-40)は

$$\Delta x' = \frac{qx}{2pv}\lim_{\Delta z \to 0}\int_{z_i-\Delta z}^{z_i+\Delta z} V'' dz \quad i = 1,2 \tag{3-41}$$

と書くことができる。ここで、$\int_{z_i-\Delta z}^{z_i+\Delta z} V'' dz = \left[V'\right]_{z_i-\Delta z}^{z_i+\Delta z}$ であり、$V' = 0 \quad (z \le z_1, z_2 \le z)$ かつ $V' = \dfrac{V_2 - V_1}{L} \quad (z_1 < z < z_2)$ であるから、z_1 と z_2 における $\Delta x'$ は、$pv = mv^2 = 2E$ とすると、

$$z = z_1\text{：}\quad \Delta x' = \frac{qx}{4E_1}\lim_{\Delta z\to 0}\int_{z_i-\Delta z}^{z_i+\Delta z} V'' dz = \frac{qx}{4E_1}\lim_{\Delta z\to 0}\left[V'\right]_{z_i-\Delta z}^{z_i+\Delta z}$$
$$= \frac{qx}{4E_1}\left(\frac{V_2-V_1}{L}-0\right) = \frac{qx}{4E_1}\left(\frac{V_2-V_1}{L}\right) = -\frac{1}{4E_1}\left(\frac{E_2-E_1}{L}\right) \tag{3-42}$$

$$z = z_2\text{：}\quad \Delta x' = \frac{qx}{4E_2}\lim_{\Delta z\to 0}\int_{z_i-\Delta z}^{z_i+\Delta z} V'' dz = \frac{qx}{4E_2}\lim_{\Delta z\to 0}\left[V'\right]_{z_i-\Delta z}^{z_i+\Delta z}$$
$$= \frac{qx}{4E_2}\left(0-\frac{V_2-V_1}{L}\right) = \frac{qx}{4E_2}\left(-\frac{V_2-V_1}{L}\right) = \frac{1}{4E_2}\left(\frac{E_2-E_1}{L}\right) \tag{3-43}$$

となる。ここで、E_1、E_2 は z_1 と z_2 におけるイオンのエネルギーであり、入射イオンが負イオンである場合、$E = -qV$ である。L は z_1 と z_2 の間の距離を示す。

したがって、z_1 では $\Delta x'$ は負となり、イオンビームは集束する。一方、z_2 では $\Delta x'$ は正となりイオンビームは発散する。イオンが z_1 から z_2 に移動する時、イオンのエネルギーは z_1 よりも z_2 においての方が大きいため、z_1 におけるイオンの速度もよりも z_2 における速度の方が大きい。そのため、イオンは発散の作用よりも集束の作用を受ける時間が長くなり、結果としてイオンビームは集束する。$V_1 > V_2$ の場合、イオンビームは減速し、加速の場合とは逆にイオンビームは発散−並進−集束の作用を受ける。この場合においても、集束の作用の方が大きく結果としてイオンビームは集束する。

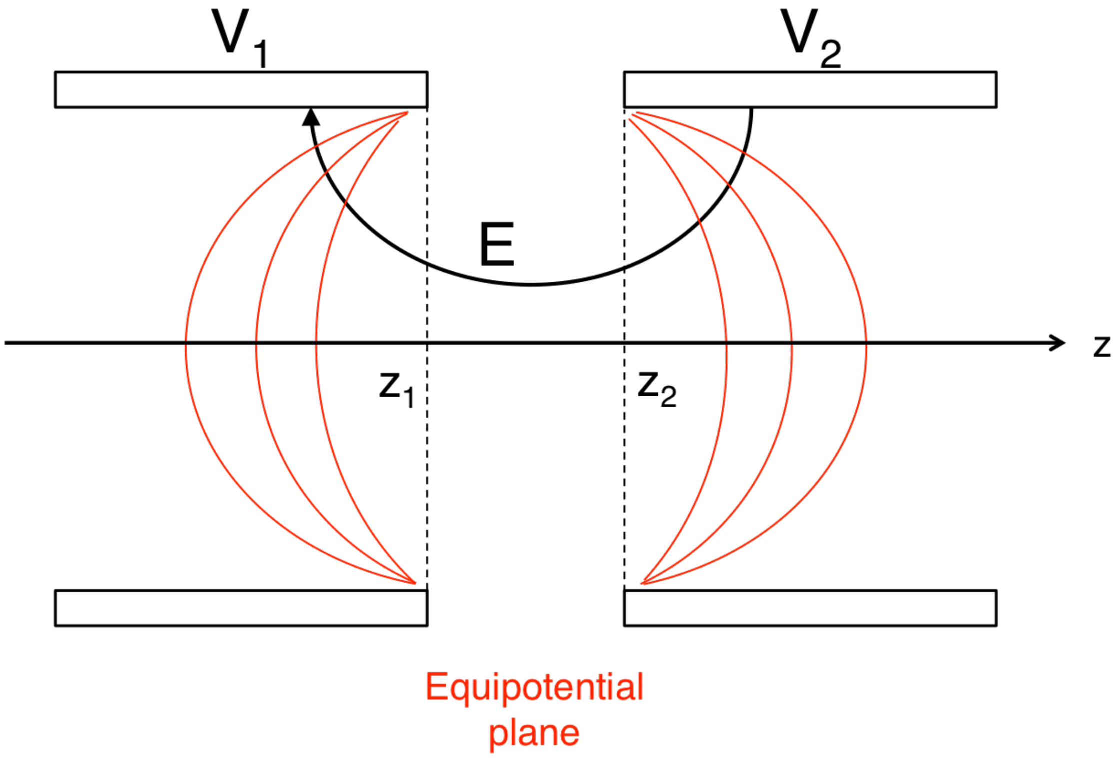


Figure 3-6 円筒電極

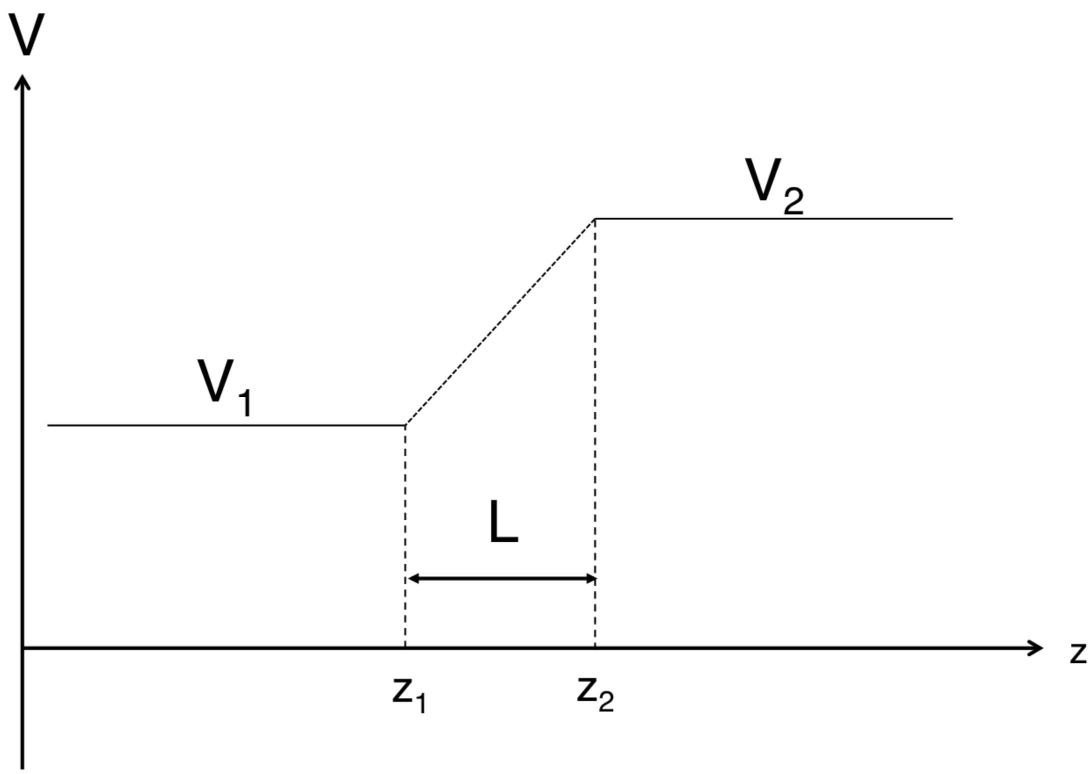


Figure 3-7 電位の関係

3.2.5. 加速・減速における Transfer matrix

式(3-42)と式(3-43)により、電位の変化する地点である z_1 と z_2 における Transfer matrix は次のように表すことができる。

$$z = z_1 : \quad \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\dfrac{1}{4E_1}\left(\dfrac{E_2 - E_1}{L}\right) & 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\dfrac{E_2 / E_1 - 1}{4L} & 1 \end{pmatrix} \tag{3-44}$$

$$z = z_2 : \quad \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ \dfrac{1}{4E_2}\left(\dfrac{E_2 - E_1}{L}\right) & 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ \dfrac{1 - E_1 / E_2}{4L} & 1 \end{pmatrix} \tag{3-45}$$

次に、z_1 から z_2 へイオンが移動する際の x の変化について考える。x の変化は

$$\Delta x = x_2 - x_1 = \int_{z_1}^{z_2} x' dz \tag{3-46}$$

と表される。ここで、z_1 と z_2 の間では $V'' = 0$ であるから、式(3-38)より $x'' / x' = qV' / pv$ が成り立ち、

$$qV' = \frac{d}{dz}(qV) = \frac{d}{dz}(-E) = \frac{d}{dz}(-\frac{1}{2}mv^2) = -v\frac{d}{dz}(mv) = -vp' \tag{3-47}$$

を代入すると、

$$\frac{x''}{x'} = \frac{qV'}{pv} = -\frac{-vp'}{pv} = -\frac{p'}{p} \tag{3-48}$$

が得られる。式(3-48)の両辺を z_1 から z_2 において積分すると、

$$\ln x_1' - \ln x_2' = \ln p_2 - \ln p_1 \Leftrightarrow \frac{x_1'}{x_2'} = \frac{p_2}{p_1} \tag{3-49}$$

となる。したがって、$x' = x_1' p_1 / p$ を式(3-46)に代入すると、

$$\Delta x = x_2 - x_1 = \int_{z_1}^{z_2} x' dz = x_1' p_1 \int_{z_1}^{z_2} \frac{dz}{p} \tag{3-50}$$

が得られる。ここで、$p \sim \sqrt{V}$ であることと、$\dfrac{dV}{dz} = \dfrac{V_2 - V_1}{L}$ から dz を dV で置換すれば、

$$\begin{aligned} x_2 - x_1 &= x_1' \sqrt{V_1} \frac{L}{V_2 - V_1} \int_{z_1}^{z_2} \frac{dV}{\sqrt{V}} \\ &= x_1' \sqrt{V_1} \frac{L}{V_2 - V_1} 2\left(\sqrt{V_2} - \sqrt{V_1}\right) \\ &= x_1' \frac{2L}{1 + \sqrt{V_2 / V_1}} = x_1' \frac{2L}{1 + p_2 / p_1} \end{aligned} \tag{3-51}$$

となる。

$x_2' = x_1' p_1 / p_2 = x_1' \sqrt{V_1 / V_2}$ であるから、z_1 と z_2 間の Transfer matrix は

$$\begin{pmatrix} 1 & \dfrac{2L}{1 + \sqrt{V_2 / V_1}} \\ 0 & \dfrac{1}{\sqrt{V_2 / V_1}} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & \dfrac{2L}{1 + \sqrt{E_2 / E_1}} \\ 0 & \dfrac{1}{\sqrt{E_2 / E_1}} \end{pmatrix} \tag{3-52}$$

と求められる。

以上より、$V_2/V_1 = E_2/E_1 = N$ とすると、円筒電極間をイオンが移動する際の Transfer matrix は式(3-44)、式(3-45)、式(3-52)から次のように表される。

$$
\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ \dfrac{1-1/N}{4L} & 1 \end{pmatrix}
\begin{pmatrix} 1 & \dfrac{2L}{1+\sqrt{N}} \\ 0 & \dfrac{1}{\sqrt{N}} \end{pmatrix}
\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\dfrac{N-1}{4L} & 1 \end{pmatrix}
= \begin{pmatrix} \dfrac{3-\sqrt{N}}{2} & \dfrac{2L}{1+\sqrt{N}} \\ -\dfrac{3}{8}\dfrac{(N-1)(\sqrt{N}-1)}{N}\dfrac{1}{L} & \dfrac{3\sqrt{N}-1}{2N} \end{pmatrix}
\tag{3-53}
$$

式(3-53)から、イオンの集束効果を高めるためには、電極間の距離を小さくすることとNを大きくする、すなわち電極間の電位勾配を大きくすることが有効であると考えられる。

3.3. 高周波四重極の原理

イオンの減速・加速に伴うレンズ効果により、イオンビームをある程度は集束させることは可能であるが、静電場のみでイオンビームを閉じ込めることは不可能である。しかしながら、周期的に変化する交流電場によりイオンビームを閉じ込めることが可能であり、これを利用したものが高周波四重極(RFQ; Radio frequency quadrupole)である。RFQ 内で荷電粒子は周期的に振動するが、電場から受ける力が時間平均すると常に中心軸向きであるため、イオンビームを集束させることが可能である[51]。

RFQ は通常 4 本の双曲型電極で構成され､円柱間の内接円の半径を r_0 とする。向かい合う電極に印加される電圧を $V = \pm(V_{dc} - V_{rf}\cos\omega t)$ とすると、これらにより生じる電位は次のように与えられる(Fig. 3-8)。

$$V(x,y,t) = (V_{dc} - V_{rf}\cos\omega t)\frac{(x^2 - y^2)}{r_0^2} \qquad (3\text{-}54)$$

V_{dc} は DC 電圧、V_{rf} は交流電圧、ω は交流電圧の角周波数を表す。

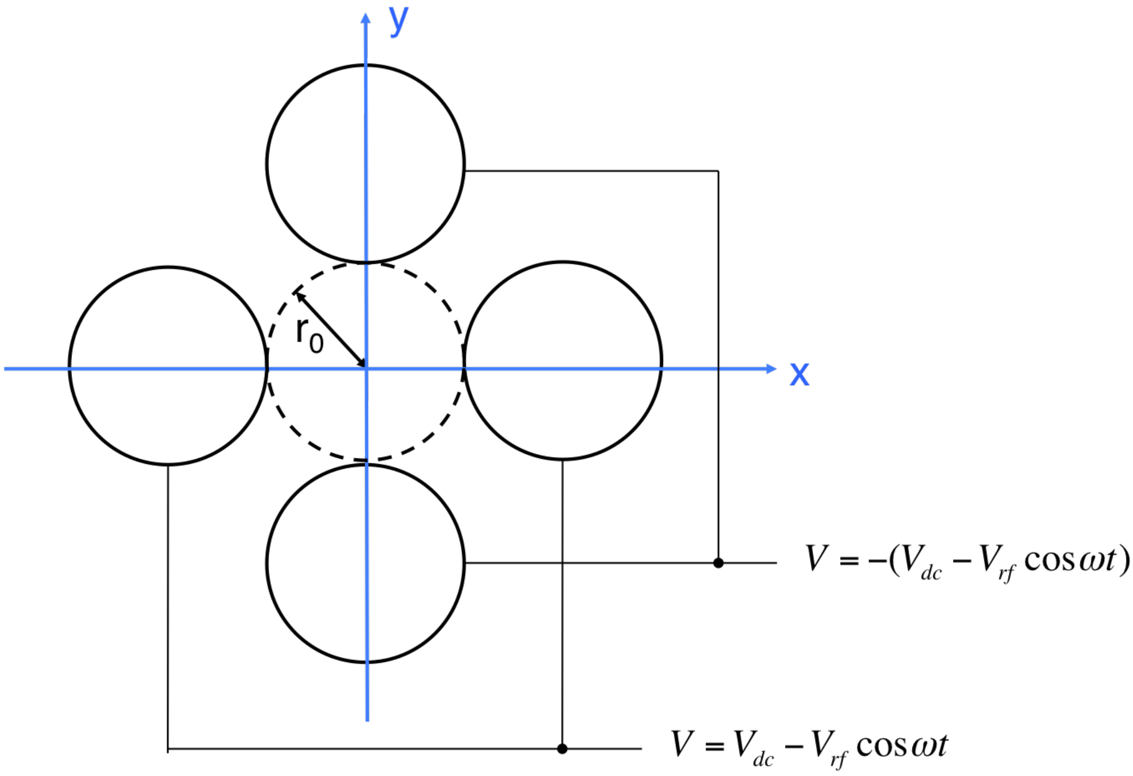


Figure 3-8 RFQ の概要

RFQ 内を z 方向に進むイオンの質量を m、電荷を e とすると、RFQ 内での荷電粒子の運動は次のように表される。

$$m\frac{d^2x}{dt^2} = eE_x = -(V_{dc} - V_{rf}\cos\omega t)\frac{2x}{r_0^2}e \tag{3-55}$$

$$m\frac{d^2y}{dt^2} = eE_y = (V_{dc} - V_{rf}\cos\omega t)\frac{2y}{r_0^2}e \tag{3-56}$$

ここで、

$$\phi = \omega t/2,\quad a = \frac{8eV_{dc}}{m\omega^2 r_0^2},\quad q = \frac{4eV_{rf}}{m\omega^2 r_0^2} \tag{3-57}$$

と置換すると、式(3-55)と(3-56)はそれぞれ

$$\frac{d^2x}{d\phi^2} = -(a - q\cos 2\phi)x \tag{3-58}$$

$$\frac{d^2y}{d\phi^2} = (a - q\cos 2\phi)y \tag{3-59}$$

と書くことができ、得られた微分方程式は Mathieu 方程式と呼ばれる。

Mathieu 方程式は安定解と不安定解を持ち、安定解を持つ時、無限時間の間イオンが一定の振幅を超えない安定軌道をとる[51]。一方不安定解の時、時間とともに振幅が指数関数的に増大し、イオンは発散する。Mathieu 方程式が安定解を持つか不安定解を持つかは a と q の値のみに依存し､安定解を与える a と q の組み合わせは Fig. 3-9 のように図示される。Fig. 3-9 は Mathieu diagram と呼ばれ、$(q, a) = (0.908, 0)$ と $(q, a) = (0.70600, 0.23699)$ 内で囲われた領域内に a と q がある時、イオンは安定し、RFQ 内にトラップされる。

式(3-57)から、a と q の関係が次のように得られる。

$$\frac{a}{2q} = \frac{V_{dc}}{V_{rf}} \tag{3-60}$$

式(3-60)はイオンの質量に関係なく成り立ち、Fig. 3-10 にこの直線を図示すると、すべての質量のイオンはこの直線上に存在することになる。この直線は質量走査線と呼ばれ、DC 電圧と交流電圧の比によって直線の傾きが変わる。$V_{dc}/V_{rf} = 0.16784$ の時、質量走査線は Mathieu diagram の安定領域の頂点を通り、この時、安定解を満たすイオンの質量は一つに限られる。したがって、ある質量のイオンのみを RFQ 内を通過させることができるため、RFQ により質量分析が可能となる[52]。

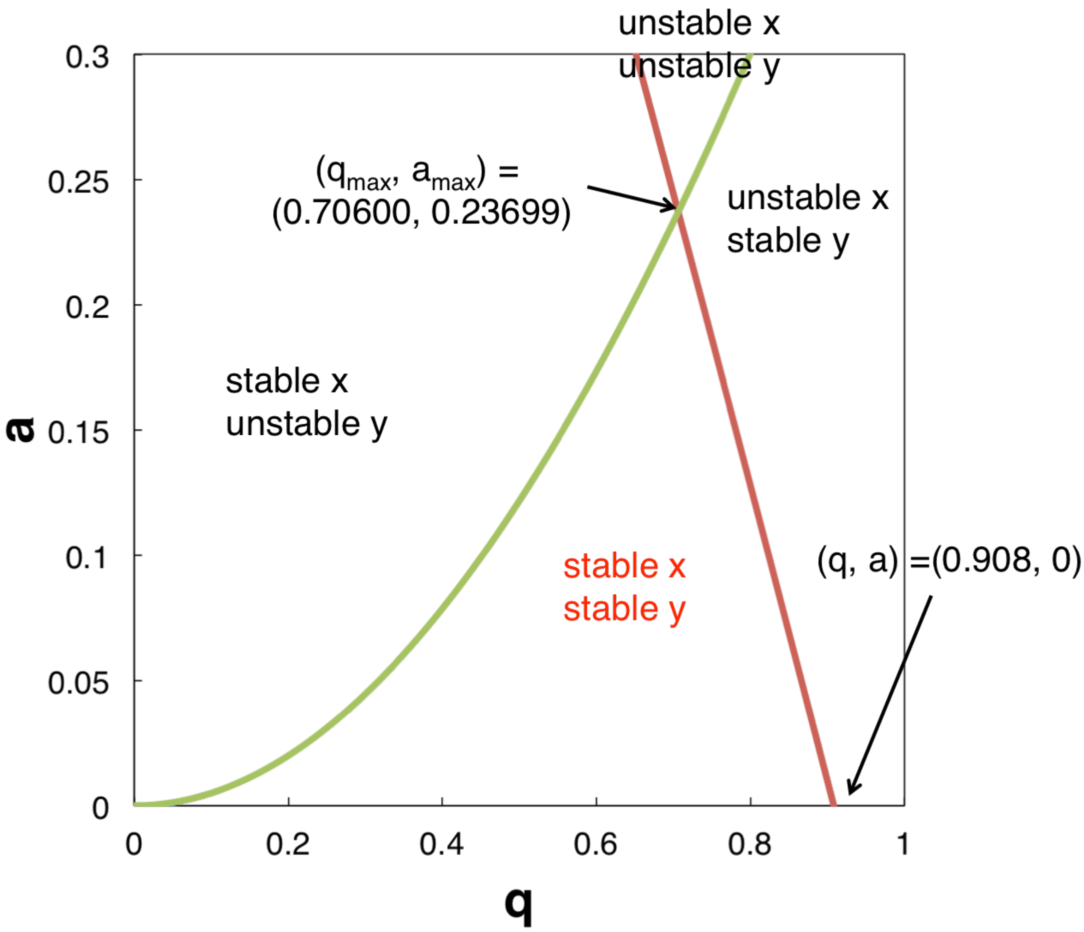


Figure 3-9 Mathieu diagram

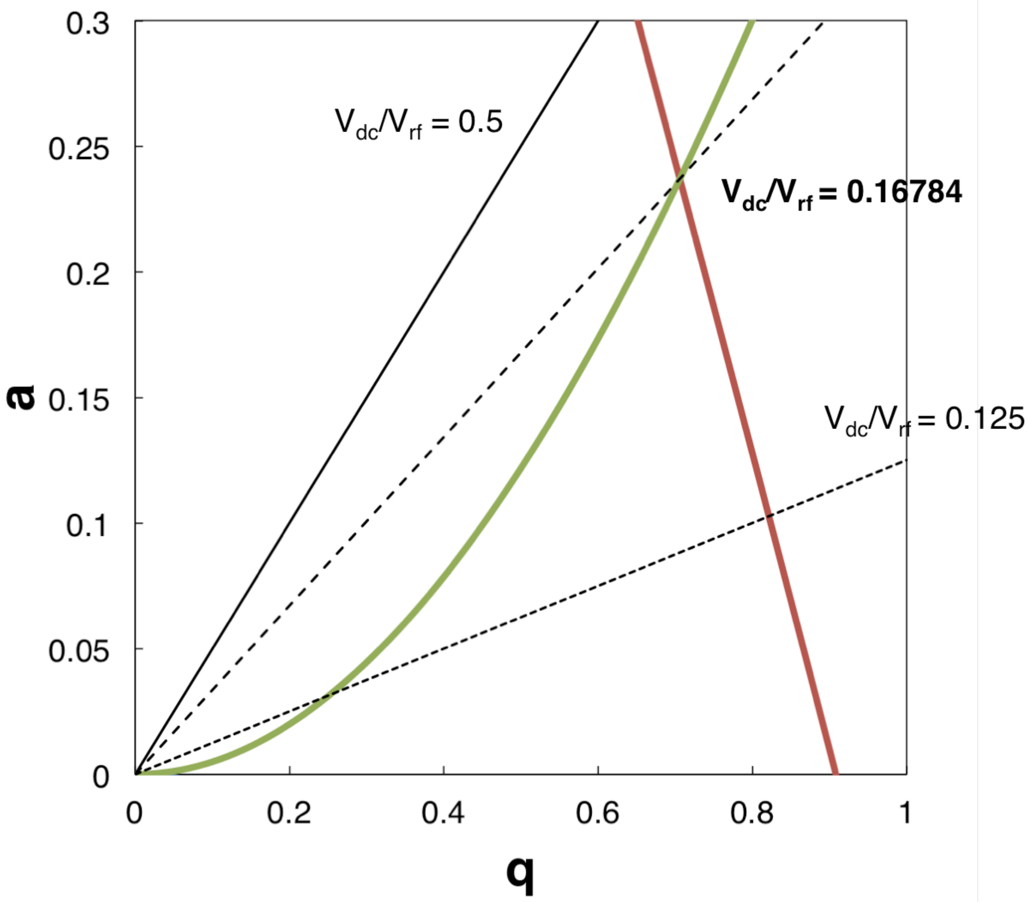


Figure 3-10 質量走查線

3.4. ガス分子との衝突によるイオンの減速と集束

RFQ を質量分析に用いる時と異なり、四重極電極に DC 電圧を印加せず交流電圧のみを加えることを考える。V_{dc} は 0 であるから、式(3-57)より a も 0 になる。この時、Mathieu diagram の $0 \leq q \leq 0.908$ の領域に存在するあらゆる質量のイオンは RFQ 内にトラップされ安定に通過することが可能となる。このことを利用し、イオンビームを輸送するための装置はイオンガイドと呼ばれる。

イオンとガス分子が衝突すると、イオンのエネルギーは減少するが、散乱し透過率が低くなる。RFQ をイオンガイドとして用いた場合も同様の現象が見られると予想されていたが、Douglas と French らによる実験でガス圧を 5×10^{-4} から 5×10^{-3} Torr にした時、イオンビームの透過率が増加することが報告された[53]。この現象は Collisional cooling と呼ばれ、次のような原理で説明される。

Figure 3-11 に示すように、質量 m の負イオンが速さ v_0 で質量 M のガス分子と衝突することを考える。ガス分子の速さは V_0、ガス分子の衝突半径を b とし、衝突後に負イオンとガス分子の速さはそれぞれ v、V となるとする。衝突後に負イオンとガス分子の進行方向が衝突前に対してそれぞれ θ、φ 変化する時、エネルギー保存則及び運動量保存則から以下の式が成り立つ。

$$\frac{mv_0^2}{2} + \frac{MV_0^2}{2} = \frac{mv^2}{2} + \frac{MV^2}{2} \tag{3-61}$$

$$mv_0 - MV_0 = mv\cos\theta + MV\cos\phi \tag{3-62}$$

$$0 = mv\sin\theta - MV\sin\phi \tag{3-63}$$

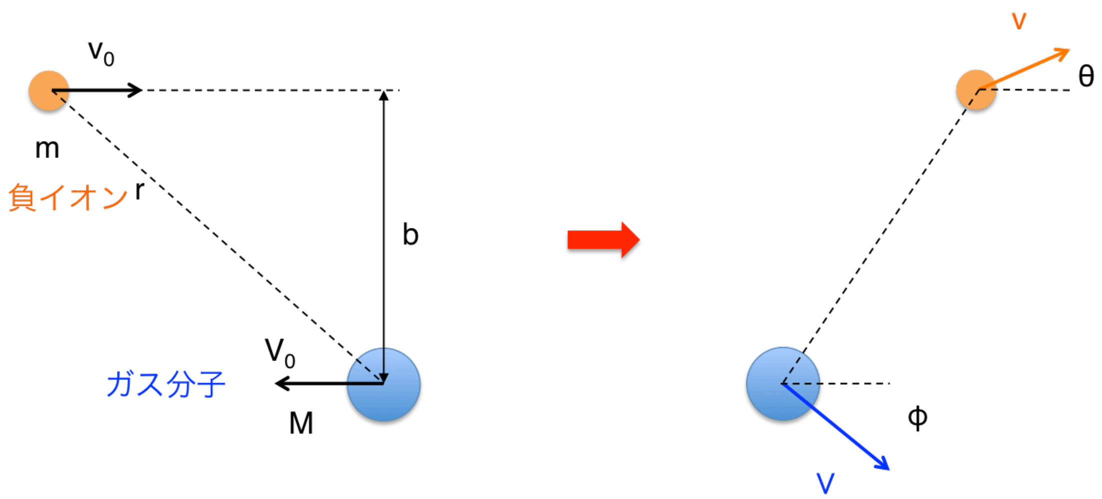


Figure 3-11 イオンとガス分子の衝突

室温での衝突を考えた場合、入射するイオンのエネルギーが数十 eV であることに対し、ガス分子の速度は~ 0.01 eV である。そのため、イオンの速度に対し、ガス分子の速度は十分小さいため、イオンに対しガス分子はほぼ静止しているとみなすことができる。$V_0 = 0$ とすると、式(3-61)、(3-62)、(3-63)から、衝突後のイオンとガス分子のそれぞれの速度は次のように計算される。

$$\left(\frac{v}{v_0}\right)^2 - 2\frac{v}{v_0}\frac{m}{m+M}\cos\phi - \frac{M-m}{M+m} = 0 \tag{3-64}$$

$$v^2 = v_0^2\left(1 - \frac{4Mr^2}{mM}\cos^2\phi\right) \tag{3-65}$$

$$V = 2v_0\frac{Mr}{M}\cos\phi \tag{3-66}$$

ここで、$Mr = \dfrac{mM}{m+M}$ のことを換算質量(reduced mass)という。

衝突前の入射イオンの運動エネルギーを K_0、衝突後の運動エネルギーを K とすると、式(3-65)から、K は次のように表される。

$$K = \frac{1}{2}mv^2 = \frac{1}{2}mv_0^2\left(1 - \frac{4Mr^2}{mM}\cos^2\phi\right) = K_0\left(1 - \frac{4Mr^2}{mM}\cos^2\phi\right) \tag{3-67}$$

したがって、入射イオンのエネルギーはガス分子に移行し、衝突の度に速度は減少することが分かる。

3.3 節で述べた通り、イオンの q の値が Mathieu diagram の安定領域にある時、ある振幅を超えない単振動を繰り返し、安定軌道を取る。RFQ 内にガスを導入した時、イオンは安定軌道を維持しつつ、ガスとの衝突により運動エネルギーを失うことになる。そのため、イオンの安定軌道の振幅は減少し、結果としてイオンは中央に集束し、動径方向のエネルギーが小さくなる(Fig. 3-12)。同時に、運動エネルギーの分布の広がりも狭くなり、質の良いイオンビームを作成することが可能となる。

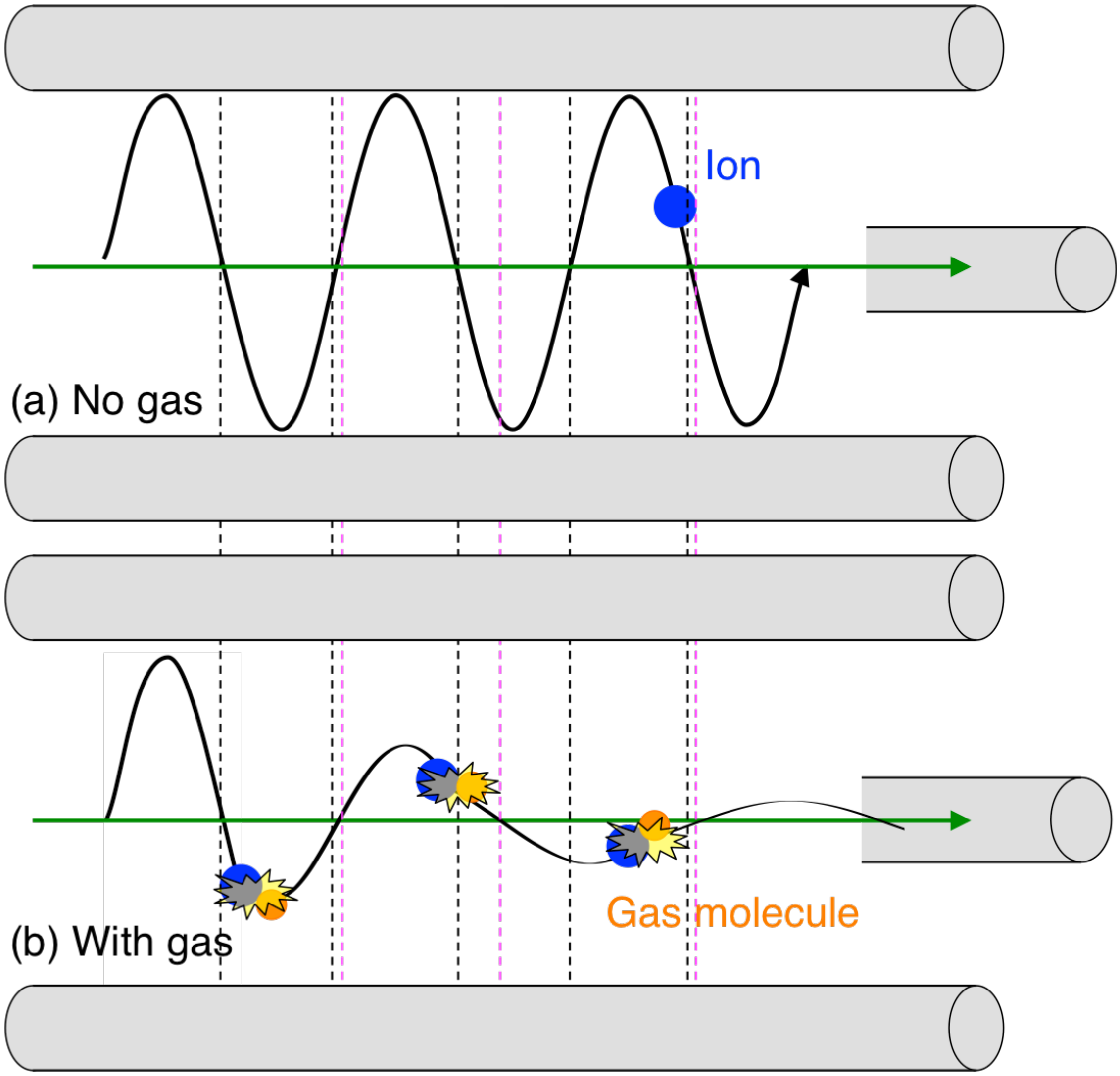


Figure 3-12 Collisional cooling

(a)ガス分子がない場合の RFQ 中のイオンの運動 (b)ガス分子が存在する場合の RFQ 内のイオンの運動　をそれぞれ表す。

3.5. ガス分子との衝突による電子の剥ぎ取り

イオンビームを集束させるための Collisional cooling はこれまで主に正イオンのビームを集束させるために用いられてきた[24]。一方、負イオンは正イオンと比較して不安定であり、ガス分子との衝突により電子の剥ぎ取りが生じ中性化されてしまう恐れがある。そのため、Collisional cooling を負イオンに応用する場合、イオンのエネルギーに注意する必要がある。

負イオンからの電子の脱離は、ガス分子との衝突の際に入射イオンが得る内部エネルギーが、原子の電子親和力を超えることによって生じると考えられる。この内部エネルギーの上限は重心系衝突エネルギー(Center-of-mass collision energy)と呼ばれ、Fig. 3-11 のイオンとガス分子の二体運動に重心系を導入することによって計算することができる[24, 54]。

3.5.1. 二体運動への重心系の導入

重心系の速度を V_{CM} とすると、V_{CM} は次のように表される。

$$V_{CM} = \frac{mv_0 + MV_0}{m+M} = \frac{mv_0}{m+M} \tag{3-68}$$

重心系におけるイオンとガス分子の速度をそれぞれ u_1、u_2 とすると、u_1 と u_2 は重心に対するイオンとガス分子の相対速度であるから、

$$u_1 = v_0 - V_{CM} \tag{3-69}$$

$$u_2 = V_0 - V_{CM} = -V_{CM} \tag{3-70}$$

となる(Fig. 3-13)。

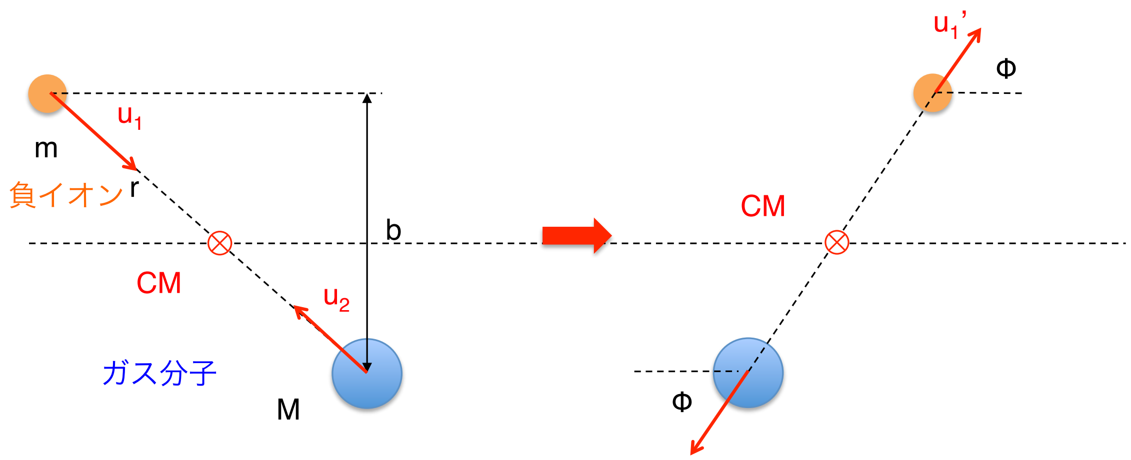


Figure 3-13 重心系の導入

このとき、重心の運動エネルギーK_{CM}と重心系の相対運動エネルギーK_Rは

$$K_{CM} = \frac{1}{2}(m+M)V_{CM}^2 = \frac{1}{2}(m+M)\left(\frac{mv_0}{m+M}\right)^2 = \frac{1}{2}\frac{m^2v_0^2}{m+M} \tag{3-71}$$

$$\begin{aligned} K_R &= \frac{m}{2}u_1^2 + \frac{M}{2}u^2 = \frac{m}{2}(v_0 - V_{CM})^2 + \frac{M}{2}(-V_{CM})^2 \\ &= \frac{m}{2}v_0^2 - mv_0V_{CM} + \frac{m+M}{2}V_{CM}^2 \\ &= \frac{m}{2}v_0^2 - mv_0\frac{mv_0}{m+M} + \frac{m+M}{2}\left(\frac{mv_0}{m+M}\right)^2 \\ &= \frac{1}{2}v_0^2\left(\frac{m^2+mM-2m^2+m^2}{m+M}\right) = \frac{1}{2}\frac{mM}{m+M}v_0^2 \end{aligned} \tag{3-72}$$

となる。系全体の運動エネルギーは入射イオンの衝突前のエネルギーK_0に等しいから、K_{CM}、K_RとK_0の関係は

$$K_0 = \frac{1}{2}mv_0^2 \tag{3-73}$$

$$K_{CM} = \frac{m}{m+M}\frac{1}{2}mv_0^2 = \frac{m}{m+M}K_o \tag{3-74}$$

$$K_R = \frac{M}{m+M}\frac{1}{2}mv_0^2 = \frac{M}{m+M}K_o \tag{3-75}$$

$$K_{CM} + K_R = K_0 \tag{3-76}$$

が成り立つ。

衝突による内部エネルギーは重心系における相対運動エネルギーであるから、入射イオンとガス分子の衝突による重心系衝突エネルギーは式(3-75)と表すことができる。

電子の脱離が起こる境界エネルギーを E_T とすると、イオンとガス分子の衝突により負イオンの中性化が起こる条件は次のように表される。

$$E_T < K_R = \frac{M}{m+M} K_0 \tag{3-77}$$

$$K_0 > \frac{m+M}{M} E_T \tag{3-78}$$

したがって、K_0 が式(3-78)の条件を満たした超えた時、負イオンから電子が脱離され中性イオンになると考えられる。ガス分子との衝突による中性化を防ぐためには、式(3-78)の K_0 以下になるまで負イオンを減速する必要がある。

3.5.2. 電子の脱離の境界エネルギー

負イオンからの電子の脱離の境界エネルギーE_T は実験的に推定されている。Champion と Deoverspike は Cl^-のイオンビームと Ne、Kr、Xe が衝突した時の E_T を 8.4 eV、7.2 eV、7.6 eV と推定した[55]。Smith らの実験では、Cl^-と He、Ne、Ar の衝突した際の E_T はそれぞれ 7.1±0.1 eV、8.1±0.2 eV、7.3±0.2 eV と見積もられている[56]。これらの値から、式(3-78)を用いて電子の脱離が起こる入射イオンのエネルギーを計算したものが Table 3-1 になる。

本研究では入射イオンは Cl^-で衝突するガス分子は He であるから、イオンを減速して入射する場合、70 eV まで減速して入射すれば衝突による電子の脱離を防げるものと考えられる。

Table 3-1 電子の脱離境界エネルギー[55, 56]

System	m (Projectile)	M (Target)	E_T (eV)	$\frac{m+M}{M}E_T$ (eV)
Cl^- + Ne [5-8]	35.5	20.2	8.4	23.2
Cl^- + Kr [5-8]		83.8	7.2	10.3
Cl^- + Xe [5-8]		131.3	7.6	9.7
Cl^- + He [5-9]		**4.0**	**7.1**	**70.1**
Cl^- + Ne [5-9]		20.2	8.1	22.3
Cl^- + Ar [5-9]		39.9	7.3	13.8

3.6. 負イオン減速チャンバーの構成

負イオン減速チャンバーは負イオンを減速・集束するための減速部、負イオンビームの動径方向の発散を防ぎ、イオンを減速しつつ輸送するための四重極部、負イオンを加速するための加速部から構成される(Fig. 3-14)。四重極部には不活性ガスである He が封入され、負イオンはガスとの衝突により進行方向・動径方向について減速される。

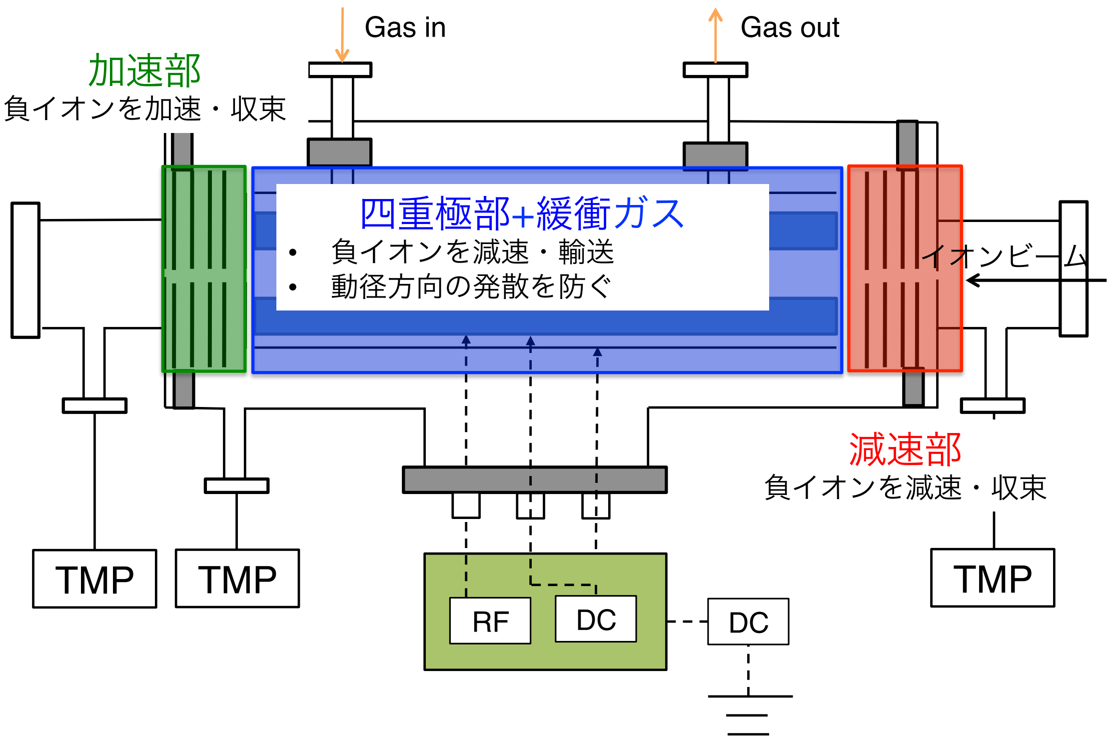


Figure 3-14 負イオン減速チャンバーの構成

3.6.1. 負イオン減速チャンバーを用いたレーザー光脱離法

加速器入射前のビームラインは通常、負イオン源、入射電磁石、静電偏向器等で構成される。負イオン減速チャンバーをレーザー光脱離法に適用する場合、チャンバーは負イオン源と入射電磁石の間に設置される。この時、次のようにレーザーによって同重体が中性化され分離される(Fig. 3-15)。

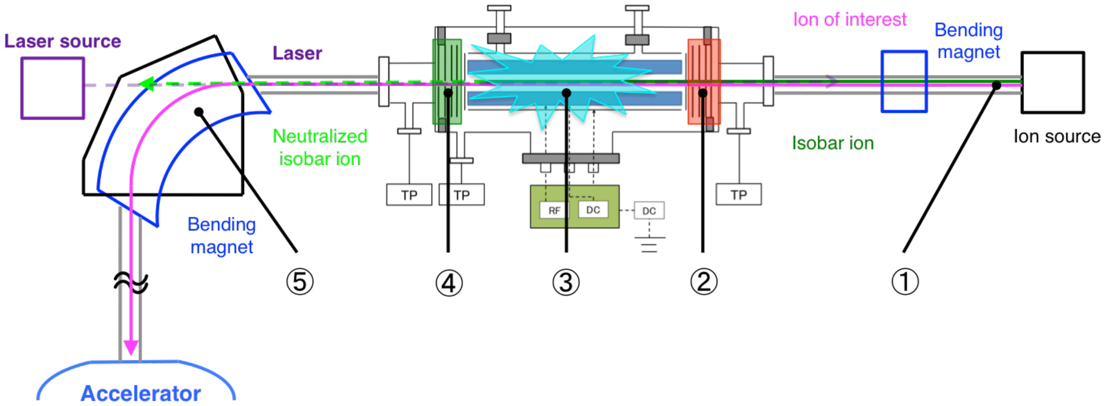


Figure 3-15 LPD への負イオン減速チャンバーの適用

① 負イオン源で負イオンビームが生成される。負イオンビームを電磁石等で分析し、目的核種と同じ質量電荷比のみを持ったイオンビームが電磁石を通過する。

② 入射した負イオンはまず減速で数十 keV から数十 eV 程度のエネルギーまで減速される。減速されたイオンは四重極部で集束されつつ、ガスとの衝突により熱エネルギー程度までさらに減速される。

③ チャンバー内にレーザー光を入射し、滞留している負イオンと相互作用させる。この際、同重体のみが光脱離反応により選択的に中性化される。

④ 四重極部を通過後、負イオンは加速電極により元のエネルギーまで再加速される。

⑤ 減速チャンバー後に設置された電磁石において、負イオンのみ加速器に入射される。中性化された同重体核種は減速チャンバーを通過できないか、通過後に電磁石を曲がることができないため、分離される。

この手法では加速器入射前に同重体を分離することが可能であるため、従来の同重体分離法である GFM や SS、GC を用いた同重体の分離と組み合わせ、検出感度をさらに高めることが可能である。

さらに、従来の手法では高エネルギーまで加速されたイオンがガス分子や固体薄膜と衝突し、散乱してしまうため測定効率が減少することが問題であった。一方、LPD により②から④の過程でイオンビームの透過効率を減少させることなく、同重体を分離できれば、同じ検出感度でもより高い測定効率による測定が可能になると期待される。

3.6.2. 設計の方針

設計において最も重要なことは、同重体抑制能を向上させるために、イオンビームを減速してレーザーとの相互作用時間を増加させることである。そのための設計の方針は以下のようになる。また、Table 3-2 に負イオン減速チャンバーの設計の方針についてまとめたものを示す。

①電場による減速：イオンビームの主な減速は電場により行う。

②RFQ によるトラップ：減速に伴い拡がろうとするビームをトラップできるように RFQ を減速部の後に設置する。

③RFQ 前後にアパーチャーの設置、DC 電極による軸電場の作成：RFQ 内部において、イオンをさらに減速するために He ガスを導入する。そして、導入したガスがチャンバー外部に漏出しないように RFQ の入口と出口にアパーチャーを設置する。また、ガス分子との衝突によりイオンが減速され RFQ 内部に滞留してしまうため、RFQ 内部に DC 電極を組み込み、進行方向の電場を作成してイオンを引き出す。

④ガイド電極(レンズ系)の導入：アパーチャーを通過する際にイオンビームが損失しないよう、レンズ機構として用いるガイド電極を減速部・加速部と RFQ の間に導入する。

⑤電場による加速：最後に、減速する前のエネルギーまでイオンを加速する加速部を設置する。

これら①～⑤の目的を満たすよう負イオン減速チャンバーの設計を行った。設計にはイオン光学系設計ソフト SIMION8.1 を使用した。

Table 3-2 減速チャンバーの設計方針

目的	方針
①イオンビームの減速	電場による減速
②減速による発散を防ぎ透過率を向上させる	RFQによるトラップ
③さらに減速するためにガスを導入	RFQ前後にアパーチャーの設置
減速によりRFQ内に滞留するイオンを引き出す	DC電極による軸電場の作成
④開口部においてビームを収束させる	**ガイド電極(レンズ系)の導入**
⑤減速前のエネルギーまでイオンを加速	電場による加速

3.6.3. SIMION8.1

イオン光学系設計ソフト SIMION8.1 は Scientific Instrument Services 社によって開発された、質量分析やイオン光学の設計を行うためのシミュレーションソフトウェアである[57]。SIMION8.1 では電極や磁石を作成することで、それらの電極や磁石が作る電場や磁場を計算し、電場や磁場中のイオンの挙動を計算することが可能である。

3.6.4. 減速部の構成

減速部は 4 つのリング電極から構成される減速電極(e1 ~ e4)、3 つのガイド電極(G1 ~ G3)、2 枚のアパーチャーから構成される(Fig. 3-16)。減速電極とガイド電極の間のアパーチャーを Ap1、ガイド電極と四重極部の間のアパーチャーを Ap2 とすると、それぞれのアパーチャーの開口部の直径は Ap1 が 3 mm、Ap2 が 4 mm となっている。

減速部の役割は主にイオンビームの集束と減速である。減速部でイオンビームを集束し、損失なく四重極部に輸送することで、装置全体の透過率を向上させることができる。また、負イオンとガス分子の衝突による電子の剥ぎ取りも透過率の損失の原因の一つであるため、イオンビームを電子の剥ぎ取りが生じないエネルギーまで十分に減速することが重要である。減速部の設計はこの 2 点を満たすように行った。

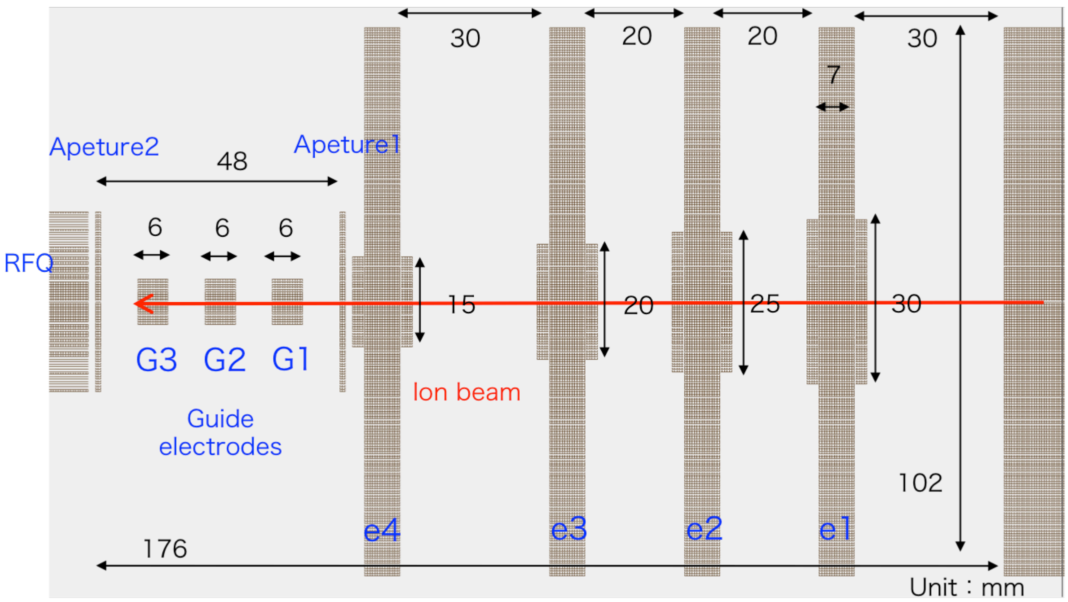


Figure 3-16 減速部の構成

3.6.5. 減速電極の設計

減速電極はリング電極が絶縁体であるセラミックで結合され、電極間は抵抗により接続されている。減速管全体で最大-45 kV まで電圧を印加できるよう設計され、-45 kV 印加時の電圧構成は e1： -15 kV、e2: -30 kV、e3: - 42 kV、e4: -45 kV となる。

イオンビームを効果的に集束させるため、減速電極の設計では、①電極の内径、②電極間の距離、③各電極に印加する電圧の設定についてそれぞれ検討した。検討の際、減速チャンバーに入射するイオンビームはエネルギー46 keV の 1 価の負イオンを設定し、e4 に-45 kV 印加し減速電極で 45 keV エネルギーを失う状況を想定した。

①電極の内径の違いによる集束の変化

式(3-53)から、円筒電極により集束効果を高めるためには電極間の距離を短くすること及び、電極間の電位勾配を大きくすることが効果的であることが考えられる。円筒電極間の動径方向の電位は式(3-36)のようにべき乗で表すことができ、r が大きくなるほど V は小さくなる。そのため、同じ電圧が印加されている円筒電極の内径が小さくなった場合、電極間の電位 V は大きくなるため円筒電極間の電位勾配は大きくなると予想される。すなわち集束効果が高くなると考えられる。

Figure 3-17 はリング電極の内径を e1 から e4 にかけて、(a) 30 mm、25 mm、20 mm、15 mm とビームが進行するにしたがって小さくした場合と、(b)電極の内径がすべて 30 mm の場合を比較したものである。内径が同じ場合に比べて、内径を段階的に小さくした場合ではイオンビームが良く集束することが確認された。以上の考察から、電極の構造は Fig. 3-17(a)のように進行方向にしたがって内径が小さくなるように設計した。

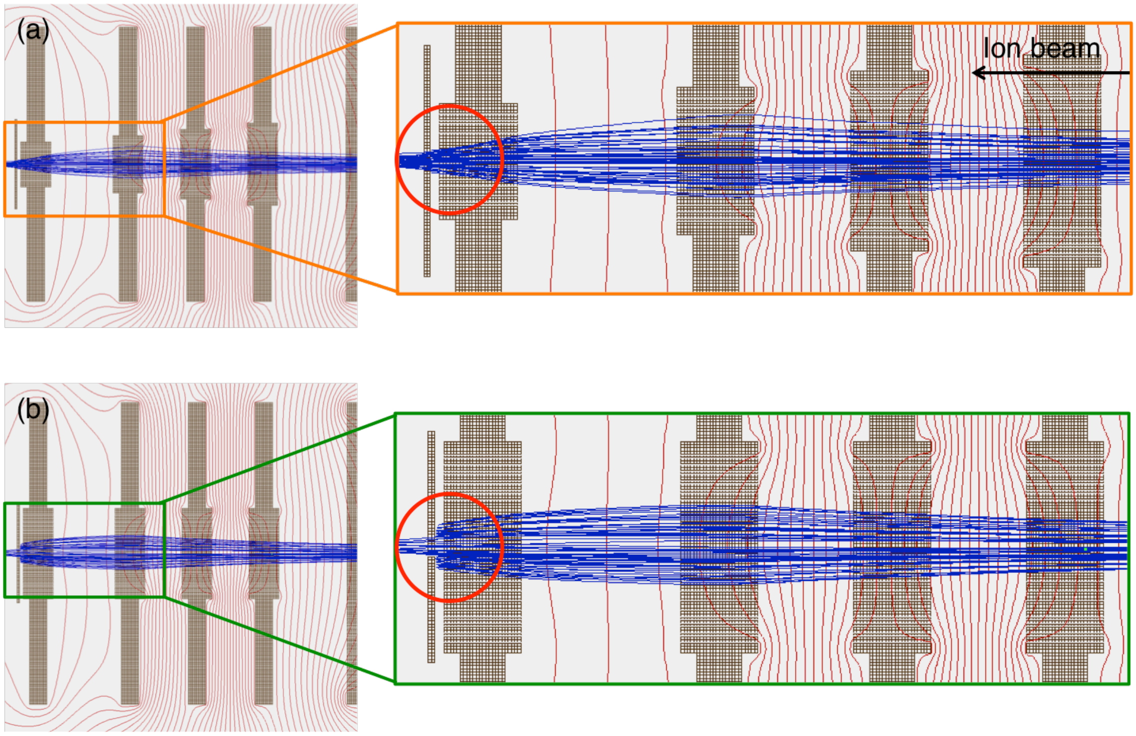


Figure 3-17 電極の内径の違いによるビームの集束の変化

(a)内径が異なる場合(b)内径がすべて同じ場合

② 電極間の距離の違いによるビームの集束位置の変化

次に、電極間の距離を変えた場合のビームの集束の変化について検討した。e2 と e3 の距離を長くした場合と e3 と e4 の距離を長くした場合について、イオンの集束を調べたものが Fig. 3-18 と Fig. 3-19 である。

Figure 3-18 は e2 と e3 の間の距離が(a) 20 mm (b) 25 mm (c) 25 mm である場合を示し、さらに(c) では e3 と e4 の間の距離を 15 mm とした。e2 と e3 の距離を変化させた場合、イオンビームの集束位置はあまり変わらなかった

一方、Fig. 3-19 では e3 と e4 の間の距離を(a) 25 mm (b) 30 mm (c) 35 mm である場合をそれぞれ示す。e3 と e4 の距離を変えた場合、電極間の距離が長くなるほどイオンビームの焦点が開口部付き電極の手前に移行することが観測された。

焦点の位置は開口部になることが望ましいため、電位の一様性も考慮して電極間の距離は e2 と e3 が 20 mm、e3 と e4 間は 30 mm となるように設計した。

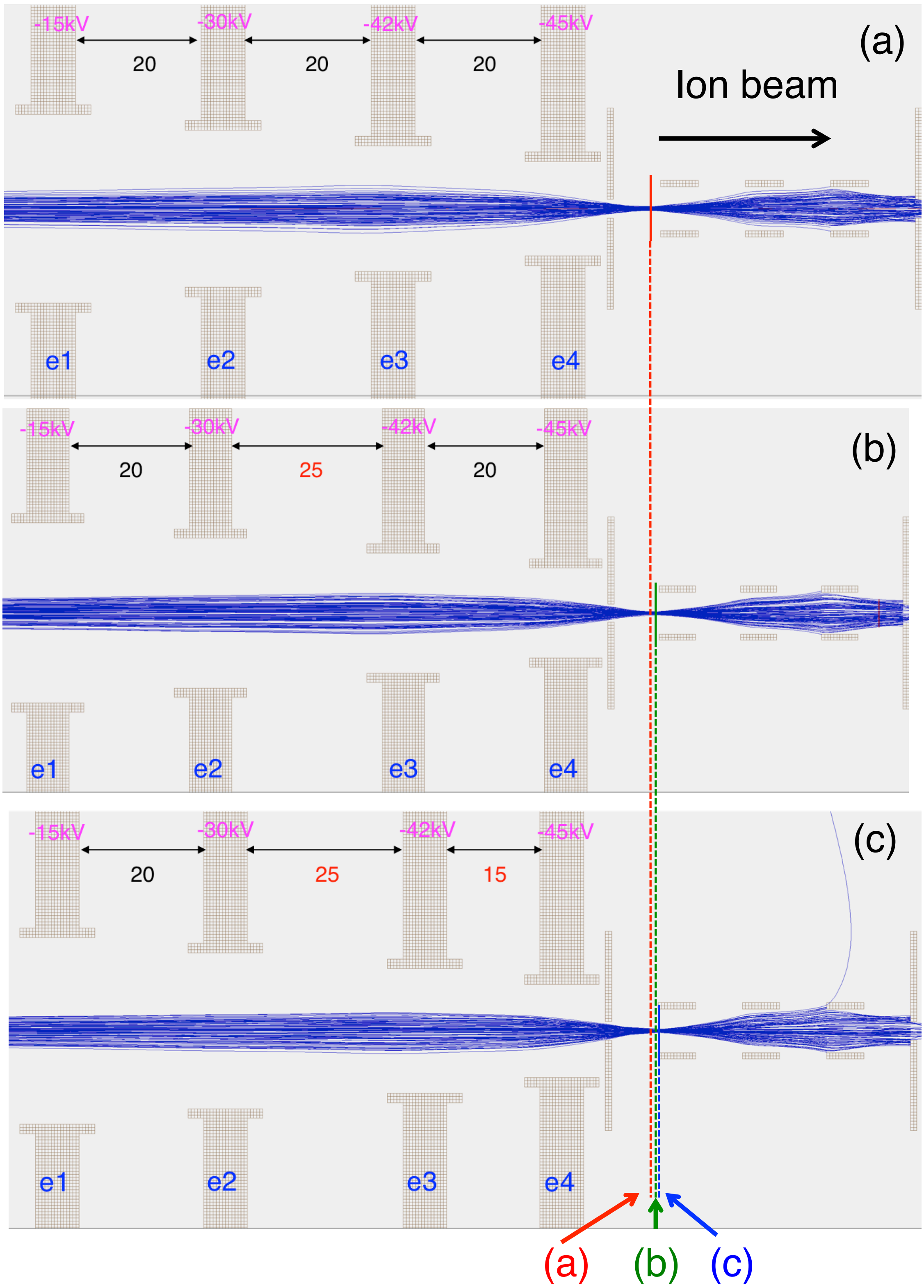


Figure 3-18 電極間の距離を変えた場合のビームの集束の変化

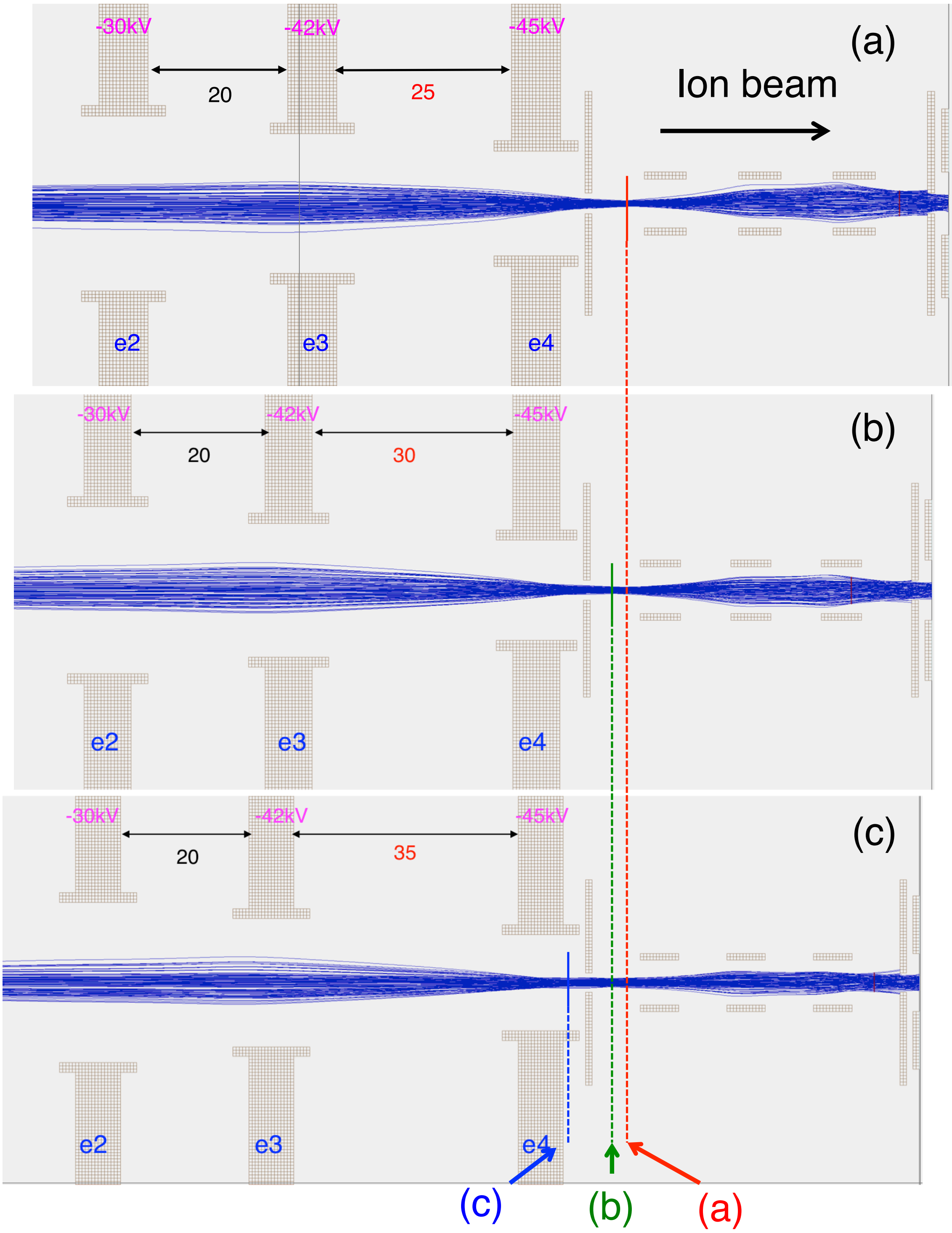


Figure 3-19 電極間の距離を変えた場合のビームの集束の変化 2

③印加電圧を変えた場合のビームの焦点の変化

最後に、印加電圧を変えた場合のビームの集束の変化を調べた。ビームの集束に大きく影響するのは e3 と e4 の電圧差であるため、計算では、e1、e2、e4 の電圧を固定し、e3 の電圧を-42 kV から-44 kV まで変化させた。Fig. 3-20 は電極 e3 の印加電圧を変えた場合のビームの焦点の変化を示したものである。e3 と e4 の電圧差が小さくなるほど、イオンビームの焦点が e3 側に移動することが観測された。これは、e3 の電圧が高くなるほど e2 と e3 間の電圧差が大きくなり、e3 内部に傾きが急な等電位面が生じるため、イオンビームの焦点が e3 に近くなるためであると考えられる。

イオンビームの開口部の透過率を向上させるためには、イオンビームの焦点を開口部かそれ以降にすることが望ましく、本研究では e3、e4 の電圧をそれぞれ-42 kV、-45 kV となるように設計した。

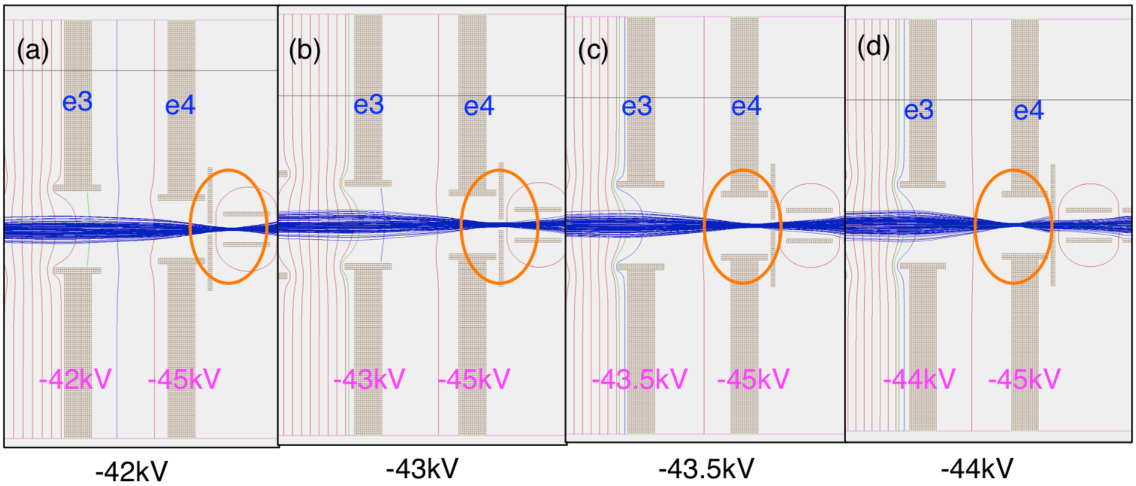


Figure 3-20 電極 e3 の印加電圧を変えた場合のビームの焦点の変化

3.6.6. ガイド電極の設計

ガイド電極は内径 7 mm の電極から構成される。それぞれの電極にかける電圧を調整することにより、アインツェルレンズのようにビームの集束を調整することが可能である。ガイド電極には 2 つの役割があり、前述したビームの集束の調整の他に、四重極部に封入するガスが減速電極及び減速チャンバー外まで漏洩しないよう、差動排気系を構成しガス抜けを向上させることである。

電極の作成にあたり、電極を 3 枚にした場合と 2 枚にした場合とでビームの集束がどのように変化するかを調べた(Fig. 3-21)。Fig. 3-22 は 3 枚電極の場合に電極の長さを L (mm) 、電極間の距離を d (mm) として、 (L, d) の組み合わせを変えることでビーム集束がどのように変化するかを示した図である。(L, d)の組み合わせはそれぞれ(a) (12, 3)、(b) (6, 7.5)、(c) (2, 10.5)、(d) (1, 11.25)とした。

Figure 3-23 は 2 枚電極の場合で同様に(L, d) の組み合わせを変えた場合であり、(a) (12, 3)と(b) (1, 10.3)の場合を検討した。

検討に際し、質量 36、電価-1、エネルギー46 keV のイオンビームを入射し、減速電極で 45 keV の減速を行った後、ガイド電極部に入射しアパーチャー(Ap2)を通過するイオンの個数と通過した際のエネルギーを計算した。

3 枚電極の場合の計算結果を Table 3-3、2 枚電極の場合の計算結果を Table 3-4 に示す。いずれの場合も各電極に印加する電圧を調整し Aperture 2 でイオンビームを集束させることが可能であるが分かった。

Ap2 でのイオンのエネルギーに着目すると、電極 3 枚の場合の方が電極 2 枚の場合よりも低いエネルギーで四重極部にイオンを入射可能である。これは 3 枚の電極で減速・集束させる方がイオンを段階的に減速可能であり、かつ集束する箇所を調整しやすいためであると考えられる。

3 枚電極の場合、Ap2 の直前の電極(G3)に印加する電圧は、G3 の長さが短くなるほどビームを集束させるために高い電圧が必要であることが分かった。この場合、各電極に印加する電圧を高くできるため、イオンの減速を効率的に行うことが可能である。

ただし、G3 が短すぎる場合(例えば(c)と(d)の場合)、G3 に高い電圧を加えてもイオンビームの集束が困難になった。G3 に加えることのできる電圧は Ap2 の電圧よりも小さいことが必要であり、最大でも Ap2 と同じ電圧になるが、この場合、G3 から Ap2 にかけて集束の効果が得られない。

以上をまとめると

- 3 枚電極の場合の方がイオンビームの減速を段階的に行うことができる
- 電極を短くすれば、ビームを集束させるために高い電圧をかける必要があるが、ビームの減速は効率的に行うことができる
- 電極の長さが短すぎる場合、印加する電圧を高くしてもビームを集束させることが困難になる

となる。今回の計算では四重極電極にイオンを入射する際のエネルギーを最も小さくでき、かつガイド電極部のイオンの透過率が最も高かった、3 枚電極の(b) (L, d) = (6, 7.5)の場合を採用した。

Table 3-3　3 枚電極の場合のイオンの透過効率とエネルギーの変化

Case	L (mm)	d (mm)	Transmission (%)	Energy (eV)
(a)	12	3	89	44
(b)	6	7.5	97	42.6
(c)	2	10.5	79	43.2
(d)	1	11.5	73	42.8

Table 3-4　2 枚電極の場合のイオンの透過効率とエネルギーの変化

Case	L (mm)	d (mm)	Transmission (%)	Energy (eV)
(a)	12	3	100	53.1
(b)	6	7.5	66	42.8

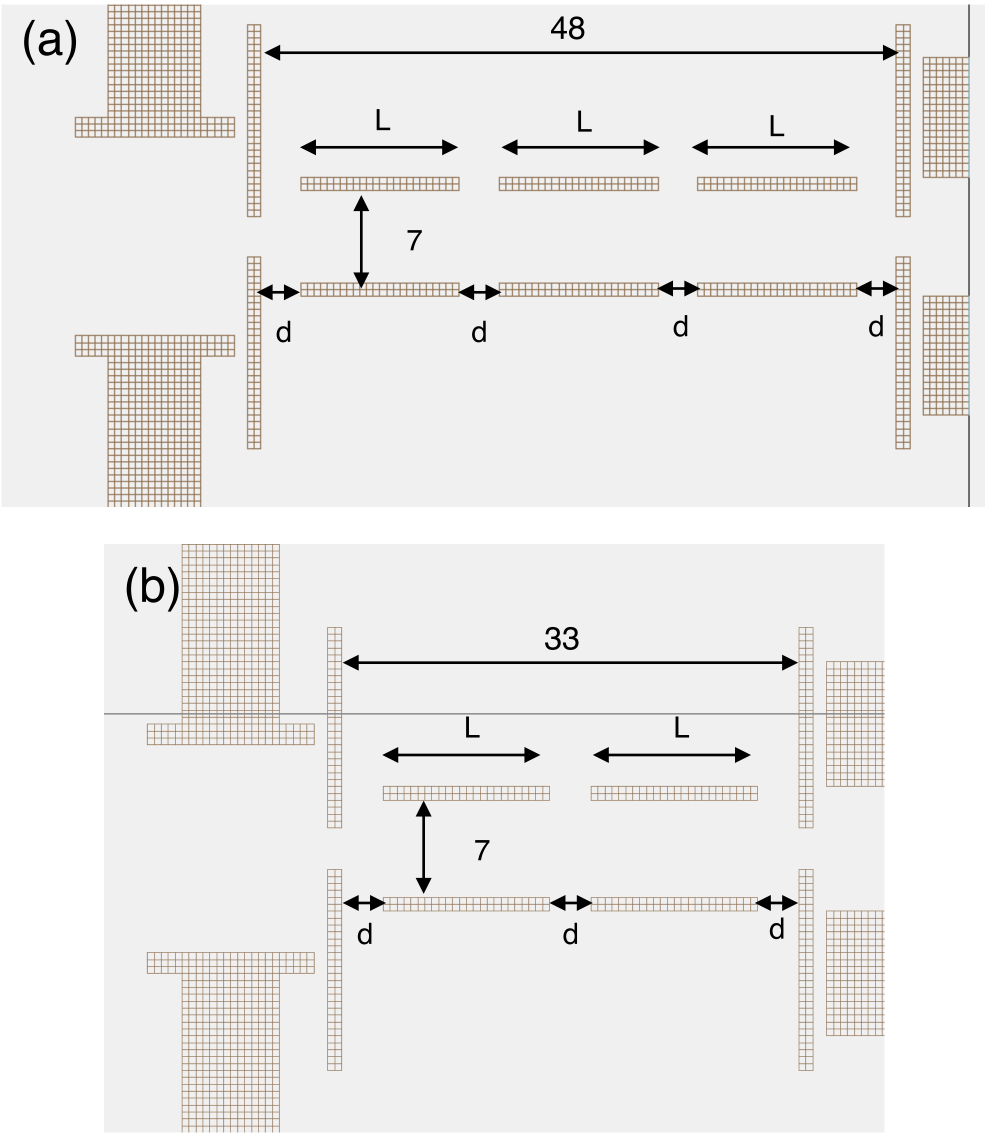


Figure 3-21 ガイド電極の構成

(a)電極が 3 枚の場合 (b)電極が 2 枚の場合

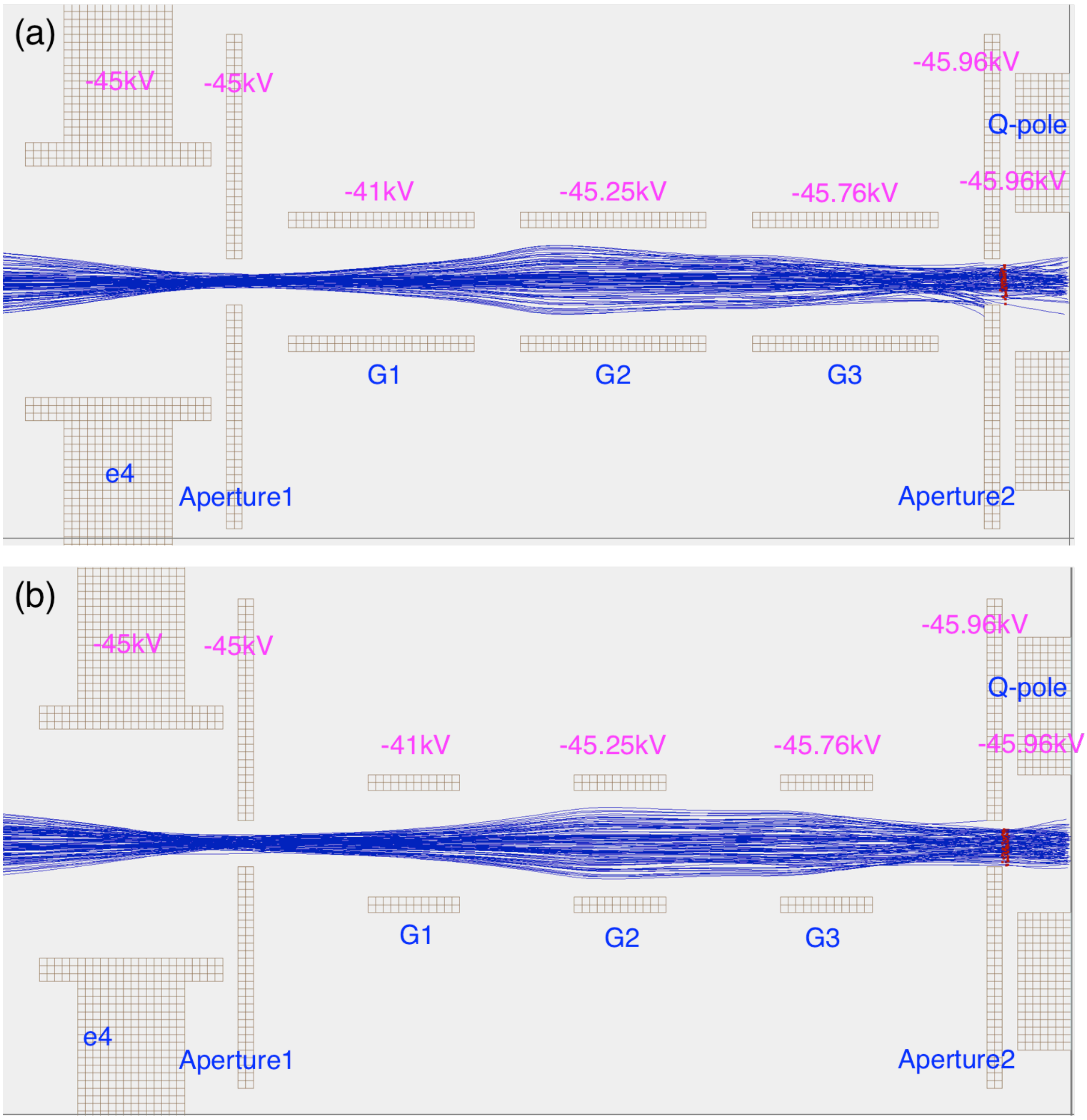


Figure 3-22 電極の長さを変えた場合のビームの集束の様子の違い

電極が 3 枚でそれぞれ電極の長さ L と電極間の距離が(a) (L, d) = (12, 3) (b) (L, d) = (6, 7.5)の場合を示す。

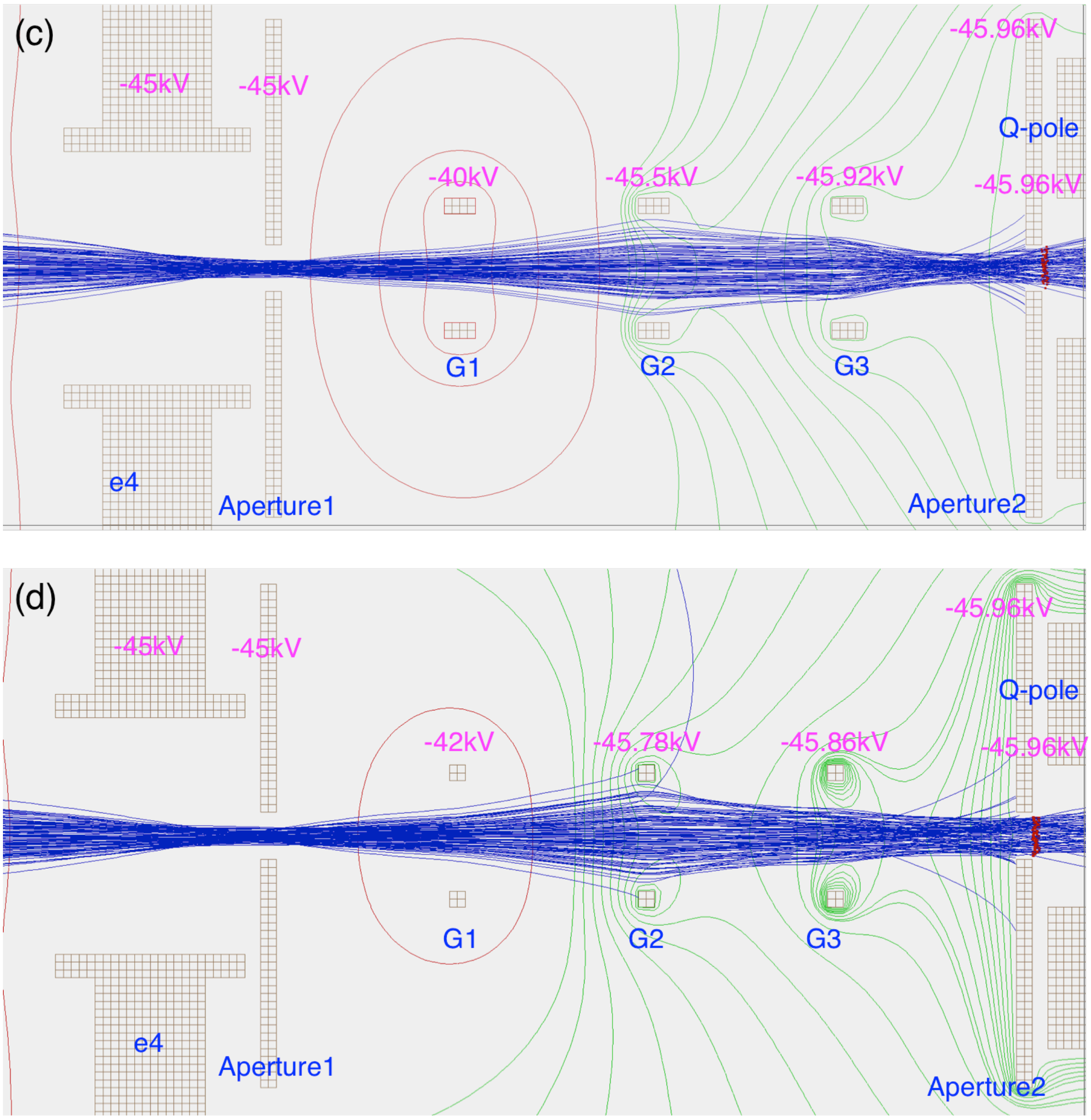


Figure 3-22 (continue) 電極の長さを変えた場合のビームの集束の様子の違い

電極が 3 枚でそれぞれ電極の長さ L と電極間の距離が(c) (L, d) = (2, 10.5)　(d) (L, d) = (1, 11.25)

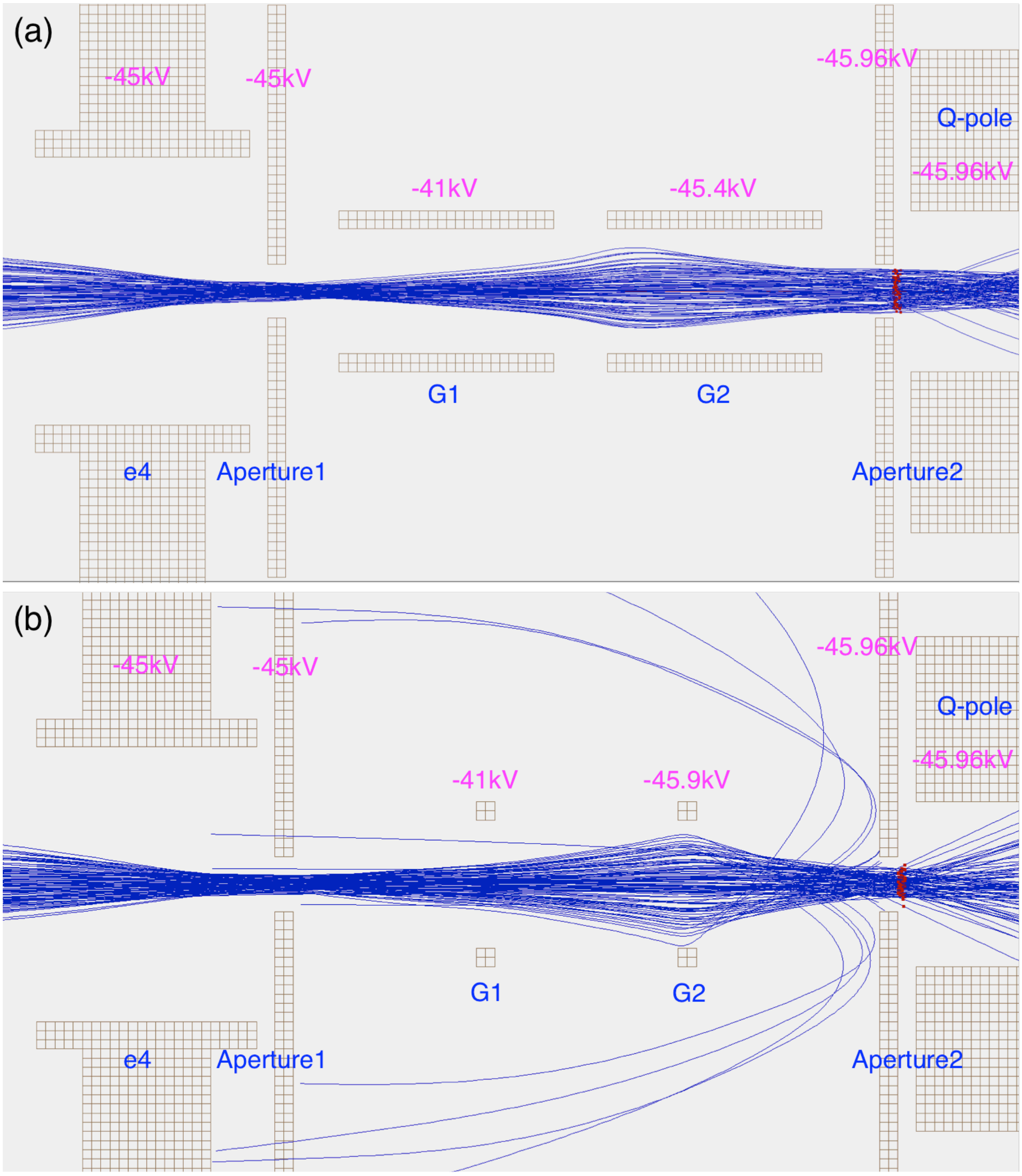


Figure 3-23 電極の長さを変えた場合のビームの集束の様子の違い 2

電極が 2 枚でそれぞれ電極の長さ L と電極間の距離が(a) (L, d) = (12, 3)　(b) (L, d) = (1, 10.3)を示す。

3.6.7. ガイド電極の効果

ガイド電極によるビームの集束及び移送の効果を調べるために、減速電極と四重極電極の間にガイド電極を挿入した場合としなかった場合とで、四重極内のイオンの集束がどのように変化するかを調べた。

Figure 3-24 は(a)ガイド電極を挿入した場合と、(b)ガイド電極を挿入しなかった場合の四重極内でのイオンビームの集束を示す。それぞれ、四重極部の入り口から 5 mm の位置におけるビーム断面を比較すると、(a)の場合ビーム径は 4 mm 程度に抑えることができることに対し、(b)の場合、y 方向にビームが広がり、ビーム幅が 10 mm 程度まで拡大した。四重極電極の電極間の内接円の直径は 9 mm であり、電極に衝突するイオンが存在し、四重極部の透過率は減少すると考えられる。

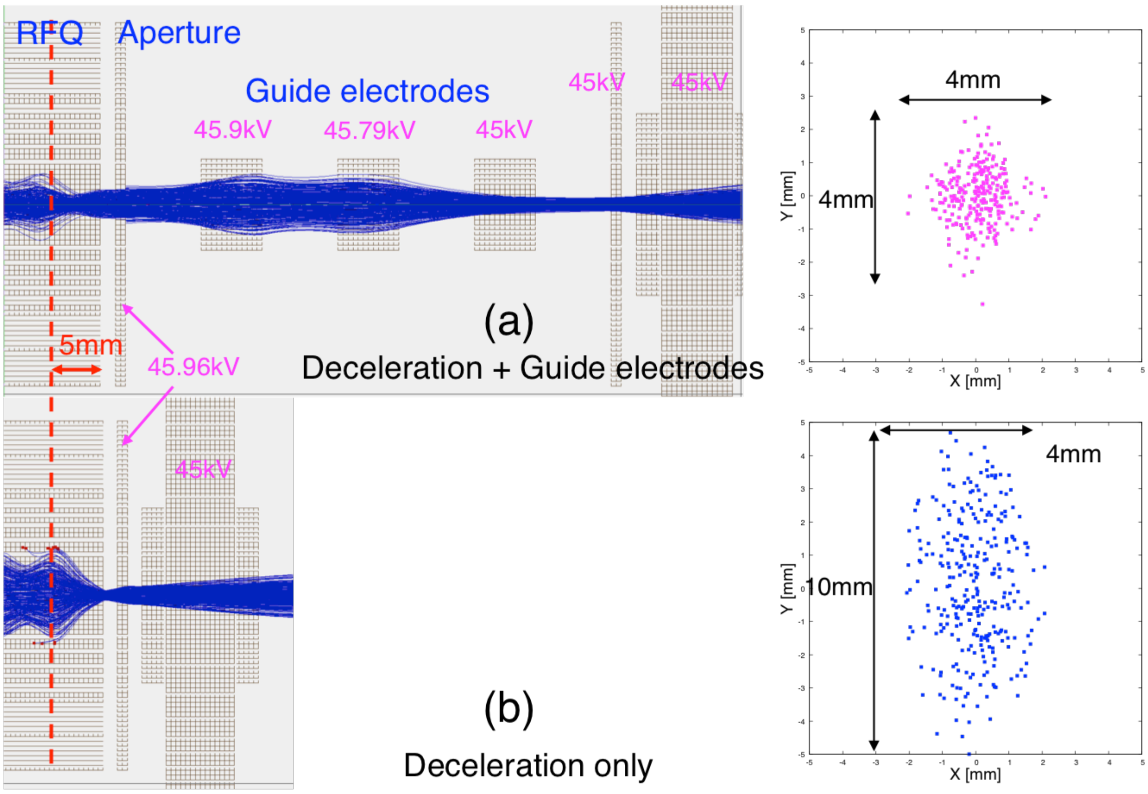


Figure 3-24 ガイド電極の効果

(a)減速電極と RFQ の間にガイド電極を挿入した場合と(b)減速電極直後に RFQ を配置した場合の RFQ 入り口から 5 mm におけるビーム断面を表す。

3.6.8. 四重極部の設計

四重極部は 4 本の円柱電極、4 つの DC 電圧印加用電極、それらを内包する外筒で構成される(Fig. 3-25)。四重極電極は内部でイオンビームの発散を防ぐための四重極電場を作成する。四重極部には He ガスが導入されており、イオンビームはガスとの衝突により熱エネルギー程度まで減速される。そのため、何らかの力を加えて減速したイオンを出口まで輸送しなければならない。

4 つの板状電極を向かい合わせに設置し、入口から出口にかけて角度を持たせ同じ電圧を印加させると、四重極内部に進行方向の電場を作成することができる(Fig. 3-25)。この電場により、イオンビームを出口まで輸送する。

本節では四重極部の設計として、四重極部と DC 電極の構成について述べる。設計は SIMION8.1 により行った[57]。

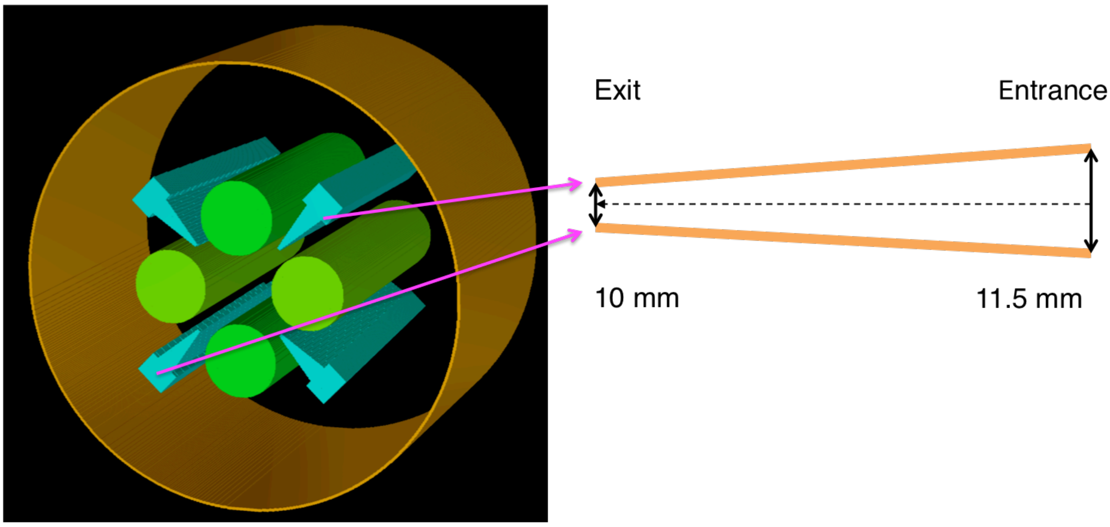


Figure 3-25 四重極部の構造

3.6.9. 四重極電極の構成

四重極電極が作る理想的な四重極電場は双曲線状のものであり、双曲線状の表面を持つ電極によって作成される。しかしながら、電極の制作のしやすさから、円柱状の電極が代わりによく用いられる。

Dawson らによると、電極間の距離を r_0、円柱電極の半径を r とすると、

$$r = 1.1148 r_0 \tag{3-79}$$

となる時、理想的な四重極電場が作成されることが示された[58]。一方、Denison らによると以下の関係が提案された[59]。

$$r = 1.11468 r_0 \tag{3-80}$$

さらに、Tayler と Gibson らは

$$r = 1.12 r_0 \sim 1.13 r_0 \tag{3-81}$$

を提案した[60]。本研究では r = 5 (mm)、r_0 = 4.5 (mm)であり、r = 1.11 r_0 が成り立つ(Fig. 3-26)。

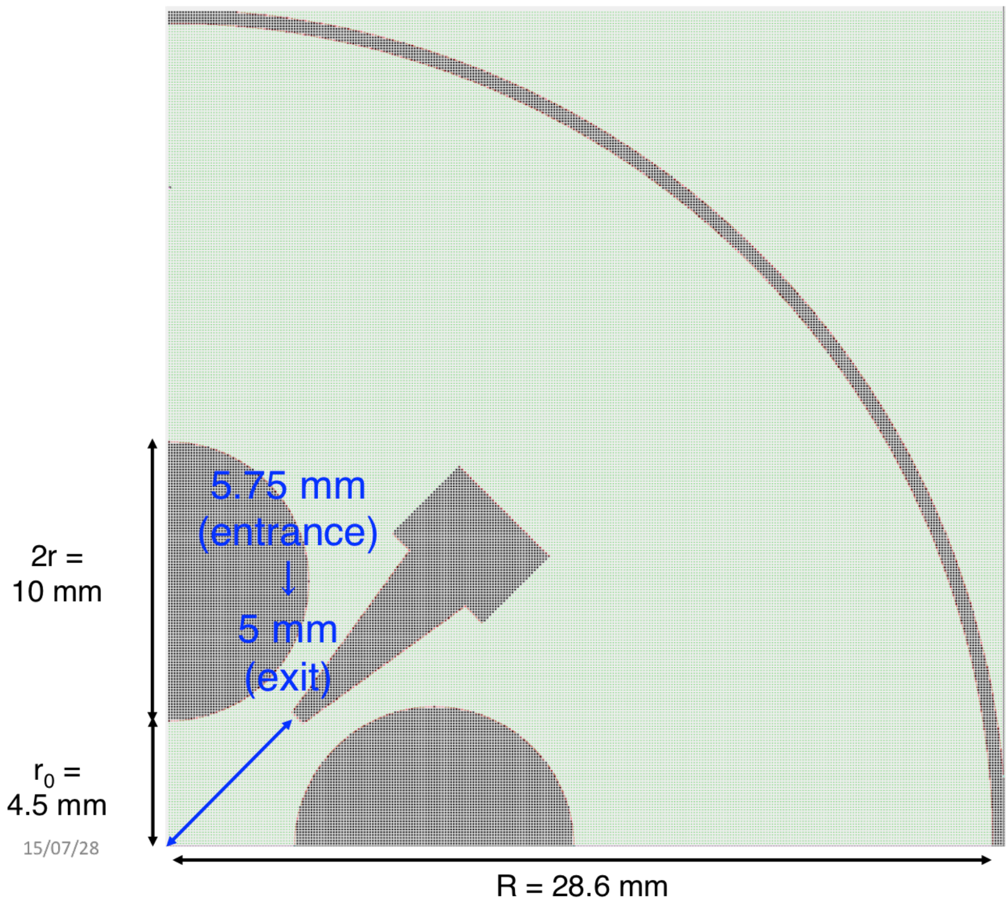


Figure 3-26 四重極電極の構成

3.6.10. DC 電極の構成

負イオンが四重極部内部に存在し、DC 電極に正の電圧が印加されている場合を考える。負イオンの進行方向を z 軸とし、Fig. 3-27 のような座標系を想定する。負イオンが 2 つの DC 電極間の中央に存在する時、負イオンと 2 つの電極の間にはそれぞれ引力 F が働く。F のうち、y 方向は互いに打ち消し合い、結果として z 方向のみの力が作用し、イオンは入口から出口に向けて輸送される。

次に、DC 電極に印加する電圧 V_{dc} と作成されるイオンの進行方向の電場の強さの関係について、四重極の入口と出口でのイオンのエネルギーを計算し、その差($\Delta E = E_{exit} - E_{entrance}$)が V_{dc} によってどのように変化するか調べた(Fig. 3-28)。

V_{dc} と ΔE は正の相関を示し、近似曲線を求めると

$$\Delta E = E_{exit} - E_{entrance} = 0.1474 V_{dc} + 08375 \tag{3-82}$$

と計算された。

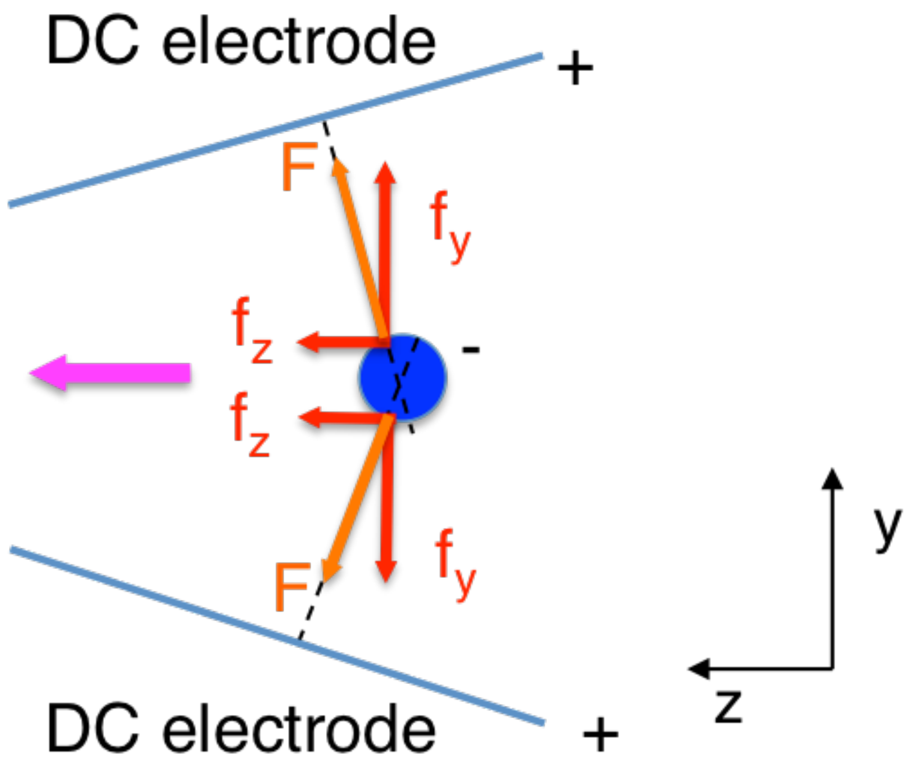


Figure 3-27 DC 電極による軸方向の加速

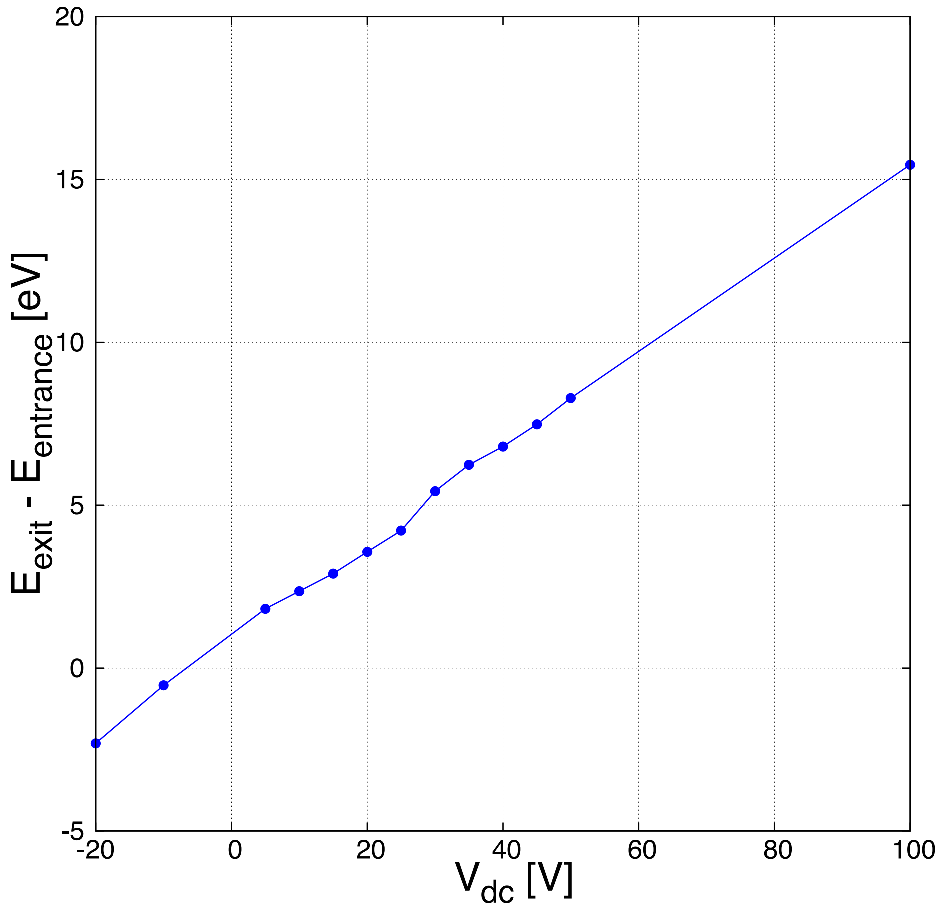


Figure 3-28 V_{dc}と軸方向電場 Δ E=E_{exit}-$E_{entrance}$の関係

3.6.11. 加速部の構造

加速部の構造は減速部と対称であり、2 枚のアパーチャー(Ap3, Ap4)、3 枚のガイド電極(G4 ~ G6)、4 つの加速電極(e5 ~ e8)で構成される(Fig. 3-29)。加速部の場合、減速部と異なり四重極部で Collisional cooling より集束し拡がりが抑えられたイオンビームが入射される。この時、四重極外部に存在するガス分子との衝突でビームが散乱することはあるが、加速部を容易に損失なく通過できる。ただし、透過効率を向上させるため、イオンビームの集束を調整する機構が不可欠であり、加速部にも減速部同様ガイド電極を挿入した。

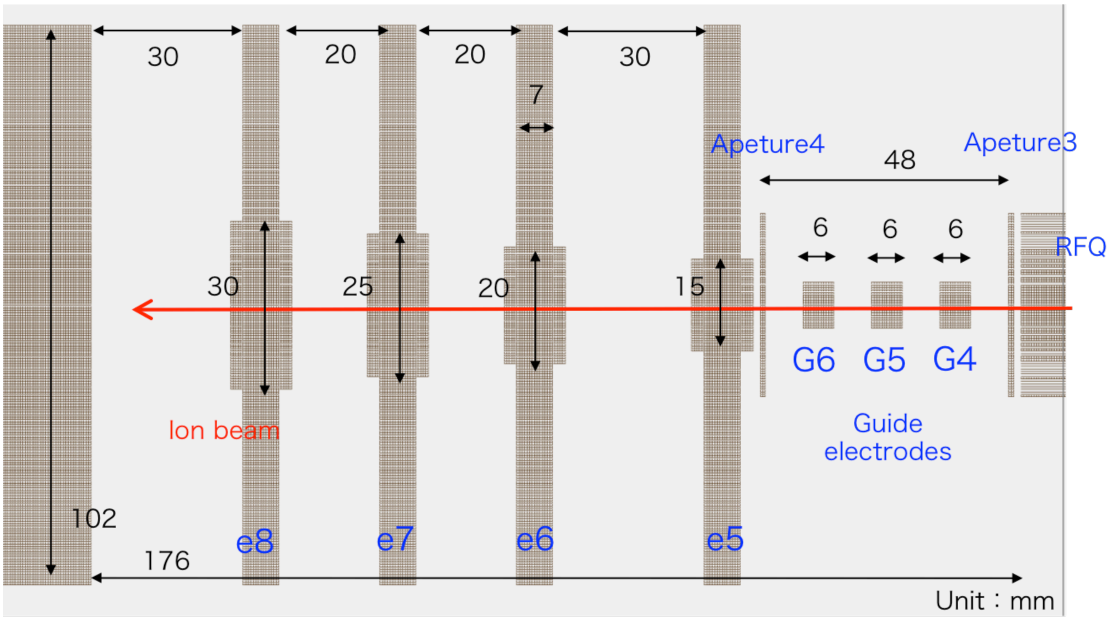


Figure 3-29 加速部の構成

3.6.12. 負イオン減速チャンバー設計のまとめ

負イオン減速チャンバーは主に減速部、四重極部、加速部から構成される。減速部・加速部の間にはイオンの集束を調整するためにガイド電極を設置した。減速電極は４枚の円筒電極(e1 ~ e4)と直径 3 mmΦ、4 mmΦ の２枚のアパーチャーで構成され、46 keV のイオンビームを入射する時、e1 ~ e4 の各電極は-15 kV、-30 kV、-42 kV、-45 kV の電圧が印加され、減速電極全体でイオンビームのエネルギーは 1keV 程度まで減速される。イオンビームはガイド電極によりさらに減速・集束され、四重極部に入射する。ガイド電極にかける電圧はイオンビームを集束させ、減速部から四重極部にかけてイオンビームの透過率が最大限になるように設定される。ガイド電極による集束と減速により、四重極入射時にはイオンのエネルギーは 40 eV 程度まで減速される。

四重極部の長さは 400 mm であり、4 本の円筒電極と、入口から出口にかけて傾きを持った 4 本の電極(DC 電極)、外筒から構成される。円筒電極の直径は 10 mm、四重極の内接円の直径は 9 mm である。DC 電極間の距離は入口で 11.5 mm、出口で 10mm となる。四重極電極には高周波電圧が印加され、作られる電場によりビームの発散が抑えられる。また、イオンビームは四重極電極が作る電場で閉じ込められる他、ガスとの衝突により、最終的に熱エネルギーの領域まで減速される。イオンが RFQ 四重極部に滞留している時にレーザーを入射し、光脱離反応の時間を稼ぐ。この時、イオンは四重極内部に滞留してしまうため、4 本の DC 電極により進行方向の電場を作成し、イオンを出口まで輸送する。

四重極部で減速されたイオンは、四重極部通過後に設置された加速部でもとのエネルギー(46 keV)まで加速される。加速部は加速電極、ガイド電極、そして 2 枚のアパーチャーで構成され、減速部と対称的な構造をとる。

3.7. シミュレーションによる計算

設計した減速チャンバーについて、実際に ^{36}Cl の負イオンビームを入射し減速した際の滞留時間や、レーザーと反応させた時の ^{36}S の抑制率を評価するために、SIMION8.1 を用いたシミュレーションによる計算を行った。シミュレーションでは RFQ 内に He ガスを導入した場合の滞留時間とイオンビームの減速チャンバー全体の透過効率を評価することを目的とした。まずは SIMION8.1 におけるガスとの衝突を考慮した計算方法について説明する[57, 61]。

3.7.1. SIMION8.1 による計算

SIMION8.1 では計算上、実際の電極や電磁石をポテンシャルアレイ(PA)と呼ばれる配列で定義する。電極の場合、PA に設定された電圧を元に、ラプラス方程式を解き、空間上の電場が計算される。計算された電場からイオンについて運動方程式が計算され、速度や加速度、エネルギーなどイオンの挙動が計算される[57]。

3.7.2. イオンとガス分子との衝突確率の計算

イオンとガス分子の計算は剛体球モデルを使用した[61]。剛体球モデルにおけるイオンとガス分子の衝突は弾性衝突が仮定され、イオンのガス分子の衝突を判断した後、イオンの速度と散乱の方向が計算される。衝突の判断は以下のように行われる。

イオンがガス分子と衝突せずに距離 x を進む確率を p(x)とする。イオンが x から x+dx の間に衝突する確率が x に無関係であるとすると、p(x)の減少率は p(x)に比例し、k を比例定数として次の式が成り立つ

$$\frac{dp(x)}{dx} = -kp(x) \tag{3-83}$$

p(0) = 1 であるから、p(x)は

$$p(x) = \exp(-kx) \tag{3-84}$$

と計算される。

イオンの平均自由行程λは、イオンが他の分子と衝突せずに進む距離の平均であるから、次のように書くことができる。

$$\lambda = \frac{\int_0^\infty xp(x)dx}{\int_0^\infty p(x)dx} \tag{3-85}$$

式(3-85)に式(3-84)を代入すると、

$$\lambda = \frac{\int_0^\infty xp(x)dx}{\int_0^\infty (px)dx} = \frac{\int_0^\infty x\exp(-kx)dx}{\int_0^\infty \exp(-kx)dx} = \frac{\frac{1}{k}\left(1-\frac{1}{k}\right)}{1-\frac{1}{k}} = \frac{1}{k} \tag{3-86}$$

となり、k = 1/λと計算することができる。

したがって､イオンが距離 x を進む間にガス分子と衝突する確率を f とすると、

$$f = 1 - p(x) = 1 - \exp\left(-\frac{x}{\lambda}\right) \tag{3-87}$$

と求めることができる。

3.7.3. 平均自由行程と衝突断面積

イオンの平均自由行程λは次のように定義される[61]。

$$\lambda = \frac{c_{ion}}{Z} \tag{3-88}$$

ここで、c_{ion} はイオンの速度、Z はイオンとガス分子の衝突頻度であり、衝突の断面積を σ、ガス分子の単位体積あたりの密度を n、イオンとガス分子の相対速度を c とすると、Z = σnc で表される。

ガスの圧力を P、ボルツマン定数を k、温度を T とすると、ガス分子の単位体

積あたりの密度は

$$n = \frac{P}{kT} \tag{3-89}$$

で表される。

本研究で扱うイオンとガス分子の衝突は弾性散乱を想定するため、イオンとガス分子の衝突断面積 σ は次のように表される。

$$\sigma = \pi(r_i + r_g)^2 \tag{3-90}$$

ここで、r_i、r_g はそれぞれイオンとガス分子のファンデルワールス半径を表す。塩素の場合 r_i = 175 pm 、He の場合 r_g = 140 pm であるから、塩素とヘリウムの衝突断面積 σ は σ = 3.11 × 10^{-19} m^2 となる[62]。一方硫黄の r_i は 180 pm であるため硫黄とヘリウムの衝突断面積は 3.22 × 10^{-19} m^2 と計算される[62]。

以上から、最終的にイオンの平均自由行程は

$$\lambda = \frac{c_{ion}}{Z} = \frac{c_{ion}}{\sigma n c} = \frac{c_{ion}}{c}\frac{kT}{\pi(r_i + r_g)^2 P} \tag{3-91}$$

と計算される。

3.7.4. SIMION8.1 によるイオン挙動の計算方法

Figure 3-30 に SIMION8.1 によるガス分子との衝突を含むイオンの挙動の計算手法を示す[57, 61]。計算では、電場の計算を元にイオンの速度(C_{ion})が計算され、設定したガス圧、温度、衝突の断面積等のパラメータから平均自由行程 λ が計算される。そして、式(3-87)で表される衝突の確率 f が計算され、f の値が設定された乱数 r よりも小さい場合はガス分子と衝突、大きい場合は衝突なしと計算が分岐する。

ガス分子と衝突した場合、弾性衝突によるイオンのエネルギーの変化と散乱角等が計算された後、C_{ion} の計算に戻る。衝突がない場合はそのまま次の C_{ion} の計算に戻る。

以上の計算を繰り返し、ガス分子が存在する電場中のイオンの挙動が計算される。

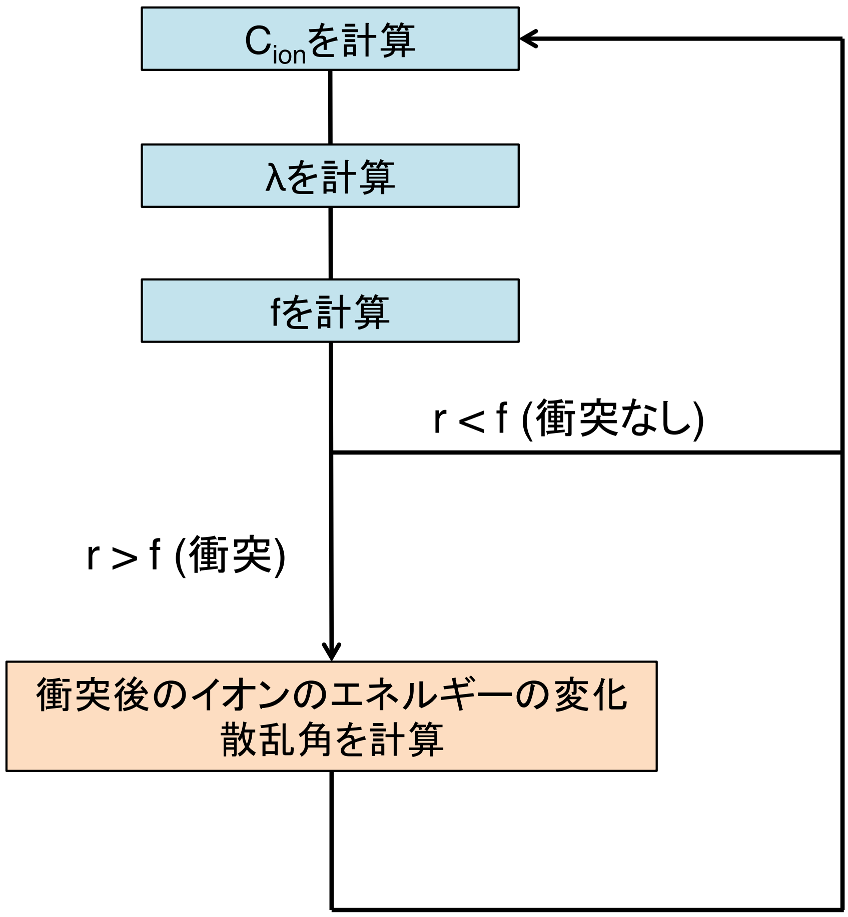


Figure 3-30 SIMION8.1 によるイオンの挙動の計算

3.7.5. シミュレーションの初期条件と計算の概要

SIMION8.1 による設計をもとに、負イオン減速チャンバー中のイオンの挙動、イオンの透過効率、イオンの滞留時間、及び光脱離反応による抑制率の計算を行った。

計算におけるイオンの初期条件を Table 3-5 にまとめた。入射イオンとして、塩素 36 を想定し、イオンの質量数を 36、イオン数を 300、イオンの電荷は−1 とした。RFQ 電極に印加する電圧(V_{0p})は 200 V、周波数は 2.5 MHz、RFQ の四重極の内接円の半径は 4.5 mm と設定した。実験は室温(25 ℃ = 298 K)で起こることを仮定し、イオンとガスとの衝突の断面積は 3.19×10^{-19} m^2 とした。

Figure 3-31 に計算状況の概要を示す。イオンビームは、直径 3 mm の円状の光源から半頂角 0.3° の円錐分布で発生させた。イオンの初期エネルギーは 46 keV、エネルギーの分布は半値全幅(FWHM) 8 eV のガウス分布を設定した[63]。

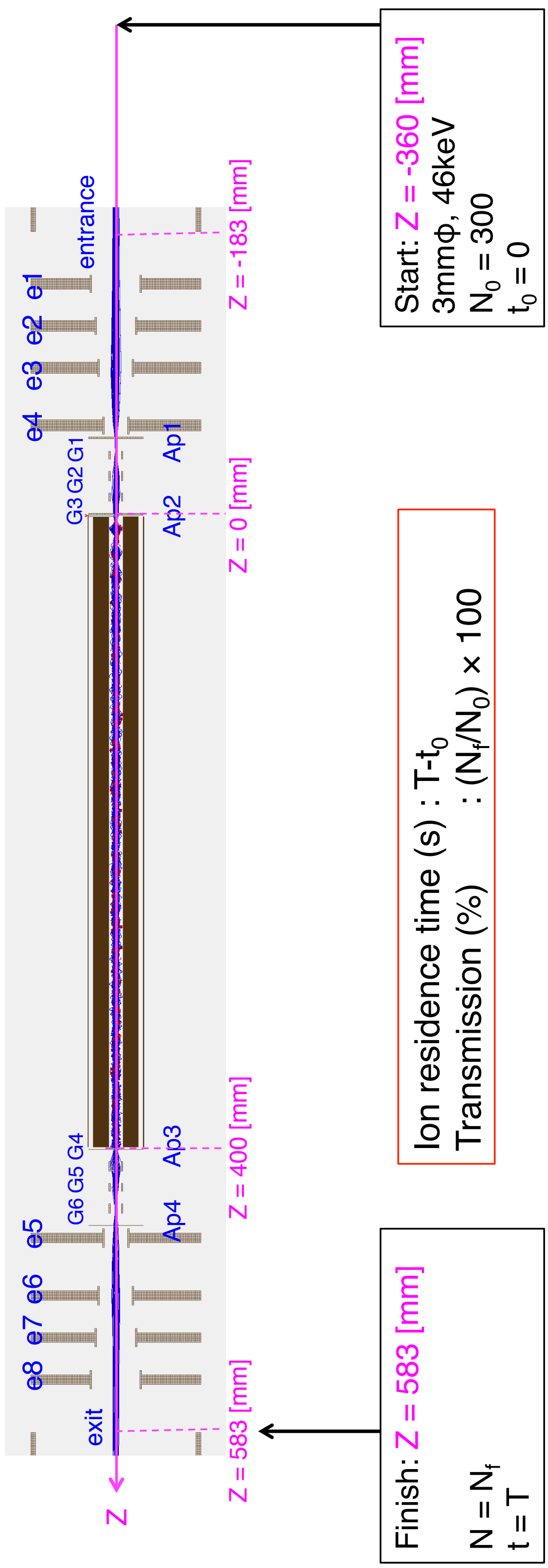
Table 3-5 イオンの初期条件とレーザーの条件

Mass of injected ion	36	Radius of inscribed circle (cm)	0.45
The number of injected ion	300	Temperature (K)	298
Charge of ion	-1	Cross section of hs collision (m^2)	3.19×10^{-19}
RF voltage (V_{0p})	200	Gas pressure (Pa)	0 ~ 6
DC voltage (V)	50	Laser flux (photon/s/cm^2) (20 W, 532 nm, 1mmΦ, CW)	7.58×10^{20}
Frequency (Hz)	2.5×10^6	Cross section of photo-detachment (cm^2)	1×10^{-17}

減速チャンバー入り口を通過した時点の時間を t_0、出口における時間を T とすると、イオンの減速チャンバー内における滞在時間は $T - t_0$ で与えられる。また、入口におけるイオンの数を N_0、出口におけるイオンの数を N_f とすると、イオンの透過率は $N_f/N_0 \times 100$ (%)で計算される。

RFQ 内には He ガスを導入し、ガス圧を 0 ~ 6 Pa まで変化させた。RFQ 内の圧力を P とすると、減速管・加速管の RFQ の間の空間のガス圧は 10^{-2} P、減速管・加速管内のガス圧は 10^{-4} P となる差動排気系を想定した。

まずはガス圧が 0 Pa、1 Pa、5 Pa の時を代表として、減速部、四重極部、加速部におけるイオンの挙動とイオンビームの断面について示す。



Deceleration

	Z [mm]
entrance	-183
e1	-144
e2	-117
e3	-90
Ap1	-50.5
G1	-37
G2	-23.5
G3	-10
Ap2	-1.5

RFQ

	Z [mm]
RFQ	0
	50
	100
	150
	200
	250
	300
	350
	400

Acceleration

	Z [mm]
Ap3	402.5
G4	416
G5	429.5
G6	443
Ap4	465
e6	502
e7	529.5
e8	556
exit	583

Figure 3-31 計算状況と各電極の座標

3.7.6. 減速部におけるイオンの挙動

減速部におけるイオンの挙動について、イオンの速度(Vx、Vy、Vz)、エネルギーの変化及びイオンの滞留時間について Fig. 3-32 に示す。Table 3-6、7、8 にはそれぞれ 0 Pa、1 Pa、5 Pa 時の減速部の各座標におけるエネルギー、滞留時間、イオンの速度についてまとめた。

z < -50 mm の時、Vx 及び Vy は真空及び He ガス導入時において、いずれも-1 ~ 1 mm/μs の間の値となった。一方、ガス導入時には z = -50 mm 付近で Vx と Vy が大きく変化した。z = -50.5 mm には 1 枚目のアパーチャー(Ap1)が設置されており、それ以降は差動排気系の 2 段階目に位置する。圧力は開口部を隔てて 2 桁高くなっており、イオンがガス分子と衝突をしたため、速度が変化したと考えられる。1 Pa よりも 5 Pa の場合の方が、四重極部外のガス圧が高くガス分子との衝突回数が増加するため、イオンが大きく散乱したものと考えられる。

Vz は電圧の勾配にしたがって減速し、四重極部入射前には 0 Pa 時で 16.3 mm/μs、ガス導入時には 1 Pa の時 16.2 mm/μs、5 Pa の時 15.7 mm/μs となった。Vz は Vx、Vy と異なり、ガス分子の有無に依らず大きな違いは見られなかったが、これはイオンのエネルギーも同様に減速され、真空時とガス導入時でそれぞれ、51.3 eV、50.8 eV、47.9 eV まで減速した。四重極部内に導入しているガスの圧力が低いため、RFQ 外の圧力も低く、ガスによる減速はほとんど見られなかった。

減速チャンバー入口から RFQ 入口までの所用時間も 0 Pa、1 Pa、5 Pa 時でそれぞれ 2.37 μs、2.37 μs、2.38 μs とほぼ等しかった。減速部の滞留時間は 2.3 μs であるから減速部におけるレーザーによる同重体の抑制率を計算すると、1.8 % 程度となり減速において同重体の抑制はほとんど行われていないと考えられる。

Figure 3-33 と 3-34 に RFQ 内のガス圧が 0 Pa と 1 Pa 時のビームの断面の変化を示す。2 枚のアパーチャー(Ap1 と Ap2)の径はそれぞれ 3 mm と 4 mm であり、減速管とガイド電極によりイオンビームが開口部を損失なく通過するよう集束していることが分かる。

Table 3-6 減速部のイオンのエネルギー、滞留時間、速度の変化 **(0 Pa)**
それぞれの値は各座標における平均値を示す。

Z (mm)	E (eV)	T (μs)	Vx (mm/μs)	Vy (mm/μs)	Vz (mm/μs)
-183	39144.4	0.35	0.00	0.11	458.06
-144	27343.9	0.44	0.03	-0.20	382.83
-117	13699.6	0.53	-0.01	-0.04	270.97
-90	3817.8	0.67	0.24	0.31	143.01
-50.5	1014.2	1.09	0.05	0.10	73.57
-37	952.8	1.27	-0.04	-0.28	71.27
-23.5	277.8	1.56	-0.06	0.01	38.52
-10	118.3	1.99	0.10	-0.16	24.90
-1.5	**51.3**	**2.37**	0.08	0.33	**16.33**

Table 3-7 減速部のイオンのエネルギー、滞留時間、速度の変化**(1 Pa)**
それぞれの値は各座標における平均値を示す。

Z (mm)	E (eV)	T (μs)	Vx (mm/μs)	Vy (mm/μs)	Vz (mm/μs)
-183	39145.1	0.35	-0.12	0.04	458.06
-144	27343.8	0.44	0.13	0.18	382.83
-117	13698.5	0.53	0.05	0.09	269.16
-90	3816.1	0.68	0.07	-0.08	141.13
-50.5	1035.1	1.10	-0.51	0.67	72.66
-37	981.6	1.32	-0.21	0.39	68.79
-23.5	292.5	1.58	0.09	0.58	37.23
-10	118.6	2.01	0.22	-0.24	24.31
-1.5	**50.8**	**2.37**	-0.09	0.01	**16.21**

Table 3-8 減速部のイオンのエネルギー、滞留時間、速度の変化**(5 Pa)**
それぞれの値は各座標における平均値を示す。

Z (mm)	E (eV)	T (μs)	Vx (mm/μs)	Vy (mm/μs)	Vz (mm/μs)
-183	39100.4	0.39	0.34	-0.16	445.74
-144	27341.7	0.51	-0.06	-0.09	367.74
-117	13644.1	0.57	-0.24	-0.30	262.02
-90	3821.4	0.71	0.08	0.13	139.43
-50.5	1141.4	1.17	1.49	1.04	68.70
-37	1032.5	1.41	1.64	1.30	60.20
-23.5	319.8	1.63	-0.68	-0.32	34.31
-10	123.4	2.03	0.09	0.36	23.02
-1.5	**47.9**	**2.38**	-0.08	0.15	**15.67**

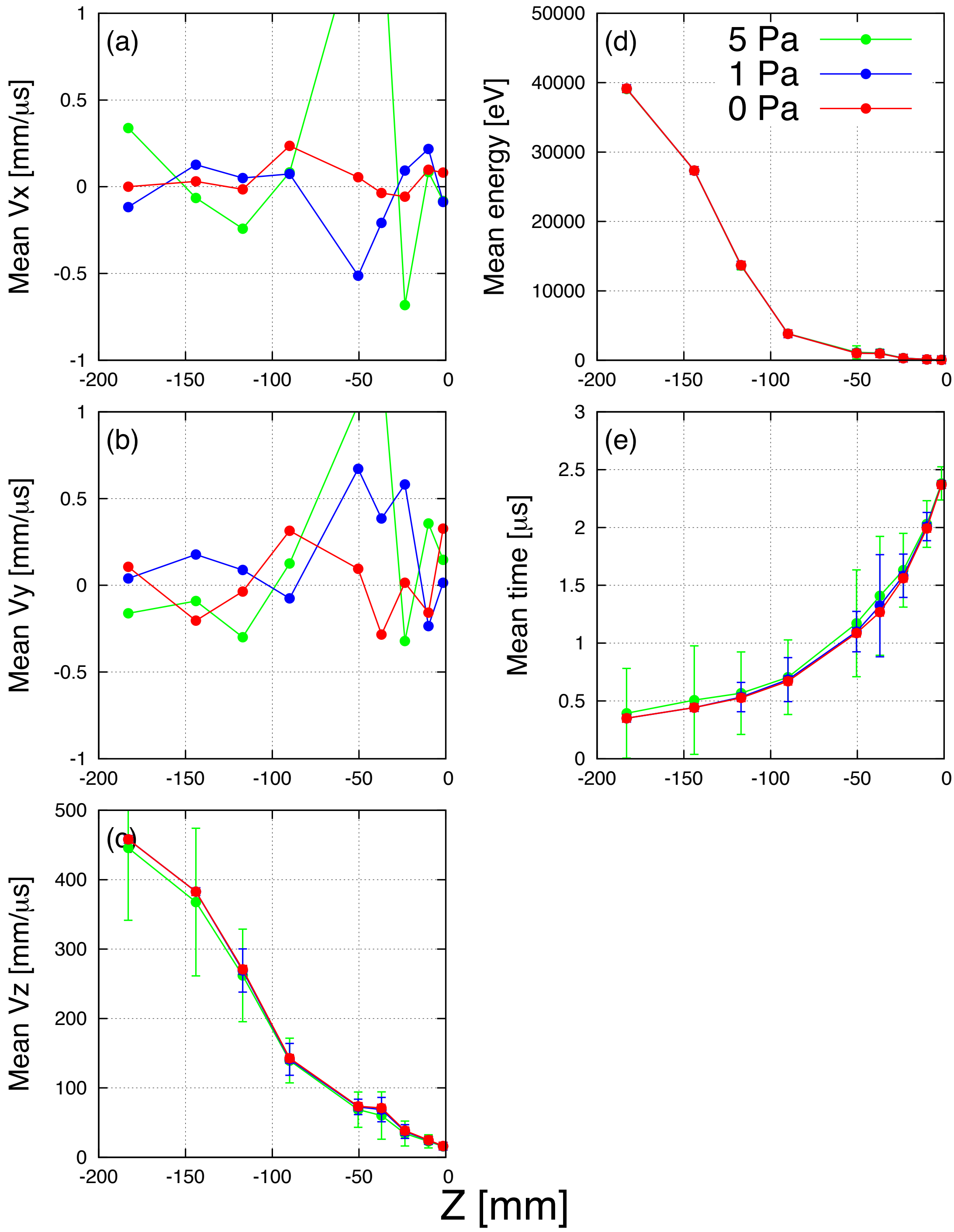


Figure 3-32 減速部におけるイオンの挙動

それぞれ、(a) Vx (b) Vy (c) Vz (d)エネルギー (e) 滞留時間を示す。

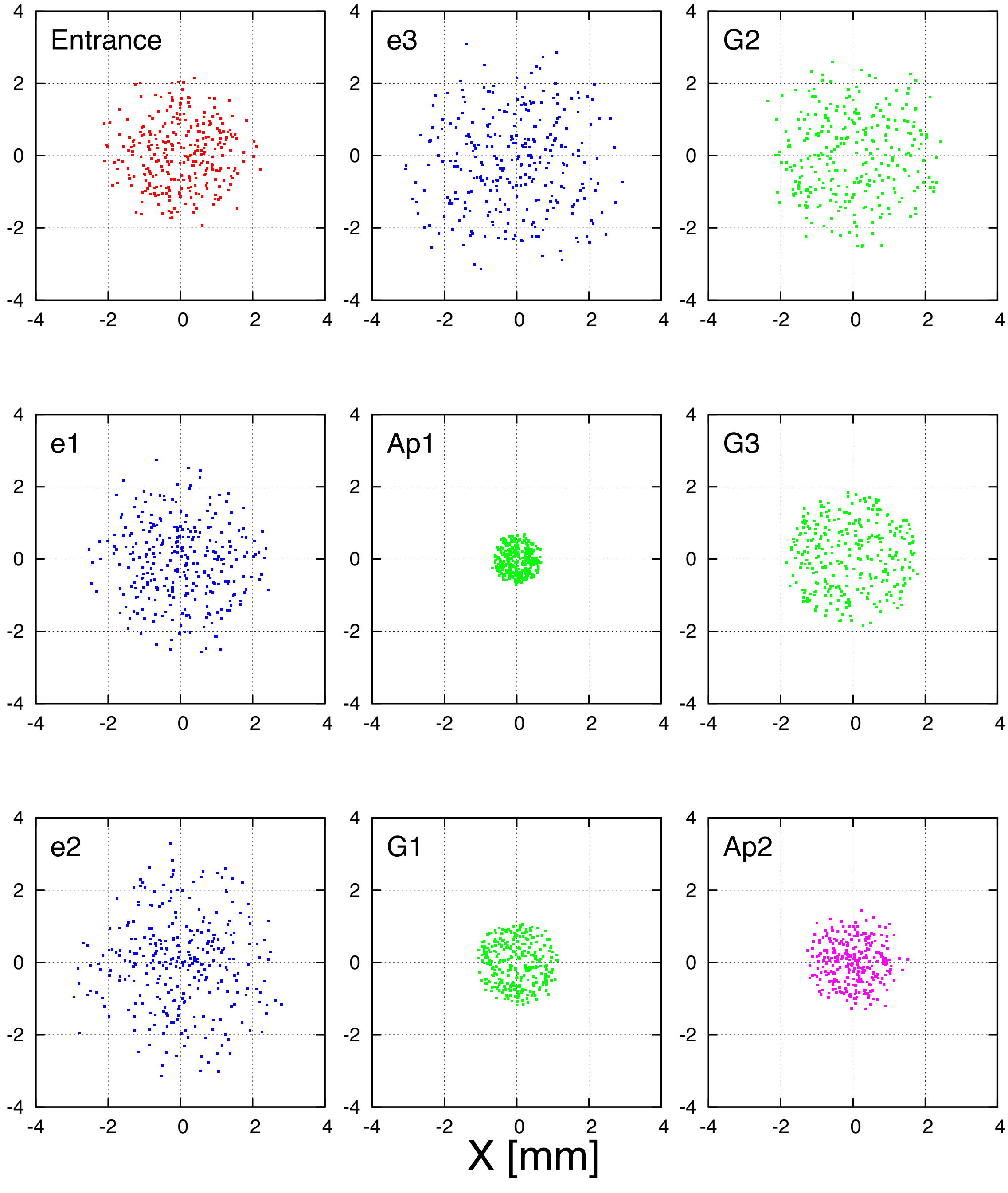


Figure 3-33　減速部におけるビーム断面の変化 **(0 Pa)**

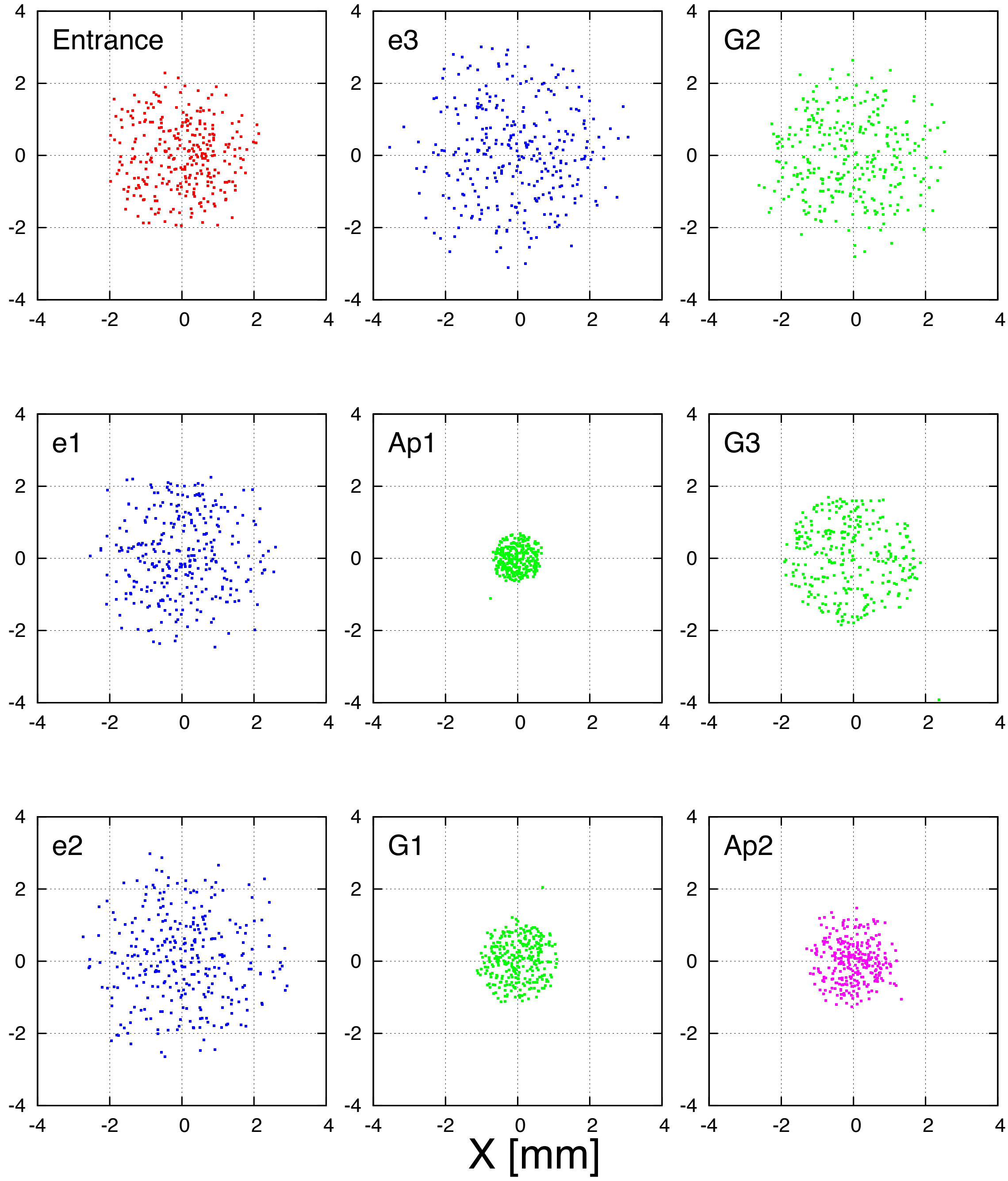


Figure 3-34　減速部におけるビーム断面の変化（**1 Pa**）

3.7.8. 四重極部におけるイオンの挙動

次に、四重極部におけるイオンの挙動について、イオンの速度(Vx、Vy、Vz)、エネルギーの変化について Fig. 3-35 に示す。Table 3-9、10、11 にはそれぞれ 0 Pa、1 Pa、5 Pa 時の四重極部の各座標におけるエネルギー、滞留時間、イオンの速度についてまとめた。

減速部の場合と異なり、ガスが導入された場合、Vx と Vy はイオンが進行するとともに減少し最終的にはほぼ 0 になり、ガス分子との衝突により同径方向の減速が行われていることが観測された。ガス圧が 0 Pa の時の Vx と Vy の変化は、イオンの速度が四重極部内の電圧により周期的に変化していることを反映していると考えられる。

四重極部内にはイオンの進行方向に電場が存在するため、ガスがない場合、イオンが徐々に加速することが Vz 及びエネルギーの変化から観測された。一方、ガス圧 1 Pa 時には z = 300 mm 付近で、イオンはほぼ 1eV 程度まで減速され、それ以降は進行方向の電場により RFQ の出口まで運ばれる。ガス圧 5 Pa 時には z = 50 mm の時点でイオンは 1.5 eV まで減速された。

イオンの滞留時間はガス圧が 0 Pa の時には 28.8 μs であったのに対し、1 Pa 時には 121 μs、5 Pa 時には 544 μs まで増加した。

Figure 3-36 と 3-37 に RFQ 内におけるイオンビームの断面を示す。ガスとの衝突による Collisional cooling により、同径方向の速度成分が減速され、RFQ 入口で発散していたイオンビームが最終的には直径 3 mm 程度まで集束することが確認された。

Table 3-9 四重極部のイオンのエネルギー、滞留時間、速度の変化**(0 Pa)**
それぞれの値は各座標における平均値を示す。

Z (mm)	E (eV)	T (μs)	Vx (mm/μs)	Vy (mm/μs)	Vz (mm/μs)
0	37.0	3.23	0.08	0.17	13.47
50	37.1	6.91	-0.09	-0.16	13.58
100	37.9	10.59	0.17	0.01	13.71
150	38.8	14.23	-0.18	0.33	13.85
200	39.6	17.83	0.10	-0.01	14.03
250	40.5	21.38	0.06	0.38	14.22
300	41.6	24.89	-0.15	-0.22	14.42
350	42.5	28.34	-0.28	-0.20	14.64
400	**43.9**	**31.73**	0.12	0.11	14.89

Table 3-10 四重極部のイオンのエネルギー、滞留時間、速度の変化**(1 Pa)**
それぞれの値は各座標における平均値を示す。

Z (mm)	E (eV)	T (μs)	Vx (mm/μs)	Vy (mm/μs)	Vz (mm/μs)
0	36.9	3.23	0.06	0.16	13.46
50	19.1	7.91	0.05	0.04	9.13
100	10.6	15.44	0.06	0.43	6.31
150	5.7	26.96	-0.08	-0.03	4.40
200	3.5	42.88	-0.12	0.06	3.31
250	2.5	62.07	-0.04	0.13	2.83
300	**1.9**	82.77	-0.04	0.01	2.58
350	1.7	103.49	0.03	0.01	2.59
400	**1.8**	**123.04**	0.03	-0.01	2.76

Table 3-11 四重極部のイオンのエネルギー、滞留時間、速度の変化**(5 Pa)**
それぞれの値は各座標における平均値を示す。

Z (mm)	E (eV)	T (μs)	Vx (mm/μs)	Vy (mm/μs)	Vz (mm/μs)
0	30.4	2.90	-0.01	-0.14	11.92
50	**1.5**	24.16	0.02	0.12	1.73
100	0.2	112.27	-0.04	-0.04	0.63
150	0.2	206.40	0.02	-0.01	0.71
200	0.2	289.22	-0.01	0.01	0.82
250	0.3	361.49	-0.04	0.02	0.99
300	0.2	428.02	-0.03	-0.01	0.88
350	0.2	491.45	0.01	0.02	0.89
400	**0.3**	**548.03**	-0.01	-0.01	1.03

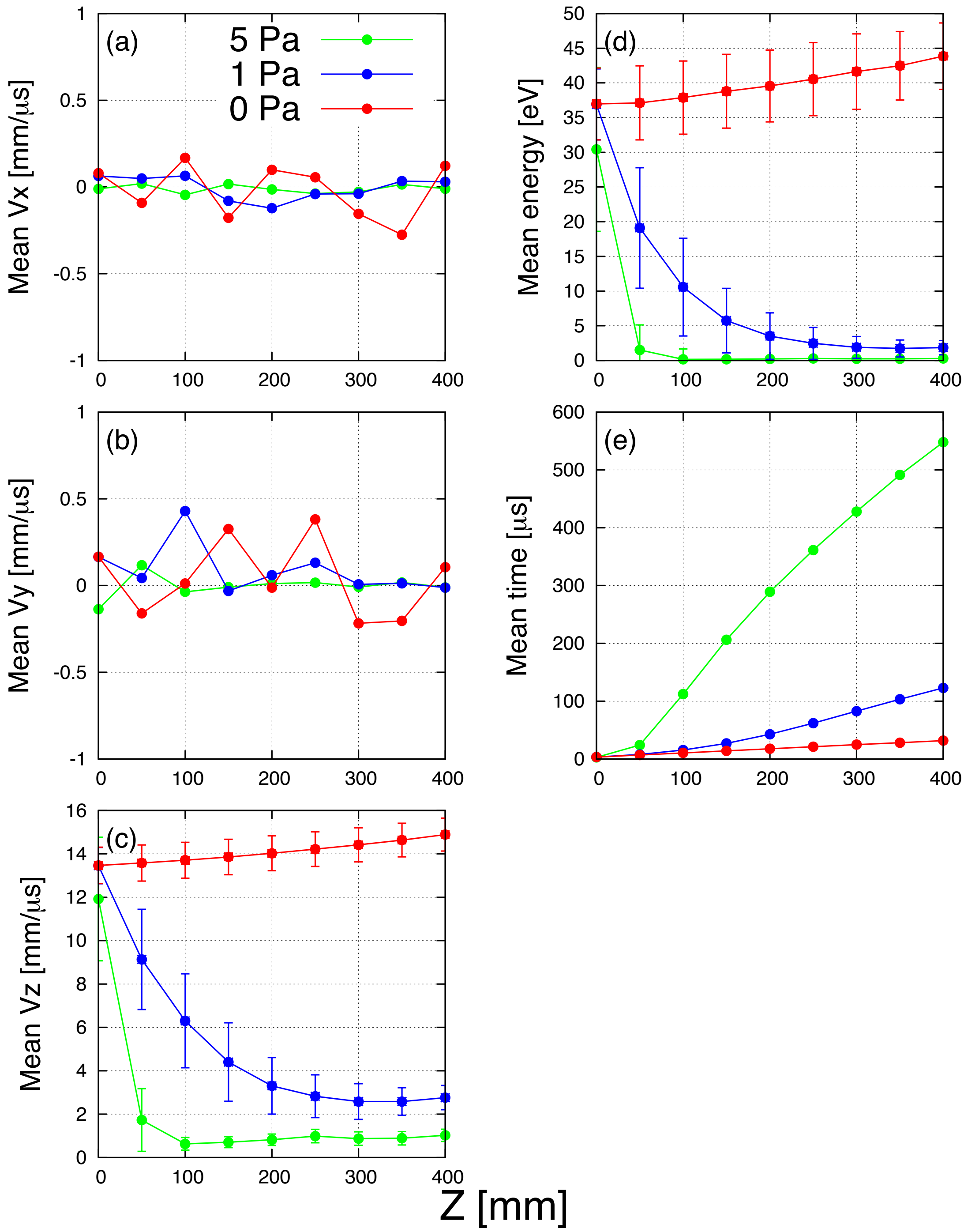


Figure 3-35 四重極部におけるイオンの挙動

それぞれ、(a) Vx (b) Vy (c) Vz (d)エネルギー (e)滞留時間を示す。

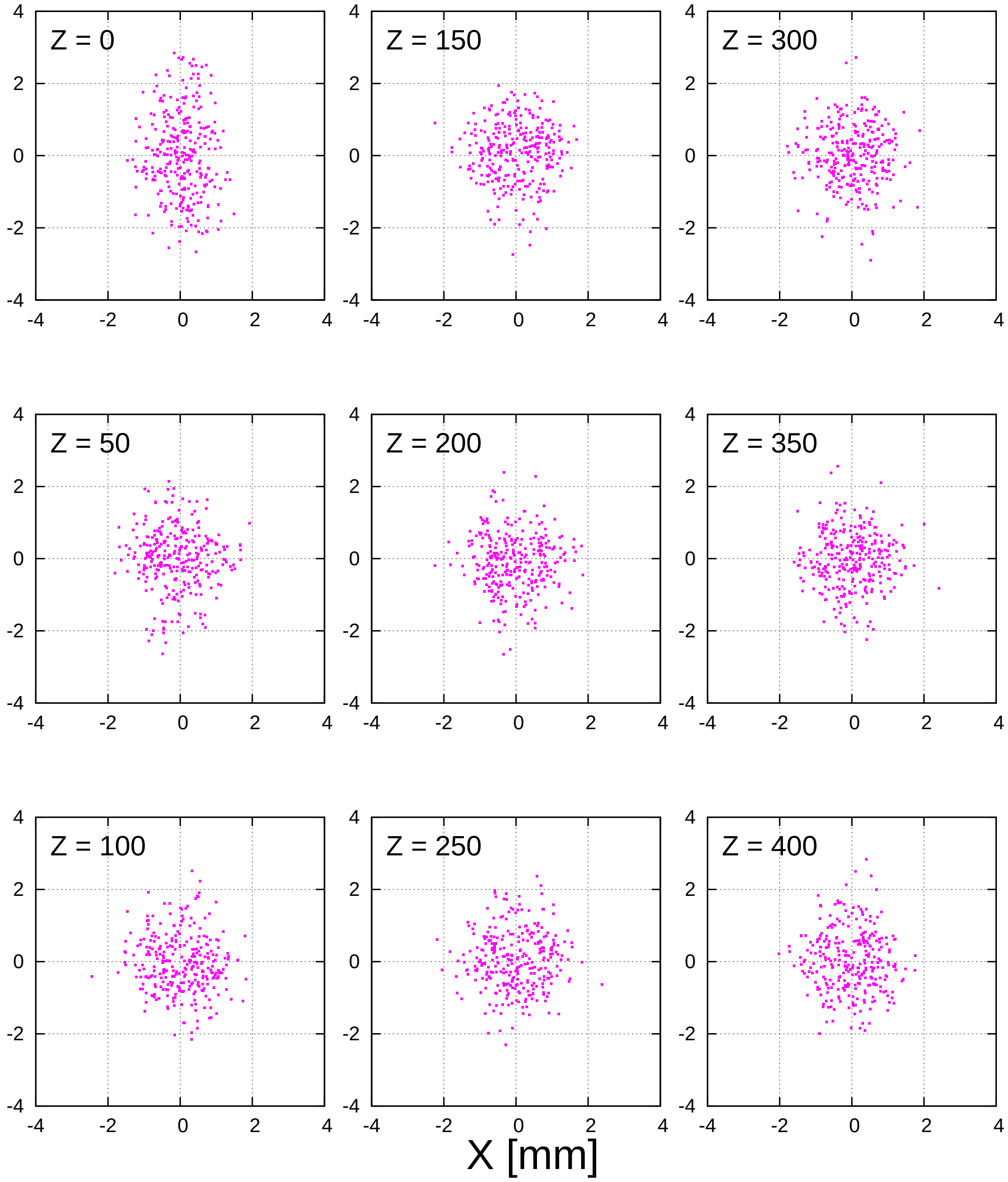


Figure 3-36　四重極部におけるビーム断面の変化 **(0 Pa)**

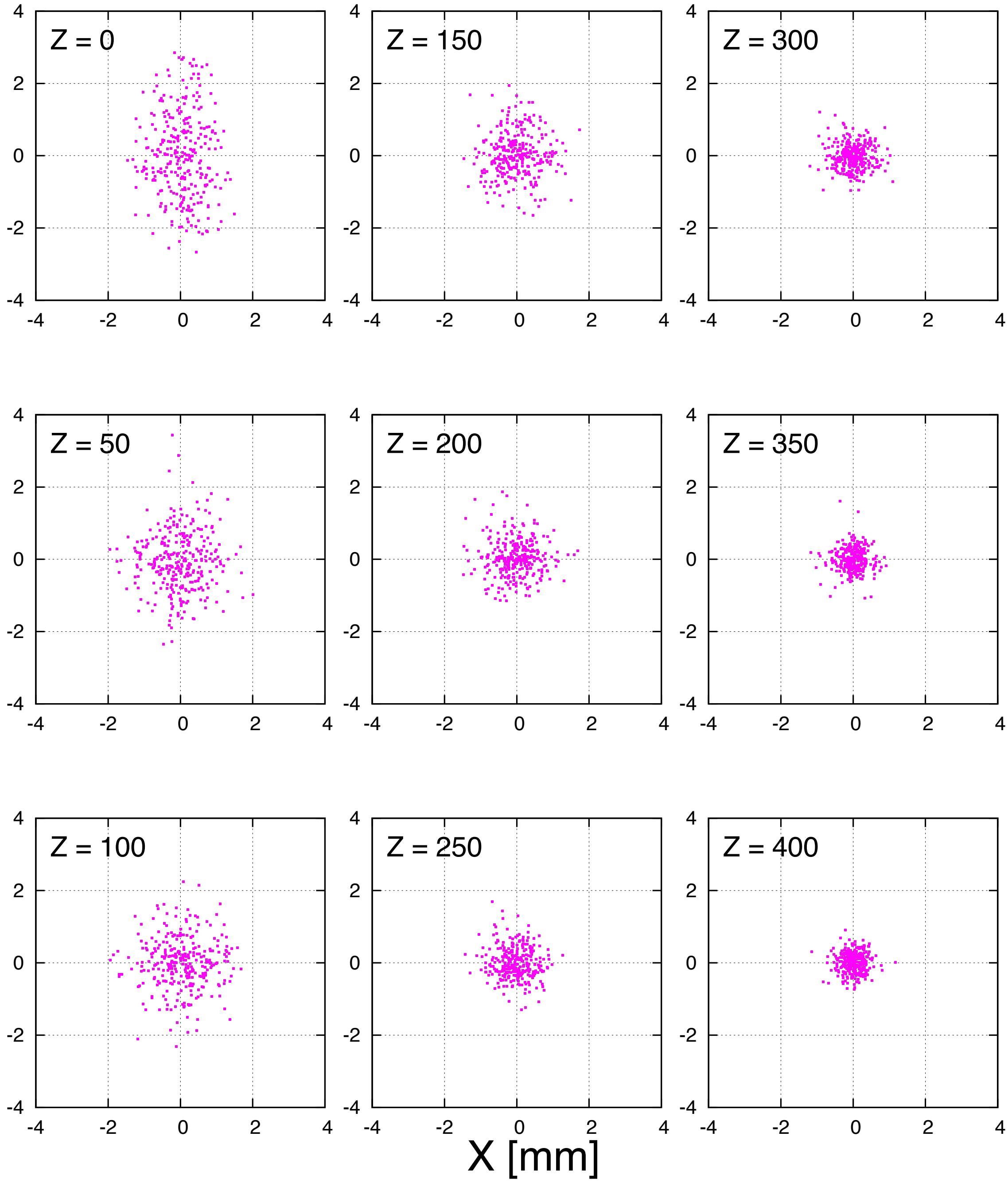


Figure 3-37　四重極部におけるビーム断面の変化 **(1 Pa)**

3.7.9. 加速部におけるイオンの挙動

最後に、加速部におけるイオンの挙動について、イオンの速度(Vx、Vy、Vz)、エネルギーの変化について Fig. 3-38 に示す。Table 3-12、13、14 にはそれぞれ 0 Pa、1 Pa、5 Pa 時の四重極部の各座標におけるエネルギー、滞留時間、イオンの速度についてまとめた。

ガス導入時には 0 Pa の時よりも Vx、Vy ともに小さくなり、四重極部内でもガスとの衝突による Collisional cooling によりイオンビームの散乱が抑えられたことが観測された。1 Pa の時よりも 5 Pa の時の方が Vx、Vy の変動が大きいが、これは四重極部外でのイオンとガス分子の衝突によるものと考えられる。

Vz 及びイオンのエネルギーはいずれの場合もほぼ同じ変化を示した。イオンの滞留時間も、四重極部内の滞留時間の違いを反映する以外はほぼ同じ結果を示した。

Figure 3-39、3-40 に 0 Pa 時と 1 Pa 時の加速部におけるビーム断面の変化を示す。1 Pa の場合、四重極部における Collisional cooling によりイオンビームの散乱が抑えられ、ビームが集束されたことが確認された。

Table 3-12 加速部のイオンのエネルギー、滞留時間、速度の変化**(0 Pa)**
それぞれの値は各座標における平均値を示す。

Z (mm)	E (eV)	T (μs)	Vx (mm/μs)	Vy (mm/μs)	Vz (mm/μs)
400	44.8	31.74	0.11	0.13	15.16
402.5	54.8	31.97	0.14	0.05	16.90
416	199.3	32.49	-0.10	0.12	32.58
429.5	372.0	32.84	-0.37	0.30	44.29
443	1013.2	33.05	-0.28	0.27	73.57
465	1307.6	33.34	-0.24	0.19	83.64
502	6174.8	33.64	0.03	-0.11	181.92
529.5	19151.8	33.75	0.12	-0.21	320.39
556	31863.3	33.82	0.05	-0.15	413.27

Table 3-13 加速部のイオンのエネルギー、滞留時間、速度の変化**(1 Pa)**
それぞれの値は各座標における平均値を示す。

Z (mm)	E (eV)	T (μs)	Vx (mm/μs)	Vy (mm/μs)	Vz (mm/μs)
400	2.3	122.98	0.04	-0.02	3.31
402.5	13.5	123.52	-0.02	-0.02	8.37
416	164.3	124.21	-0.02	0.00	29.66
429.5	343.3	124.58	0.01	0.03	42.81
443	969.5	124.79	0.00	0.01	72.06
465	1266.0	125.09	0.01	0.01	82.36
502	6160.4	125.39	0.03	0.01	181.71
529.5	19117.5	125.50	0.03	0.01	320.11
556	31818.1	125.57	0.03	0.01	412.98

Table 3-14 加速部のイオンのエネルギー、滞留時間、速度の変化**(5 Pa)**
それぞれの値は各座標における平均値を示す。

Z (mm)	E (eV)	T (μs)	Vx (mm/μs)	Vy (mm/μs)	Vz (mm/μs)
400	0.7	553.21	0.00	-0.02	1.83
402.5	12.2	553.98	0.04	0.04	8.03
416	162.4	554.68	0.01	-0.03	29.50
429.5	342.3	555.05	-0.09	-0.06	42.80
443	960.6	555.27	-0.11	-0.07	71.72
465	1256.0	555.43	-0.11	-0.07	82.03
502	6144.0	555.73	0.08	0.06	181.47
529.5	19109.5	555.84	0.14	0.09	320.04
556	31793.0	555.91	-0.05	0.06	412.81

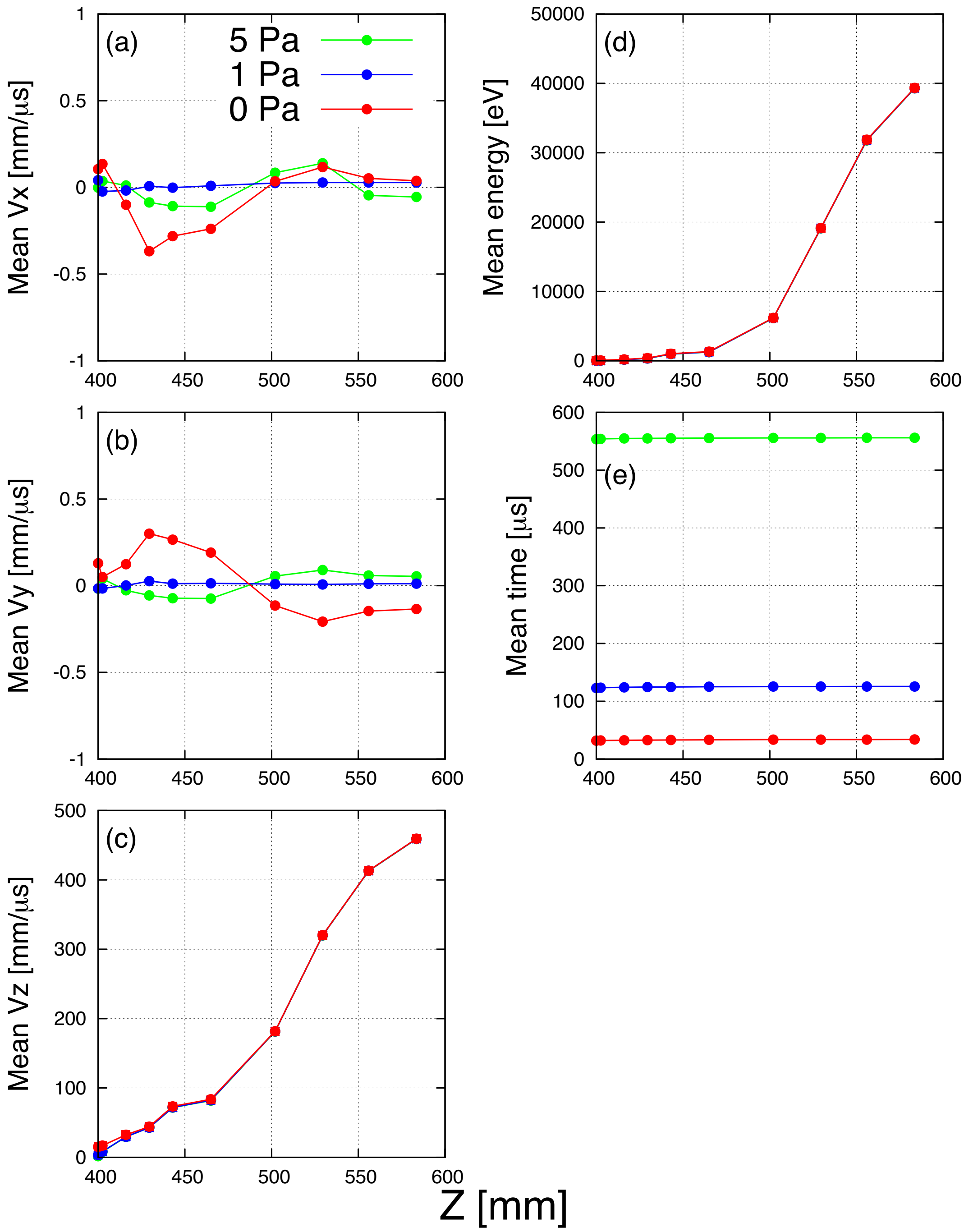


Figure 3-38 加速部におけるイオンの挙動

それぞれ、(a) Vx (b) Vy (c) Vz (d) エネルギー (e)滞留時間を示す。

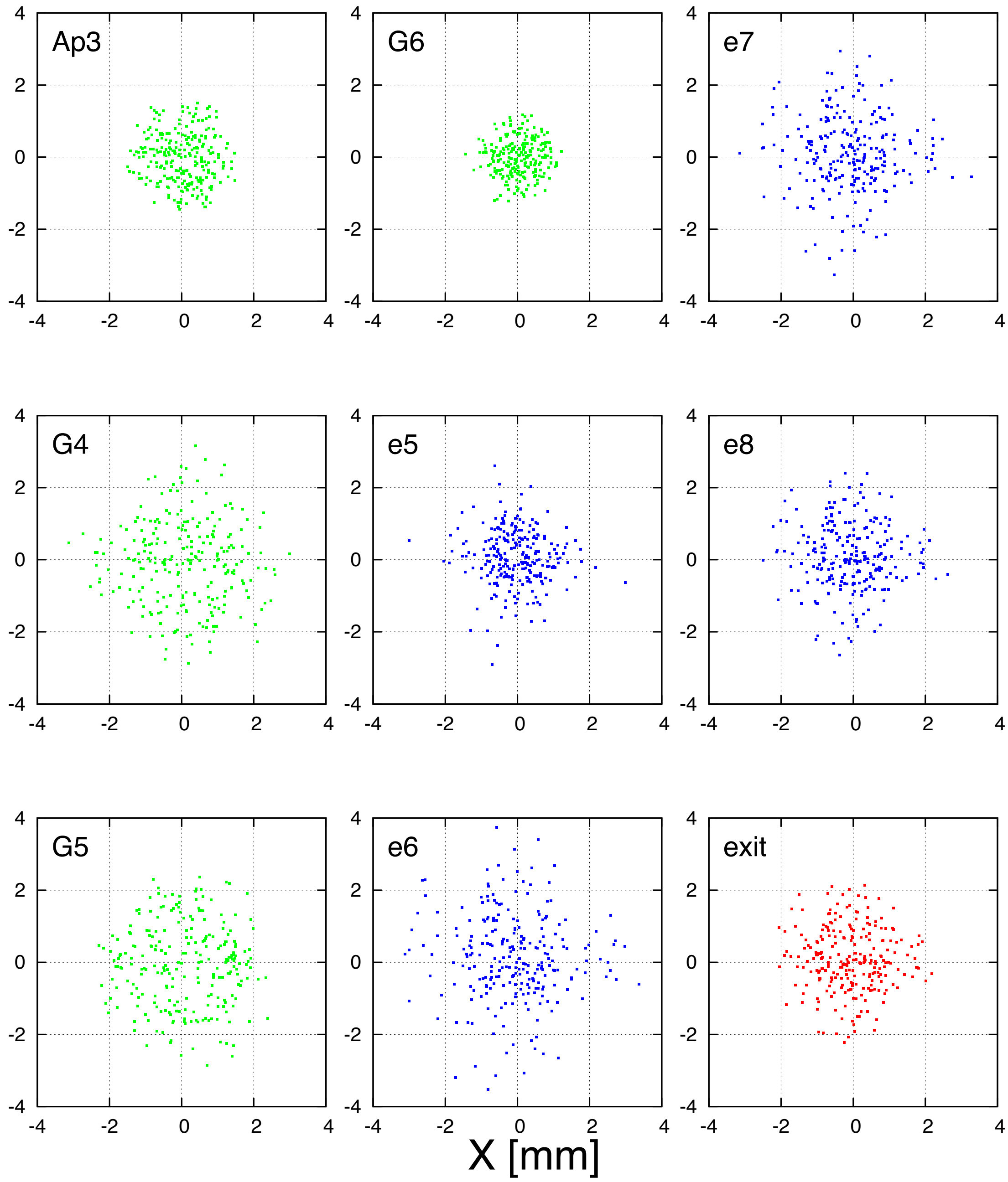


Figure 3-39　加速部におけるビーム断面の変化（0 Pa）

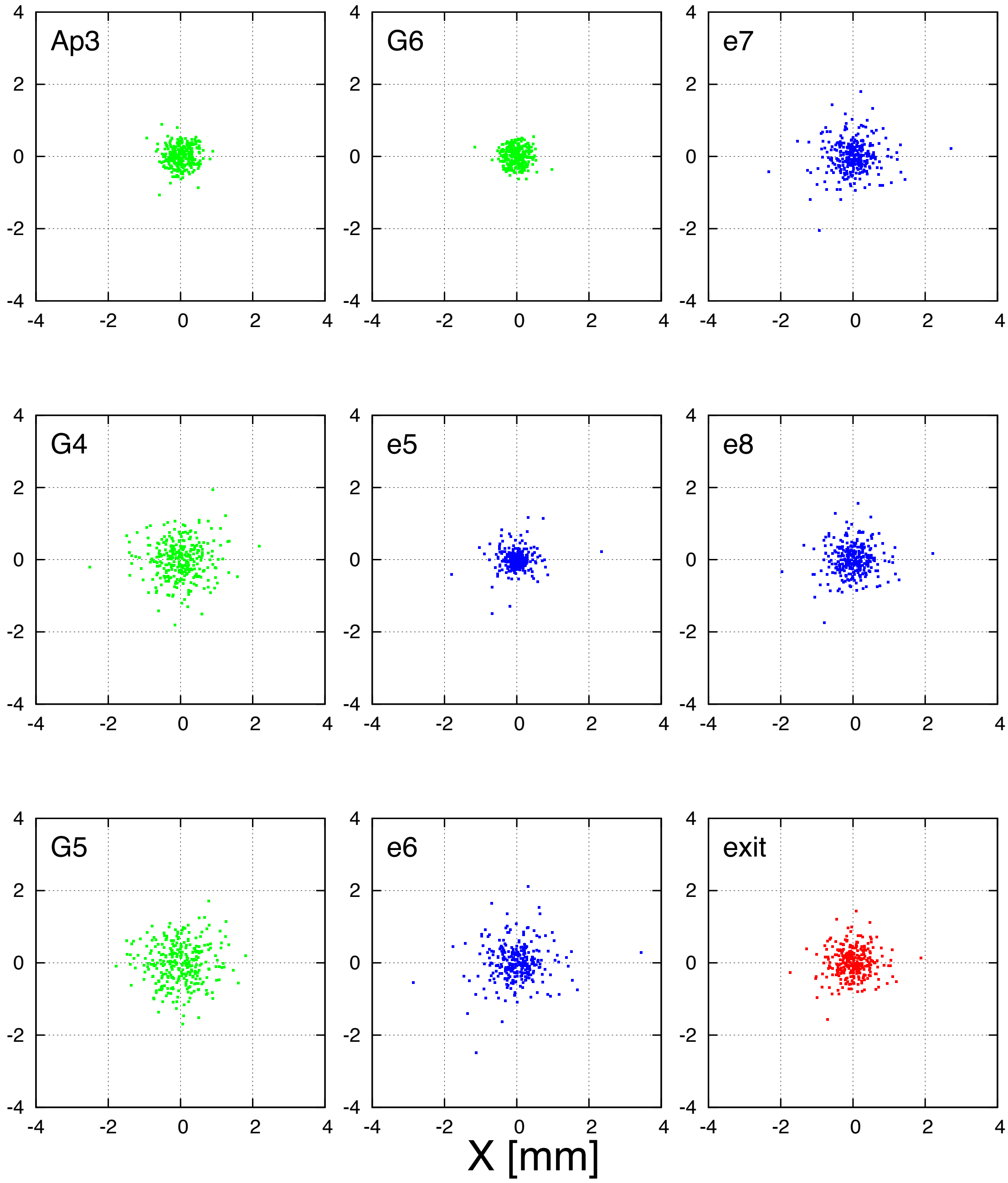


Figure 3-40　加速部におけるビーム断面の変化（1 Pa）

3.7.10. 減速チャンバー内のイオンの挙動のまとめ

減速チャンバーにおけるイオンの挙動について、イオンの速度(Vx、Vy、Vz)、エネルギーの変化、滞留時間をまとめたものを Fig. 3-41 に示す。

・Vx, Vy

減速部・加速部のガス圧は差動排気系により、四重極部のガス圧が高くなるにしたがって増加する。そのため、イオンがガス分子と衝突する確率が増加し、減速部と加速部においてガス圧が高いほど Vx、Vy の変動は大きくなった。一方四重極部内ではガスとの衝突によるイオンの冷却が行われ、ガス圧が高くなるほど Vx と Vy の変動は小さくなった。

・Vz, エネルギー

減速部と加速部における Vz の変化はガスの有無にかかわらず大きな違いは見られなかった。四重極部においては、ガスがない場合には DC 電極による軸方向の電場によりわずかな加速が見られた。ガスがある場合、イオンが進行するに従って Vz が減少し、ガス圧が高くなるほど減少が急激に生じる。

動径方向の広がりが小さいビームを仮定しているため、イオンのエネルギーは Vz によってほぼ決定し、チャンバー内のエネルギーも Vz と同様の変化を示した。

・滞留時間

イオンの滞留時間は減速部と加速部においてはガスがない場合とガスがある場合でほとんど違いは見られなかった。四重極部内ではガス分子との衝突による冷却により、イオンの滞留時間を増加させることが可能であり、ガス圧が高くなるほど滞留時間は増加した。

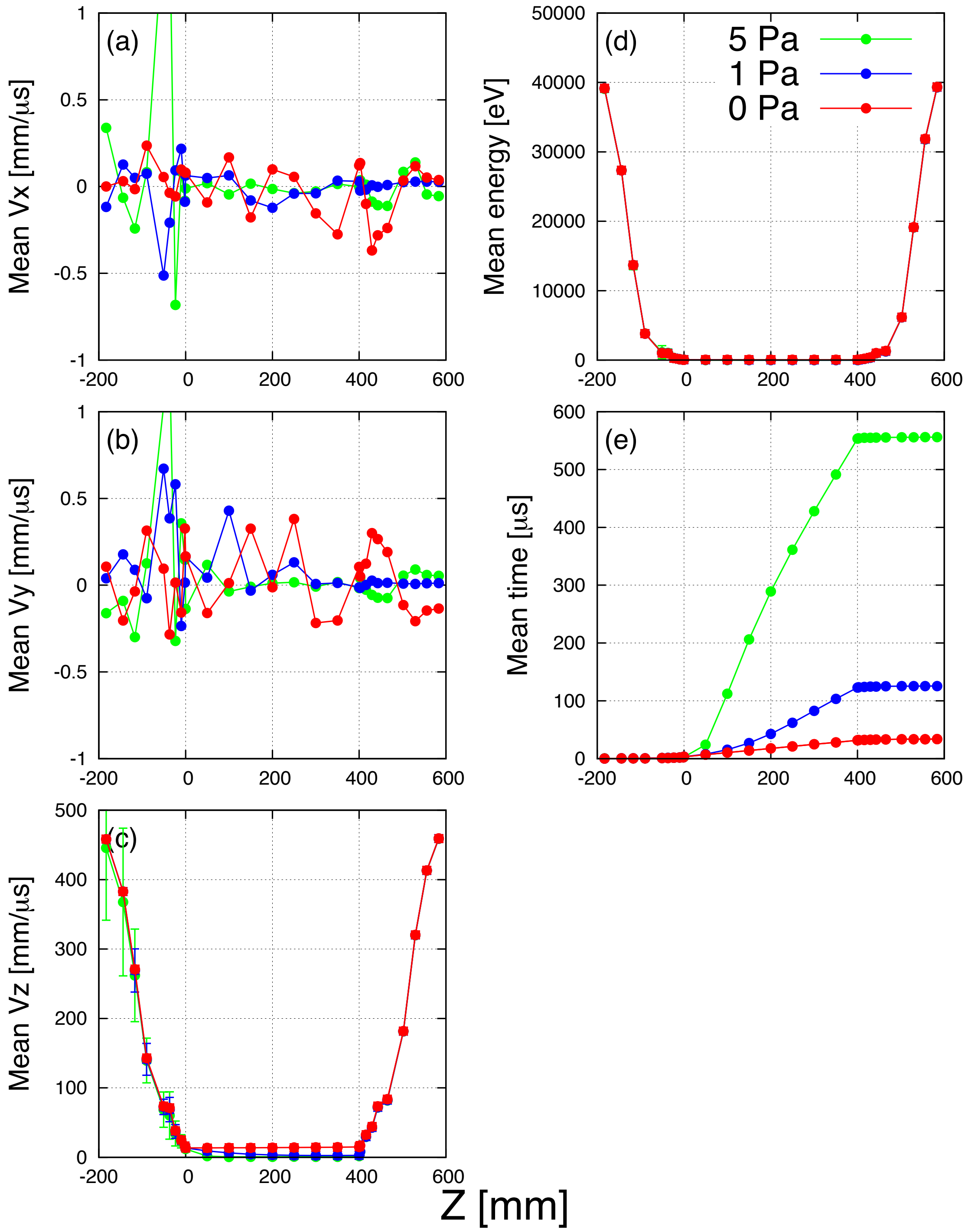


Figure 3-41 減速チャンバー内のイオンの挙動

それぞれ、(a) Vx (b) Vy (c) Vz (d)エネルギー (e)滞留時間を示す。

3.7.11. ガス圧によるイオンの滞留時間の変化

ガス圧とイオンの滞留時間の関係及び、滞留時間から見積もられる同重体の抑制率を Table 3-15 と Fig. 3-42 に示す。ガス圧が高くなるほどイオンのチャンバー内部での滞留時間が長くなり、0 Pa 時の滞留時間が 28.8 μs であったのに対し、5 Pa 時には 544 μs、6 Pa 時には 666 μs が得られた。S の光脱離反応の反応断面積を 1×10^{-17} cm^2 とすると、S の抑制率は式(3-14)より、5 Pa 時で 0.9902、6 Pa で 0.9936 となった。

$$S = 1 - \frac{N}{N_0} = 1 - \exp(-\sigma\phi t) \qquad \text{(3-14)(再掲)}$$

Table 3-15 イオンの滞留時間と同重体の抑制率

Gas pressure [Pa]	Mean residence time [μs]	Suppression rate
0	28.8	0.1963
0.5	65.5	0.3912
1	121.3	0.6012
1.5	173.8	0.7323
2	228.7	0.8234
2.5	278.3	0.8787
3	327.7	0.9166
3.5	379.5	0.9437
4	444.9	0.9657
4.5	490.5	0.9757
5	544.1	0.9838
5.5	610.5	0.9902
6	666.2	0.9936

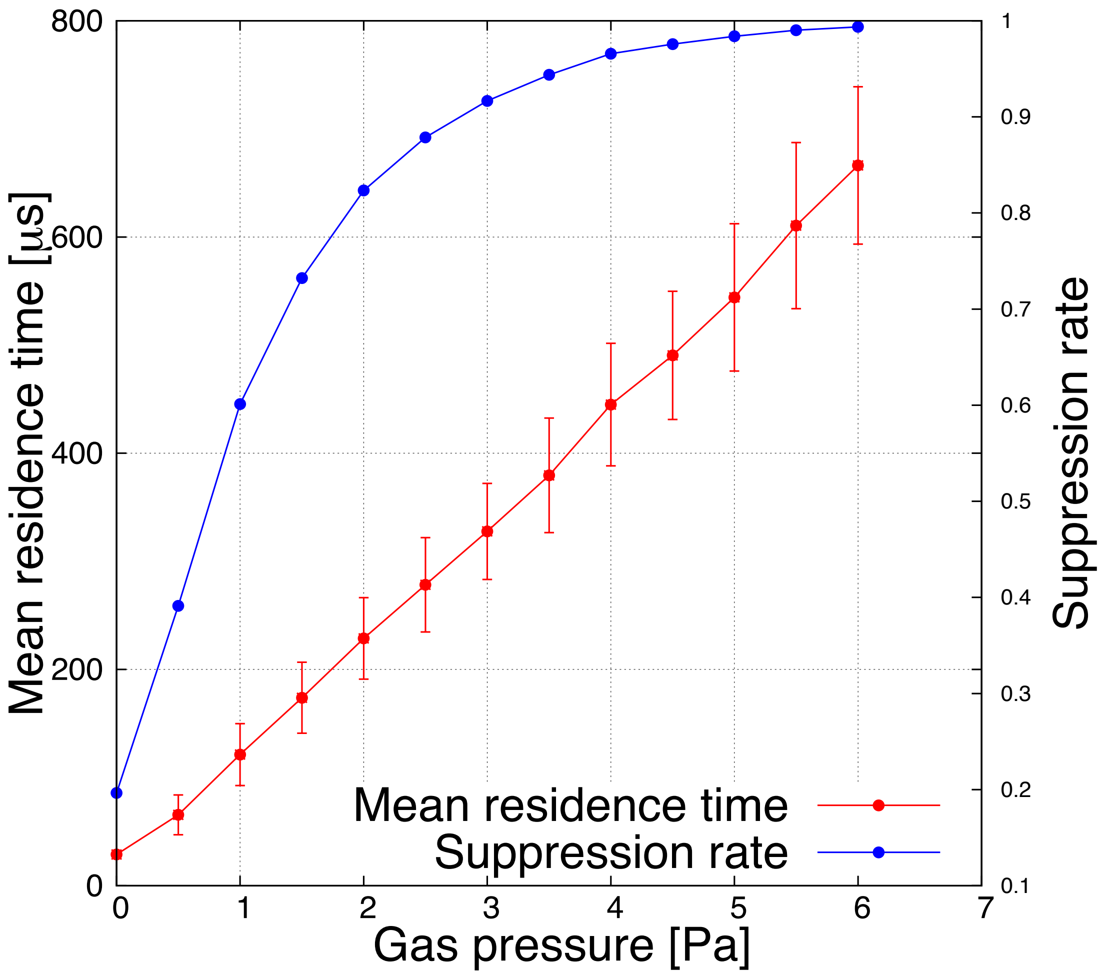


Figure 3-42 負イオンの滞留時間と抑制率の変化

3.7.12. イオンの透過効率の変化

イオンのチャンバーの透過率を Table 3-16 と Fig. 3-43 に示す。0 Pa の場合、減速部と四重極部でのイオンの損失はなかったが、加速部に入射する際の透過率が 70 %程度まで減少した。Fig. 3-36、3-39 に示したように、四重極部内にガス分子が存在しない場合、Collisional cooling によるイオンの集束が行われないため、四重極部と加速部の間の開口部付き電極にイオンが衝突したためであると考えられる。

実際に、四重極部出口から加速部にかけてのイオンの軌道は Fig. 3-44 のようになり、0 Pa 時には四重極部出口から加速部に入射する際にビームが膨らみ電極と衝突する。Fig. 3-45 は加速部におけるイオンと電極・ガス分子との衝突を示す。黒丸は電極との衝突、赤丸はガス分子との衝突を示し、0 Pa の場合イオンは開口部付き電極だけでなく、それ以降のガイド電極などにも衝突することが分かる。

一方、ガス分子が存在する場合、アパーチャーとの衝突はなかったが、加速部においてガス分子との衝突が見られた。そのため、1 Pa から 6 Pa の場合、減速部から四重極部に入射する際にイオンが少し失われていた。加速部ではガス圧が高くなるに従って透過効率が減少するが、四重極部内のガス圧が増加すると差動排気系により加速部の圧力も増加するため、四重極通過後にチャンバー外のガスとイオンが衝突したことが原因であると考えられる。

Table 3-16 ガス圧によるイオンの透過効率の変化

Z	Gas pressure [Pa]						
[mm]	0	1	2	3	4	5	6
-360	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0	0.997	0.987	0.950	0.913	0.887	0.883	0.830
400	0.997	0.987	0.950	0.913	0.887	0.883	0.830
583	0.833	0.987	0.950	0.900	0.883	0.877	0.820

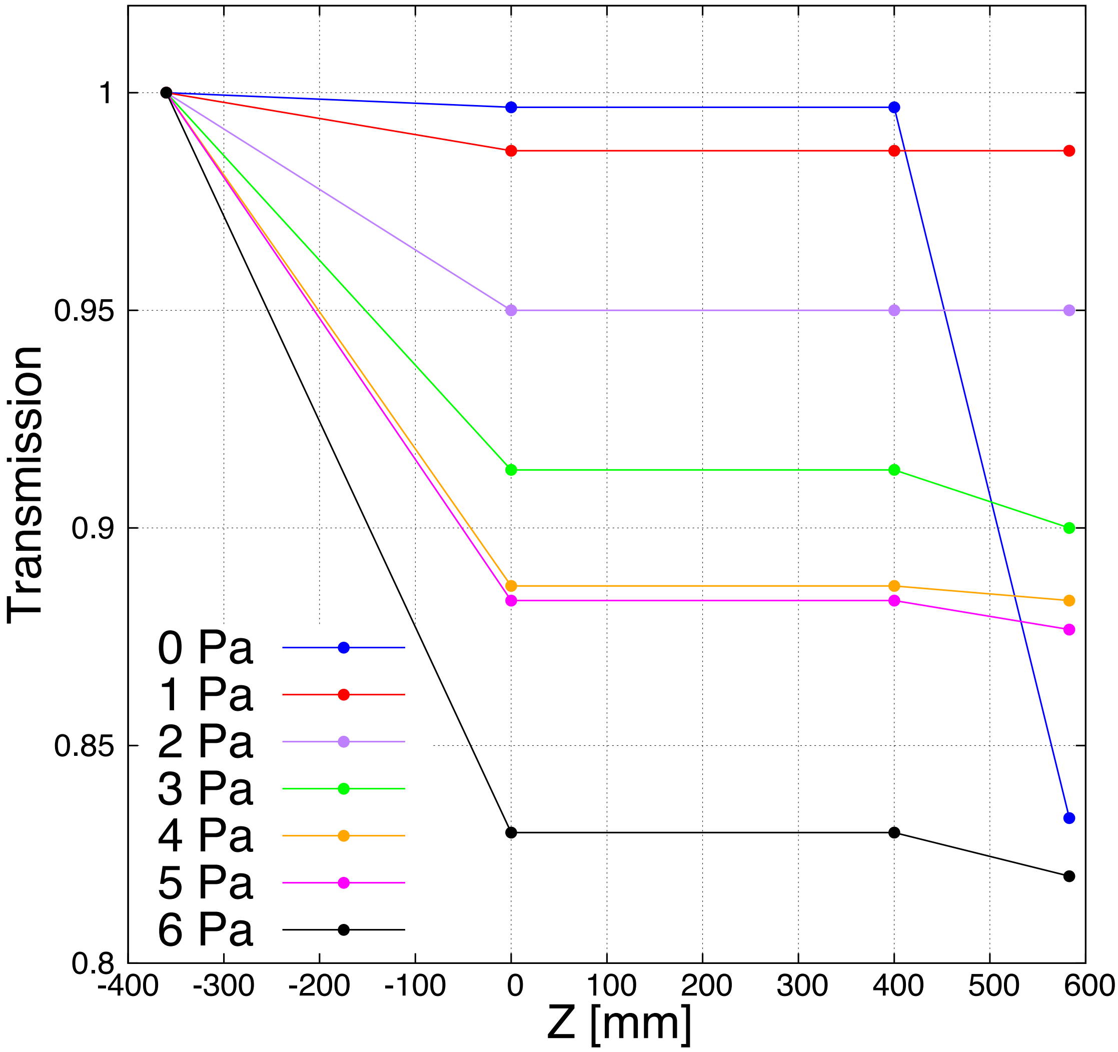


Figure 3-43 負イオンの透過効率の変化

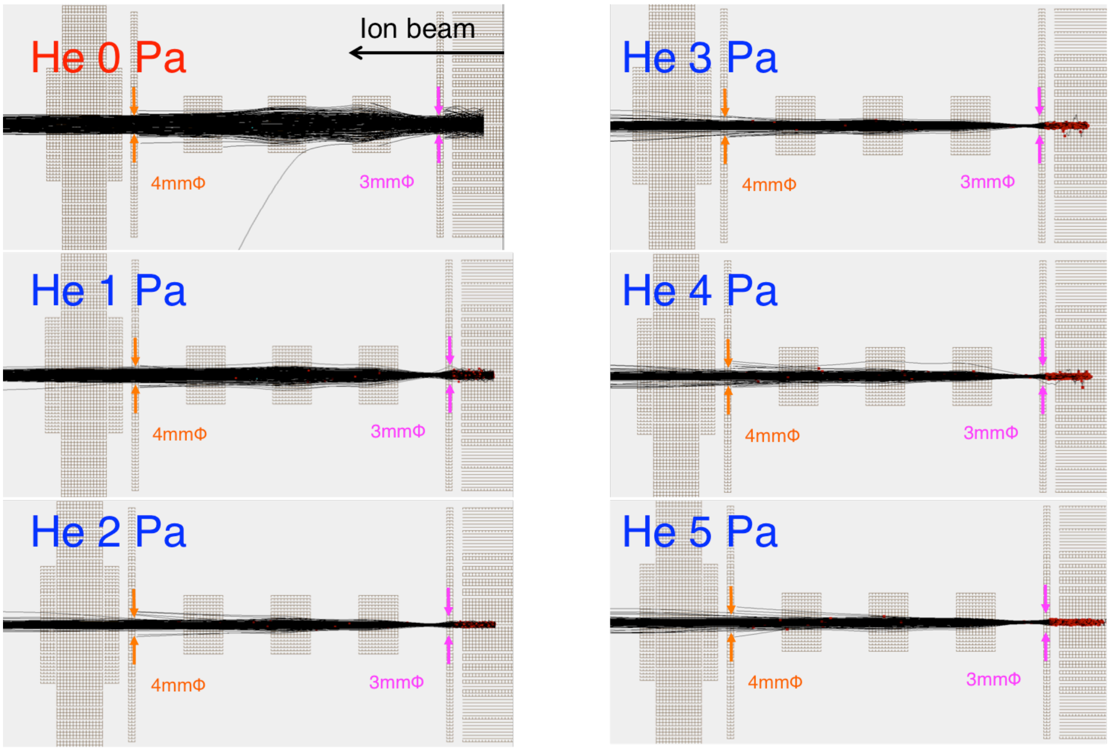


Figure 3-44 ガス圧の違いによる RFQ 出口のイオンの軌道の変化

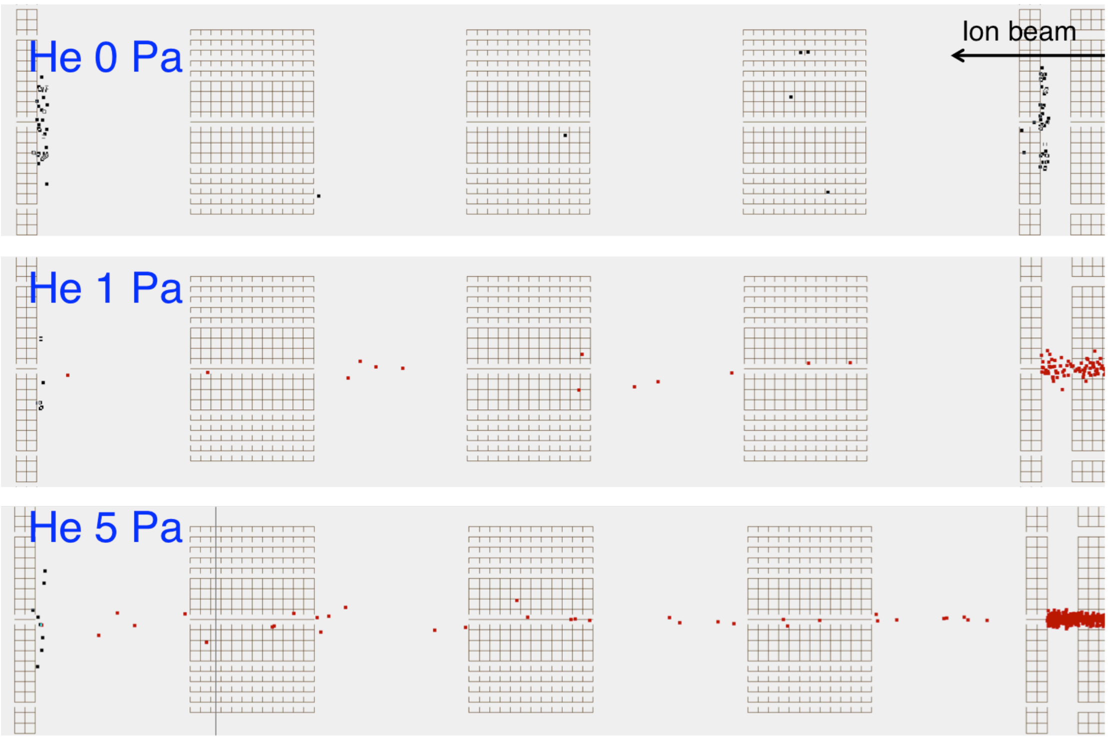


Figure 3-45 加速部でのイオンとガスとの衝突

3.7.13. シミュレーションによる計算のまとめ

設計した負イオン減速チャンバーについて、四重極部内のガス圧を変化させた時のイオンの滞留時間の変化と透過効率を評価した。イオンとガス分子の衝突は SIMION8.1 の剛体球モデルを使用した。

計算の結果、滞留時間は 0 Pa の時には 28 μs であったのに対し、He のガス圧を 6 Pa まで上昇させると 666 μs まで増加した。20 W の連続レーザーによる光脱離反応を考慮すると、同重体の抑制率は 0.196 から 0.9936 まで向上すると予想される。一方、イオンの透過効率はガス圧が増加するほど減少した。これはチャンバー外部でのガス分子とイオンの衝突によるものと考えられる。

同重体の抑制率とイオンの滞留時間を考慮すると、四重極内部のガス圧を 3 Pa 以上で運用すれば、80 %以上の透過効率を保ちつつ、90 %以上の同重体を抑制することが可能であると考えられる。

イオンの挙動について調べたところ、四重極部内のイオンとガス分子の衝突による Collisional cooling から、イオンの動径方向の速度成分の減速が効果的に行われることが観測された。

3.8. 実機へ導入した際の効果の見積もり

最後に、設計した負イオン減速チャンバーを用いて、レーザー光脱離法を東京大学タンデム加速器研究施設(MALT)の実ビームラインに導入した場合の抑制効果を推定した。^{36}Cl を測定することを想定し、比較として、現在使用しているガス充填型電磁石の透過効率と抑制効果を併記した図を Fig. 3-46 に示す。

Figure 3-46 は GFM と LPD を導入した場合の透過効率と抑制率(Suppression factor)の関係を表す。GFM の Suppression factor は 8×10^{-4} であることに対し、透過効率は 1 %程度であった[13]。一方、LPD の Suppression factor は 6×10^{-3} であるが、透過効率は 80 %以上と大きく向上することが分かる。

結果として、抑制率の低下により検出感度は 1 桁ほど悪くなってしまうが測定効率に大幅に向上すると予想される。したがって、福島第一原子力発電所周辺土壌のように、比較的高い ^{36}Cl/Cl 比を持つが試料量が限られた試料の測定は、LPD を導入した測定システムにより十分行うことが可能であると考えられる。

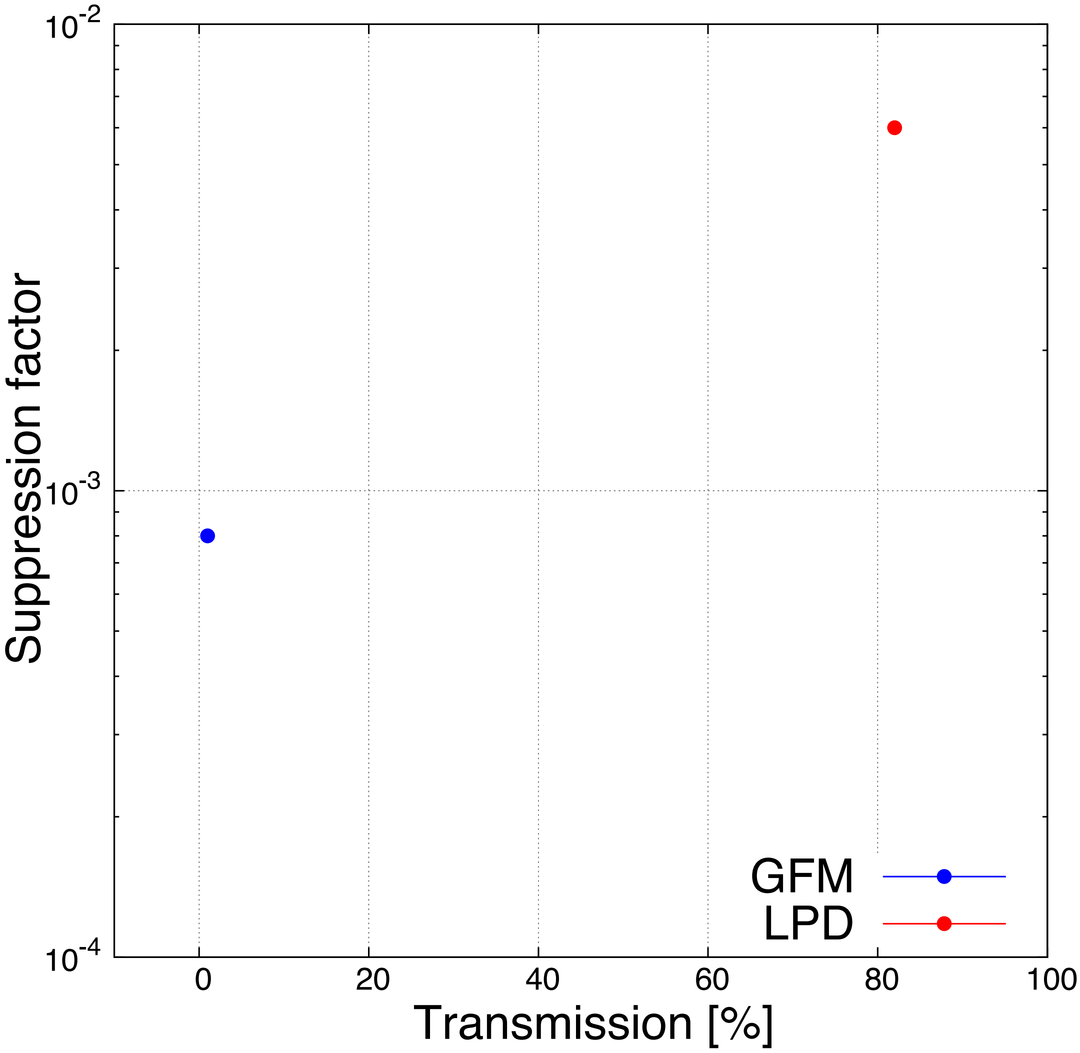


Figure 3-46 GFM と LPD の抑制率と透過効率の比較[13]

3.9. 3 章のまとめ

負イオン減速チャンバーは主に減速部、高周波四重極部、加速部から構成される。減速部ではイオン源から引き出されたイオンビームを電場により減速する。その際に拡がろうとするビーム束をトラップするために、減速部の後には高周波四重極が設置される。さらに、四重極内に He ガスを導入することでイオンをさらに減速し、内部での滞留時間を増加させ、レーザーとの相互作用時間を伸ばす。導入した He ガスが外部に漏洩しないよう、四重極の入口と出口にアパーチャーを設置し、アパーチャーでビームを損失させないために、減速部・加速部の間にはイオンの集束を調整するためにガイド電極を設置した。十分に減速されたイオンは､四重極内に設置された DC 電極が作る進行方向の電場により引き出され、加速部で元のエネルギーまで再加速される。

設計した負イオン減速チャンバーについて、四重極部内のガス圧を変化させた時のイオンの滞留時間の変化と透過効率を評価した。イオンとガス分子の衝突は SIMION8.1 の剛体球モデルを使用した。

計算の結果、滞留時間は 0 Pa の時には 28 μs であったのに対し、He のガス圧を 6 Pa まで上昇させると 666 μs まで増加した｡20 W の連続レーザーによる光脱離反応を考慮すると、同重体の抑制率は 0.196 から 0.9936 まで向上すると予想される。一方、イオンの透過効率はガス圧が増加するほど減少した。これはチャンバー外部でのガス分子とイオンの衝突によるものと考えられる。

同重体の抑制率とイオンの滞留時間を考慮すると､四重極内部のガス圧を 3 Pa 以上で運用すれば、80%以上の透過効率を保ちつつ、90 %以上の同重体を抑制することが可能であると考えられる。

イオンの挙動について調べたところ、四重極部内のイオンとガス分子の衝突による Collisional cooling から、イオンの動径方向の速度成分の減速が効果的に行われることが観測された。

^{36}Cl を測定する際、MALT の実ビームラインに LPD を導入することを考えた場合、GFM よりも検出感度は悪くなるが、測定効率が大幅に増加することが予想される。したがって、福島第一原子力発電所周辺土壌のように、比較的高い ^{36}Cl/Cl 比を持つが試料量が限られた試料の測定は、LPD を導入した測定システムにより十分行うことが可能であると考えられる。

4. テストベンチビームラインの構築

作成した負イオン減速チャンバーの性能の評価とレーザー光脱離反応の実証実験のため、テストベンチビームラインを構築した。テストベンチは負イオン源(Negative ion source)、電磁石(BM)、負イオン減速チャンバー(Ion cooler)、静電偏向器(Electrostatic deflector)、ファラデーカップ等の検出部、その他スリットなどのビームライン要素から構成される(Fig. 4-1, 4-2)。

本章ではテストベンチビームラインの構成について述べる。

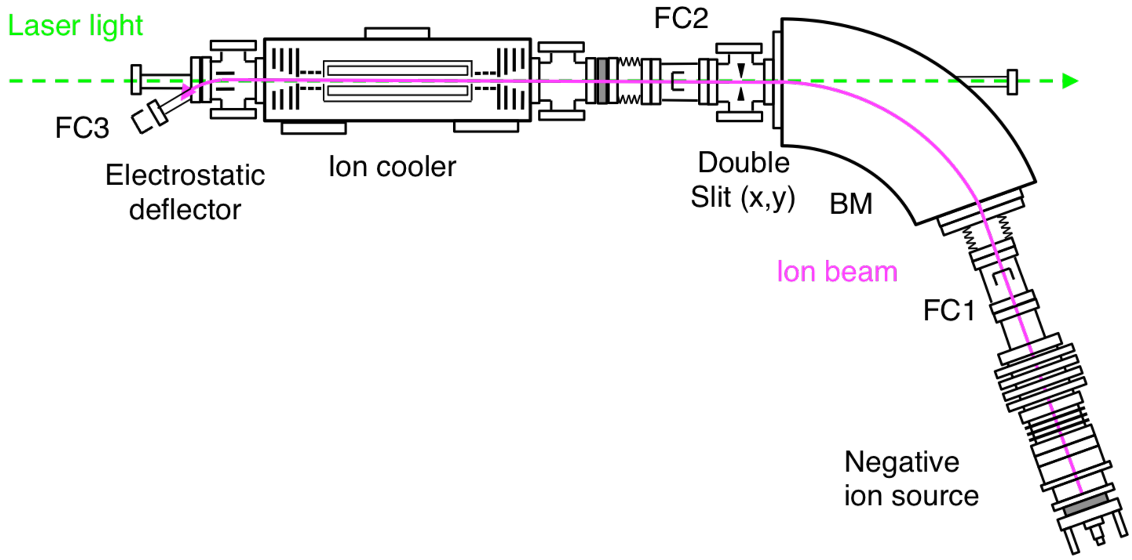


Figure 4-1 テストベンチビームラインの概要

Figure 4-2 テストベンチビームラインの写真

4.1. 負イオン源

負イオン源は東京大学タンデム加速器施設の実ビームラインで使用されていたセシウムスパッター型固体負イオン源を使用した。Fig. 4-3 にイオン源の構成を示す。負イオン源は試料から負イオンを生成する部分の他に、加速管が組み合わされており、最大で数十 keV のエネルギーを持つイオンビームが作られる。

試料は内径 1 mm のカソードにプレスして詰められ、一度に 40 試料まで装填することが可能なカソードディスクが用いられる(Fig. 4-4)。カソードディスクをイオン源に装填した後、イオン源ではセシウムスパッターによる固体試料の負イオン化が行われる(Fig. 4-5)。

オーブンによって温められ気化したセシウムは、加熱されたアイオナイザーにより正イオン化される。アイオナイザーとカソードの間には数 kV の電位差があるため、セシウムイオンは試料に向かって加速される。試料はセシウムによりスパッターされ原子や分子となるが、この時、セシウムは試料表面にセシウム層を形成し、試料原子や分子に電子を供給する。この際負イオンが形成され、今度は反対側に加速される。形成した負イオンは最後にエクストラクターにより引き出され、分析系へと入射される。

4.3. 負イオン減速チャンバーと電位構成

負イオン減速チャンバーの外観を Fig. 4-7、4-8、4-9 に示す。六方クロスを除いた本体の全長は 80 cm、内径は 25 cm であり、内部に減速管、ガイド電極、RFQ、加速管が設置されている。

Figure 4-10 にチャンバー内部への電圧導入系を示す。チャンバー内部にはフランジのフィードスルー端子を通して電圧が供給される。また、Fig. 4-11 にチャンバー内部の電源構成を示す。

減速チャンバー下部には電源用の架台が、イオン源と同様に絶縁トランス上に設置される。電源は高圧電源(HVS_i、PS1、PS2)、RF 電源と DC 電源が設置される。電源の極性は全て正である。

HVS_i の出力端子にはイオン源架台に接続された同軸ケーブルが挿入される。4.1 節で述べた通り、イオン源架台の電圧は HVS と EXT の合計であり、同軸ケーブルを通じてこの電圧が伝送される。HVS_i のアース端子はチャンバー架台に接続されるため、チャンバー架台の電圧はイオン源架台と HVS_i を足し合わせた電圧となる。例えば、出力電圧が HVS -6 kV、EXT 12 kV、HVS_i 6kV の場合、イオン源架台の電圧は-18 kV、チャンバー架台の電圧は-24 kV となる。

チャンバー内部では減速電極の 4 枚目電極(e4)、加速電極の 1 枚目電極(e5)、RFQ の外筒、RFQ 入口と出口のアパーチャー(Ap1、Ap2)が基本的には全て同じ電位となる。Fig. 4-10 に示したフランジには Ap1、Ap2 用の端子も組み込まれており、電源を用意すれば Ap1 と Ap2 に個別に電圧を加えることも可能である。

チャンバー架台の高圧電源(PS1、PS2)、RF 電源、DC 電源はそれぞれガイド電極、RFQ、DC 電極に接続される。PS1、PS2 は個々のガイド電極に電圧を加えることが可能であり、Fig. 4-12 に示す抵抗分割回路(図中の D1、D2)を使用すれば、複数のガイド電極に同時に異なる電圧を加えることも可能である。この場合、ガイド電極をアインツェルレンズのように使用することができる。これらの電源のアース端子は全てチャンバー架台に接続されているため、出力がない場合、減速チャンバー内部の電圧は全て等しくなる。

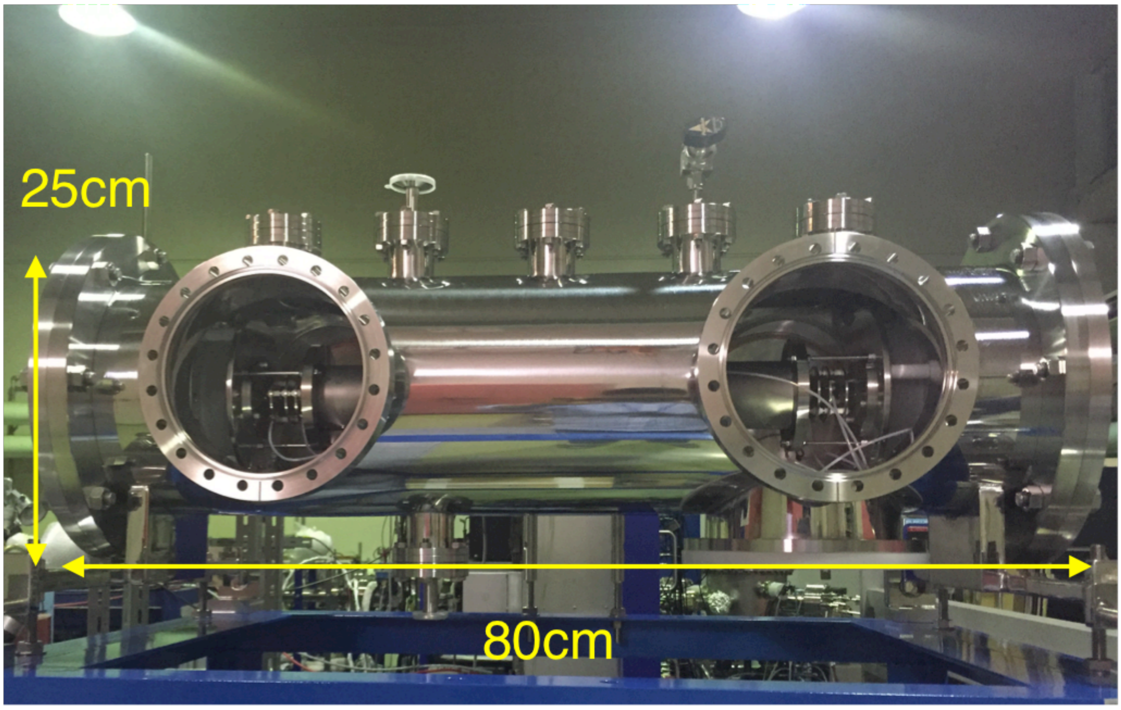


Figure 4-7 負イオン減速チャンバー外観

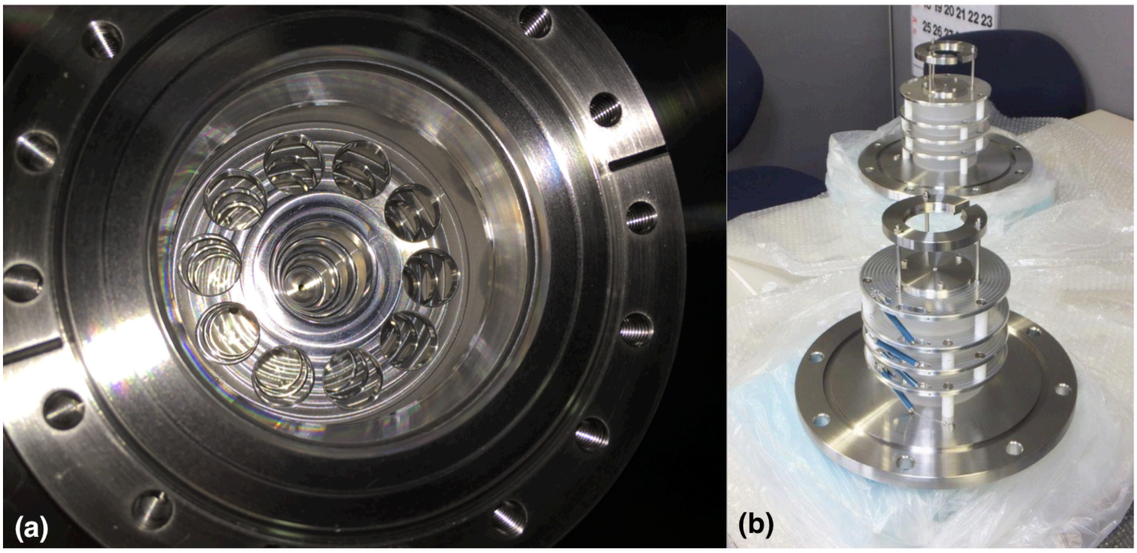


Figure 4-8 減速管・加速管

(a)入射側から見た加速管 (b)減速管・加速管の写真

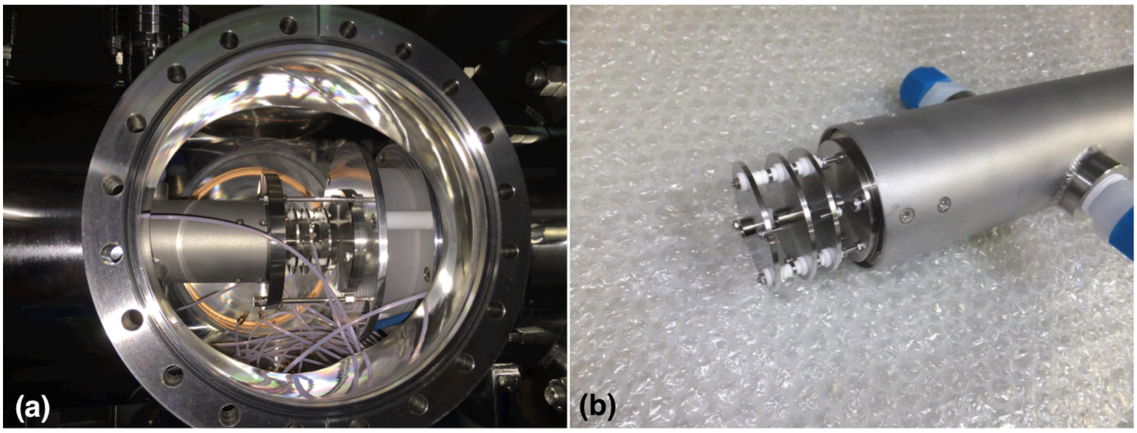


Figure 4-9 ガイド電極

(a)チャンバー内部に接続された状態 (b)RFQ に接続された状態

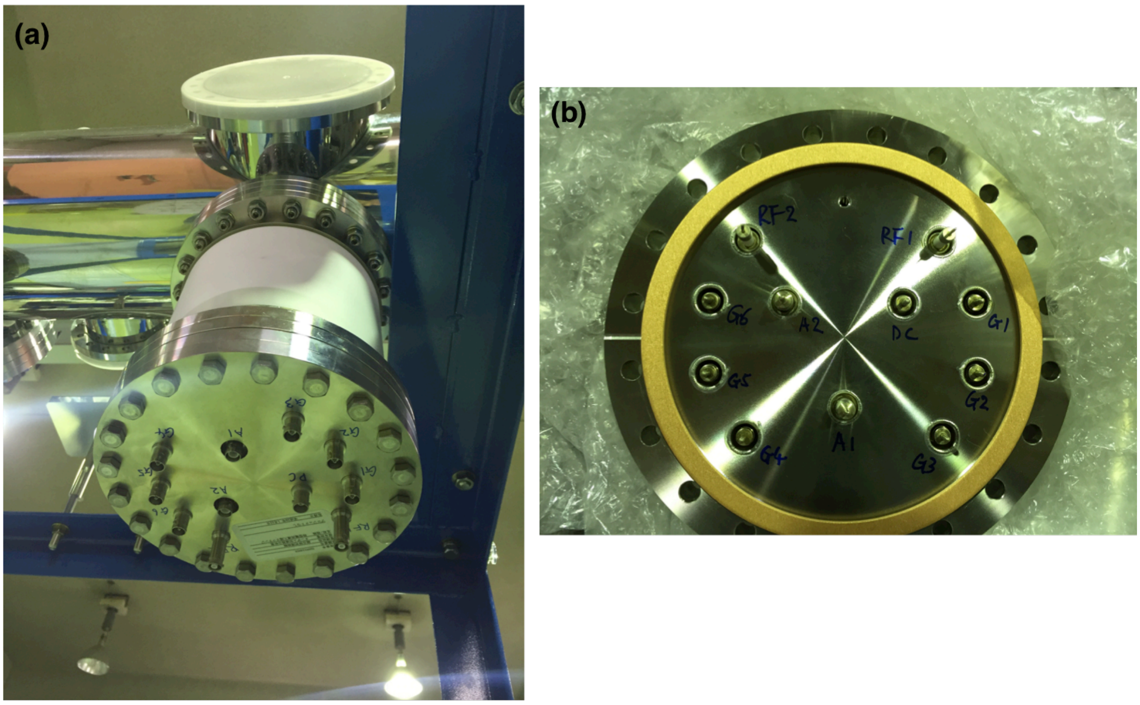


Figure 4-10 チャンバーの電圧導入系

(a)アイソレータとフィードスルー端子付きフランジ (b)フィードスルー付きフランジ裏側

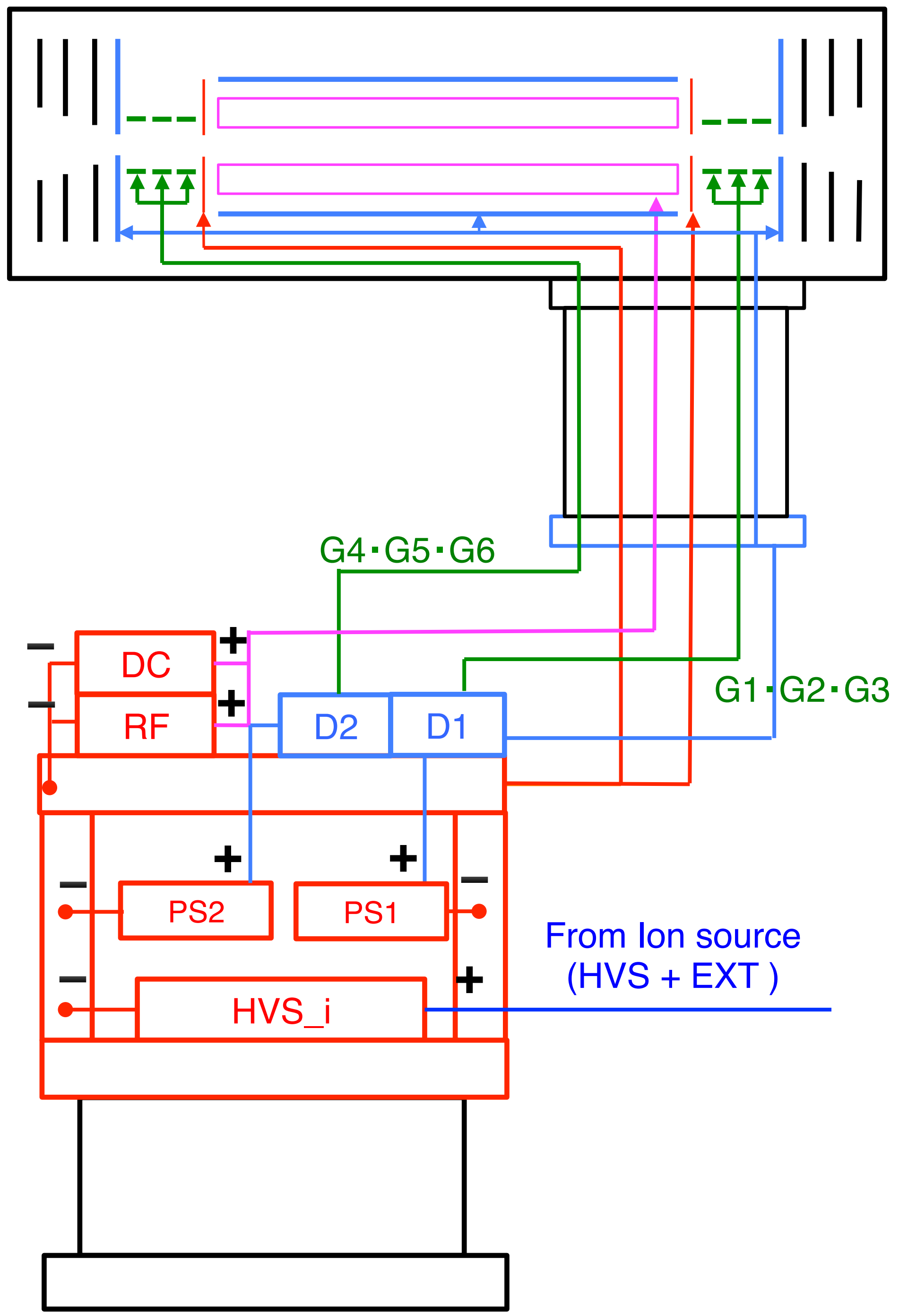


Figure 4-11 チャンバー内部の電圧構成

HVS_i、PS1、PS2 は高圧電源、RF は RF 電源、DC は DC 電源をそれぞれ示す。D1、D2 は Fig. 4-12 に示す抵抗分割回路を示す。抵抗分割回路を用いない場合、G1～6 には PS1、PS2 を用いて個々に電圧を加えることが可能であり、アインツェルレンズのように用いることができる。図中の+は出力端子、-はアース端子もしくは入力端子を示す。

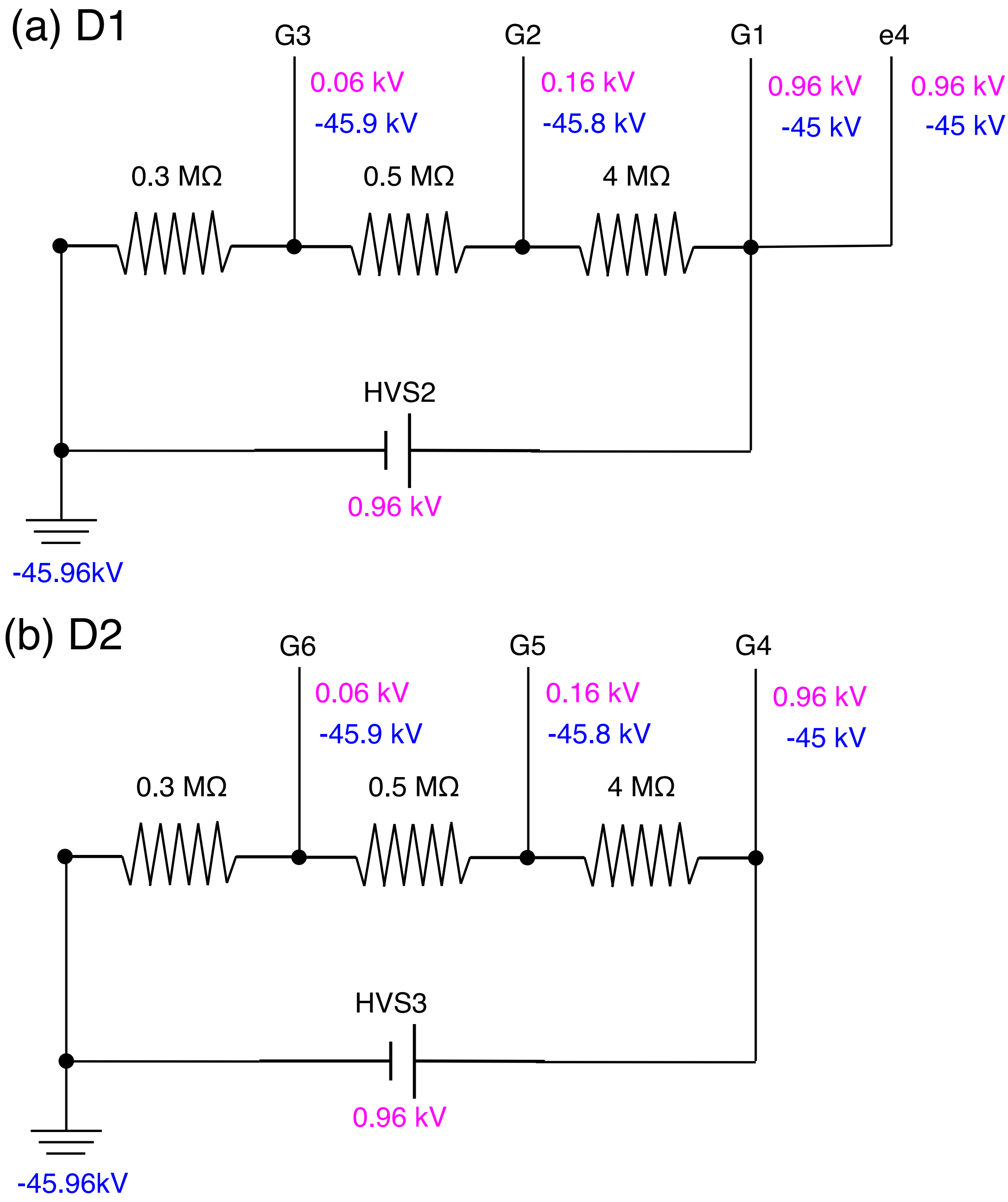


Figure 4-12 抵抗分割回路

それぞれ、(a)四重極入射前 (b)四重極通過後のガイド電極に電圧を印加するための抵抗分割回路。ピンク色は抵抗分割回路のみで発生する電圧、青色は実際に電極に印加される電圧を示す。

4.4. 静電偏向器

光脱離反応後のイオンビームと中性粒子のビームを分離するため、減速チャンバーの後に設置する静電偏向器を作成した(Fig. 4-13)。静電偏向器は電極、電極を保持するための絶縁体、電極に電圧を印加するためのフィードスルー端子で構成される。これらを ICF152 フランジに組み込み、減速チャンバーの後方の六方クロスに接続した。

静電偏向器には 2 つのポートがあり、一つはレーザー導入用、もう一つはファラデーカップ接続用である。電極の位置はレーザー導入用の窓に干渉しないよう設置した。電極間の距離は 25 mm、電極の曲率半径は 77.5 mm である。ファラデーカップ接続用ポートの中心線はレーザーの光路に対して 30 度の角度を持ち、チャンバーの最大使用電圧である 46 keV の負イオンビームをファラデーカップまで導くために必要な電圧を SIMION8.1 で計算した(Fig. 4-14)。計算の結果、各電極にそれぞれ 8 kV、-8 kV の電圧を印加すれば、イオンビームの進路を 30 度偏向することが可能である。

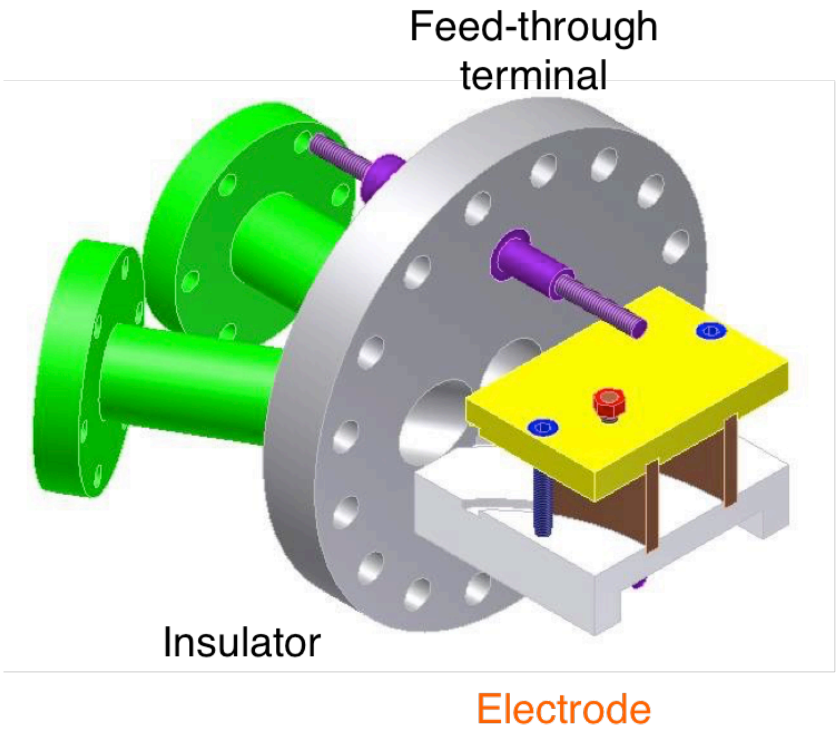


Figure 4-13 静電偏向器

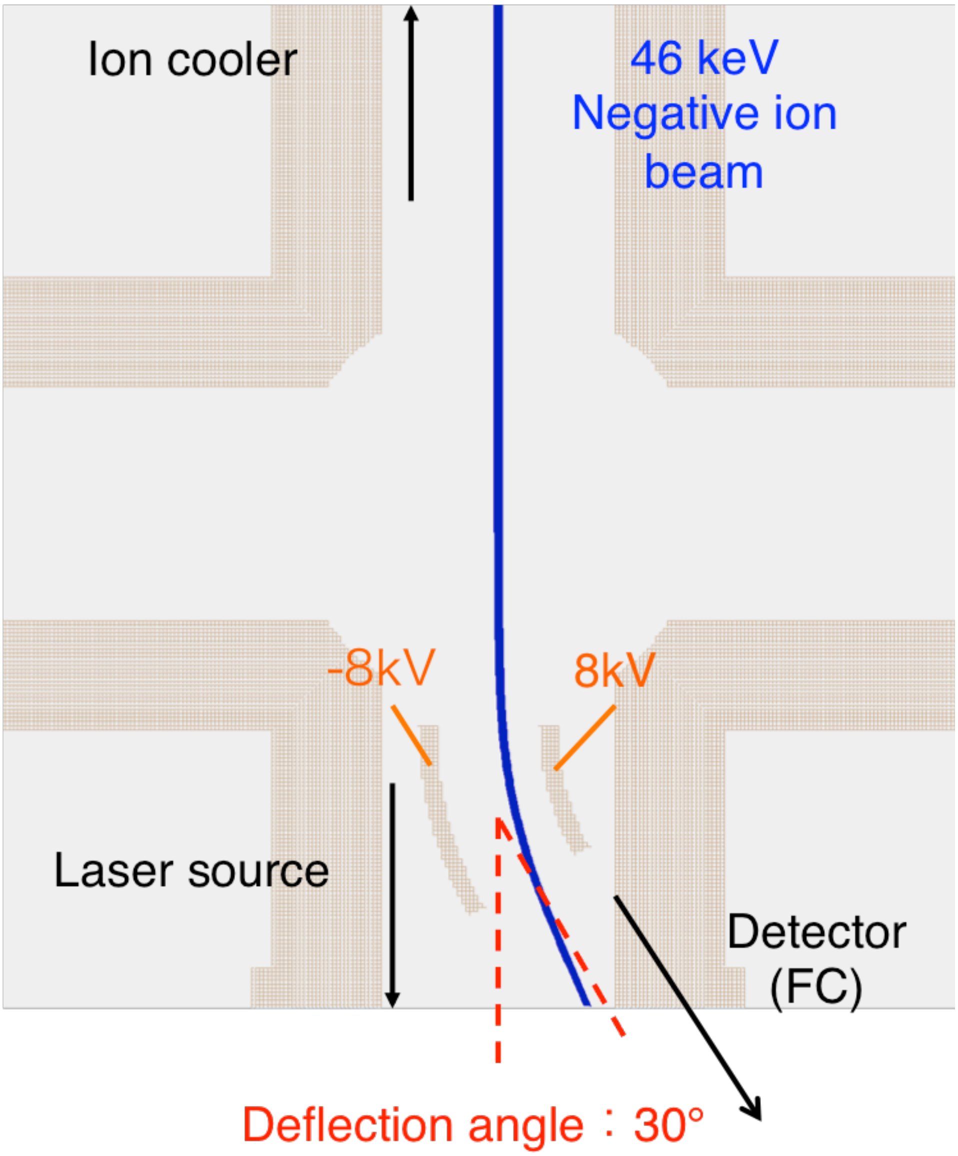


Figure 4-14 SIMION によるビーム進路の計算

4.5. 検出系

イオンビームはビームライン上に設置された 3 つのファラデーカップにより電流値として計測される。Fig. 4-1 に示すイオン源直後の FC1、電磁石通過後の FC2、ビームライン最後尾の FC3 である。これらの内、FC3 については Fig. 4-15 のように作成した。

ファラデーカップは電流を計測するための電極と、イオンビームが電極に衝突した際に生じる二次電子を押し戻すためのサプレッサー電極で構成される。電極には TOA 社製ピコアンメーターが接続され、pA までの電流値を計測することができる。サプレッサー電極にはそれぞれ-300 V 程度の電圧が印加される。

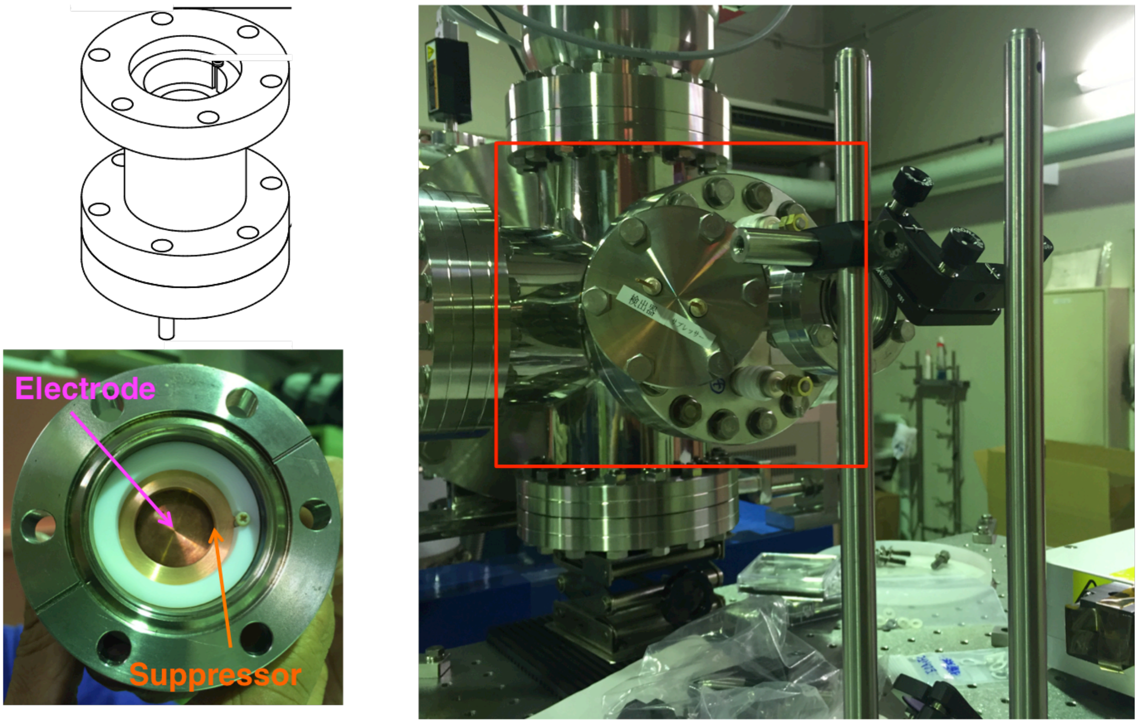


Figure 4-15 ファラデーカップ(FC3)

4.6. RF 電源の構成

四重極電極に印加する高周波電圧を発生させるために、高周波電源を作成した。高周波電源はファンクションジェネレータ、プリアンプ、そして変圧器から構成される(Fig. 4-16) [64]。ファンクションジェネレータで発生した正弦波状の電圧をプリアンプで増幅し、変圧器で増幅及び正負の電圧を出力する。

ファンクションジェネレータは TEXIO 社製の任意波形ファンクションジェネレータ AFG-2112、プリアンプは Mini-Circuits 社製の TVA-R5-13 を使用した。

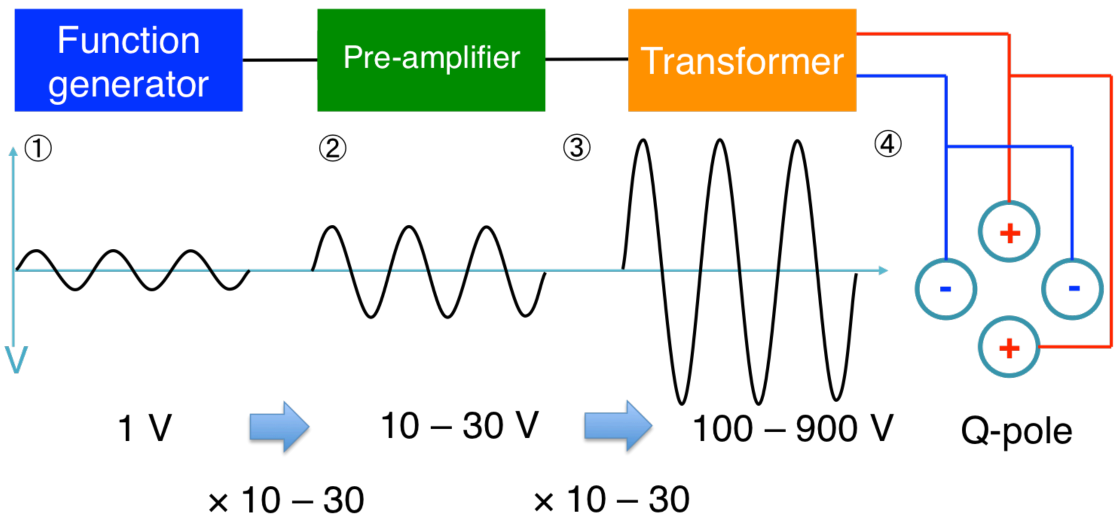


Figure 4-16 高周波電源の構成

①がファンクションジェネレータで生じる正弦波状の電圧、②がプリアンプで増幅された電圧、③が変圧器でさらに増幅された電圧、④が四重極電極の概要を示す。

4.6.1. 変圧器の作成

変圧器(Transformer)とは、交流電力の電圧を、相互誘導を利用して変換する装置である。基本構造として、磁性体に 1 次コイルと 2 次コイルを巻きつけたものとなっており、本研究では磁性体としてトロイダルコアを用いた。

トロイダルコアとはドーナツ形のフェライトやカーボニル鉄粉を固めたものに巻線を巻いたコイルのことである。ソレノイドコイルが筒状であるのに対し、トロイダルコイルはソレノイドコイルの両端を接続し、コア内に閉ループを作成する。コア内に生じた磁束は空気中よりも通りやすいコアを通るため、漏れ磁束が少ないという利点がある[65]。

トロイダルコアは磁性体の種類により周波数特性が異なる。本研究では交流周波数が 2〜3 MHz 程度の交流電圧を用いるため、対応したコアとして米国アミドン社製の T200-2 (外径 50.8 mm、内径 31.8 mm、高さ 14 mm、周波数範囲 2 MHz ~ 30 MHz)のものを使用した[66]。

4.6.2 相互誘導と誘導起電力

Figure 4-17 に示すような断面積 S、経路長 L、透磁率 μ のトロイダルコアについて、1 次コイルに電流 I_1 を流した時、1 次コイル、2 次コイルに生じる誘導起電力について考える。1 次コイル、2 次コイルの巻数をそれぞれ N_1、N_2 とすると、内部の磁界 H はアンペアの法則より、

$$LH = N_1 I_1 \tag{4-1}$$

したがって、1 次コイルと 2 次コイルの錯交磁束 Φ_1、Φ_2 は

$$\Phi_1 = N_1 SB = N_1 S\mu H = N_1 S\mu \frac{N_1 I_1}{l} \tag{4-2}$$

$$\Phi_2 = N_2 SB = N_2 S\mu \frac{N_1 I_1}{l} \tag{4-3}$$

となる。1 次コイル、2 次コイルの自己インダクタンスをそれぞれ L_1、L_2 とすると、

$$L_1 = \Phi_1 / I_1 = \frac{N_1^2 S\mu}{l} \tag{4-4}$$

$$L_2 = \Phi_2 / I_1 = \frac{N_1 N_2 S\mu}{l} \tag{4-5}$$

ゆえに、それぞれのコイルに生じる誘導起電力を V_1、V_2 とすると、

$$V_1 = -L_1 \frac{dI_1}{dt} = -\frac{N_1^2 S\mu}{l}\frac{dI_1}{dt} \tag{4-6}$$

$$V_2 = -L_2 \frac{dI_1}{dt} = -\frac{N_1 N_2 S\mu}{l}\frac{dI_1}{dt} \tag{4-7}$$

式(4-6)、(4-7)より１次コイルと 2 次コイルの電圧と巻数の関係は次のように表される。

$$\frac{V_2}{V_1} = \frac{N_2}{N_1} \tag{4-8}$$

式(4-8)より、１次コイルの巻数を１回とすれば、2 次コイルに生じる電圧は１次コイルの電圧よりも２次コイルの巻数分増幅されたものになることが分かる。

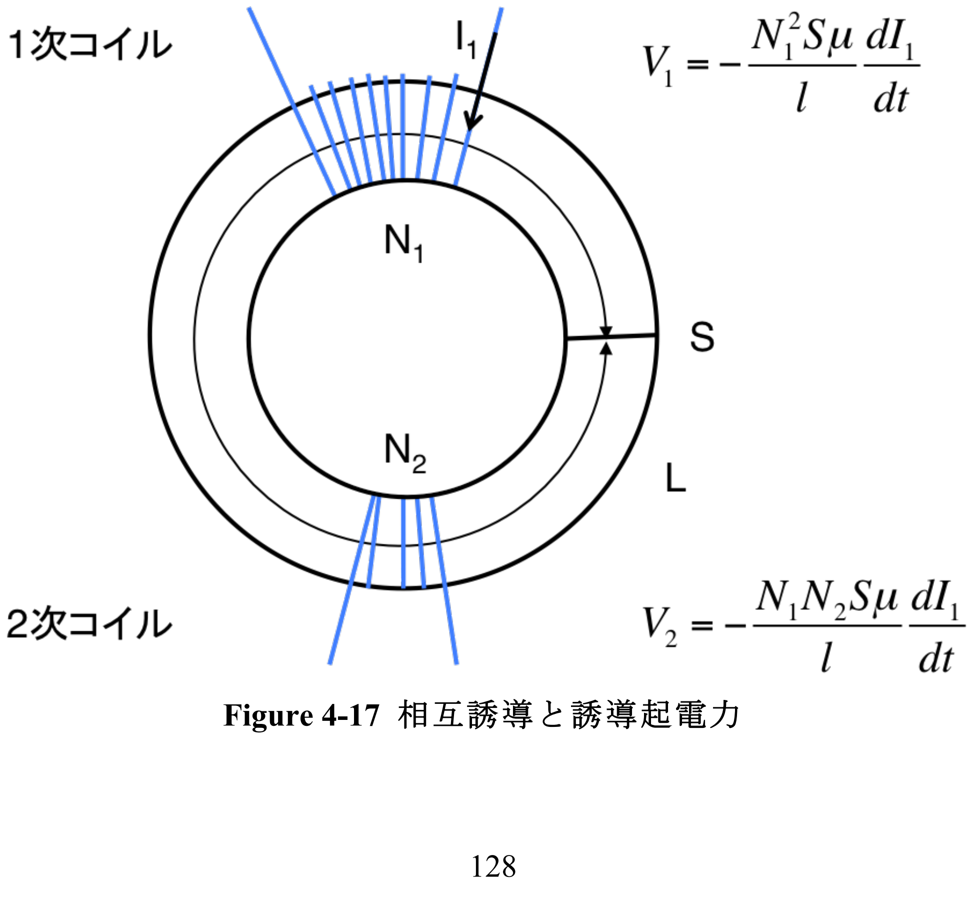


Figure 4-17 相互誘導と誘導起電力

4.6.3. 電圧の増幅率の測定

式(4-8)より、１次コイルに$V_1 = V\sin\omega t$なる電圧を加えた場合、２次コイルには$V_2 = \frac{N_2}{N_1}V_1 = \frac{N_2}{N_1}V\sin\omega t$の電圧が生じ、$V_2$と$V_1$の周波数は等しくなる。しかしながら、実際には四重極電極やケーブルが電気容量を持つため、変圧器にコンデンサが接続された回路のようになり共振現象が発生する。これを自己共振といい、自己共振により増幅率が最大となる周波数は自己共振周波数(SRF)と呼ばれる。SRF はコイルの巻き数によって異なるため、2 次コイルの巻数を 33 巻、53 巻、73 巻とした変圧器を組み入れた高周波電源を作成し、減速チャンバー内の四重極電極に接続して電源の増幅率及び共振周波数を調べた。

Figure 4-18 に電圧の増幅率の測定に用いた回路図を示す。ファンクションジェネレータから出力された正弦波状の電圧をプリアンプで増幅後、変圧器に入力して正負の電圧を出力し、四重極電極に印加した。変圧器の出力部にプローブを接続し、オシロスコープで出力された電圧を測定した。

Figure 4-19 にコイルの巻き数による共振周波数 f と増幅率の変化を示す。入力電圧を V_{in}、出力電圧を V_{out} とすると、電圧の増幅率は

$$Gain[dB] = 20\log_{10}\frac{V_{out}}{V_{in}} \tag{4-9}$$

で表される。測定の結果、巻き数が多くなるほど共振周波数は小さくなり、電圧の増幅率は大きくなった。それぞれの共振周波数と電圧の増幅率は、33 巻の時、3.257 MHz で 64.1 dB、53 巻の時、2.17 MHz で 68.9 dB、73 巻の時、1.54 MHz で 74 dB となった。Fig. 4-18 に示す回路において、変圧器の 2 次コイルのインダクタンスを L、四重極とケーブルを合わせた電気容量を C とすると、回路の共振周波数は

$$f = \frac{1}{2\pi\sqrt{LC}} \tag{4-10}$$

で表される。式(4-5)より、コイルの巻き数が多くなるほどコイルのインダクタンス L が大きくなるため、結果として共振周波数が小さくなったためであると考えられる。増幅率についても式(4-8)に示した通り、巻き数が多くなるほど増幅率が大きくなることが観測された。

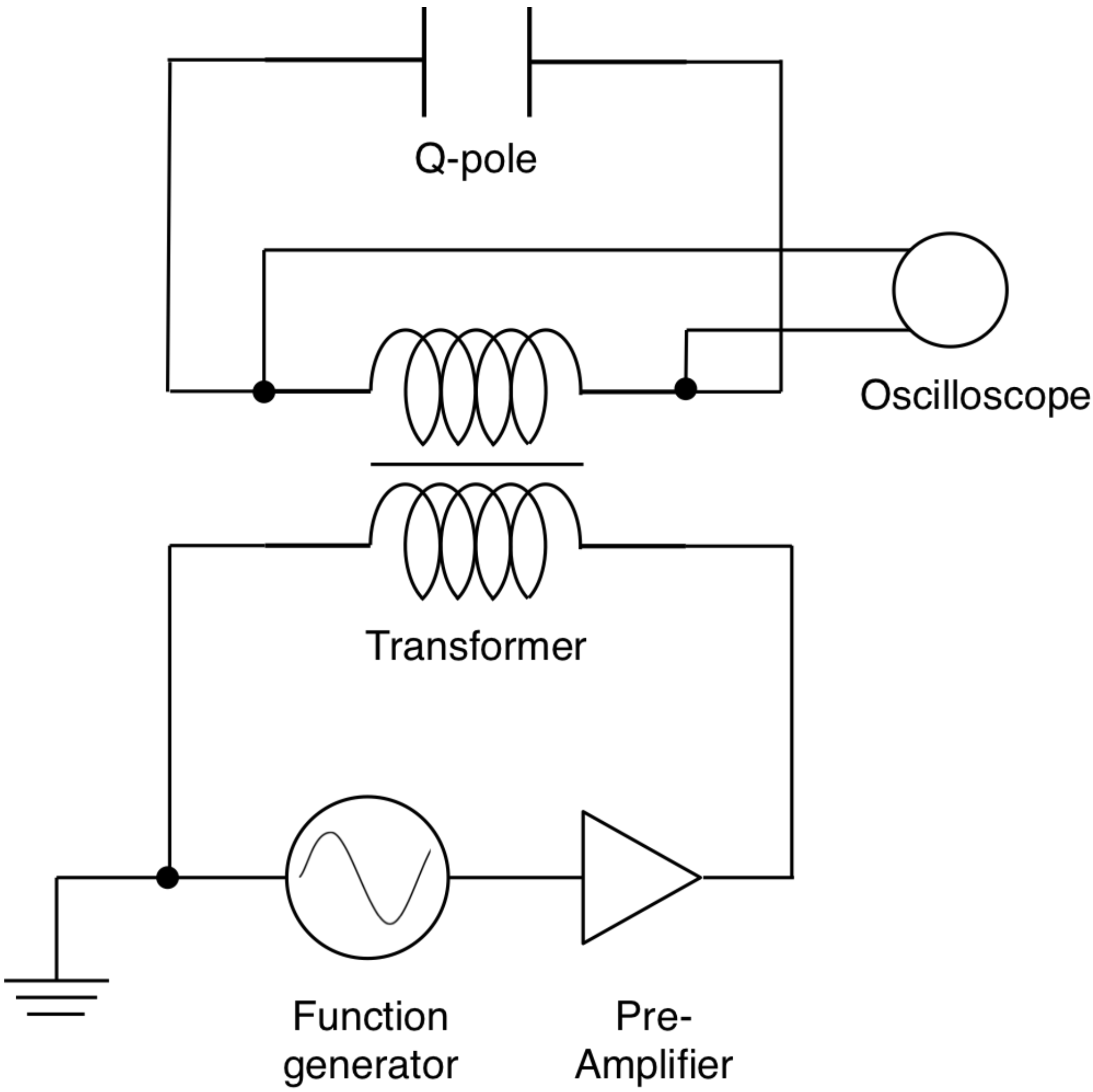


Figure 4-18 回路図

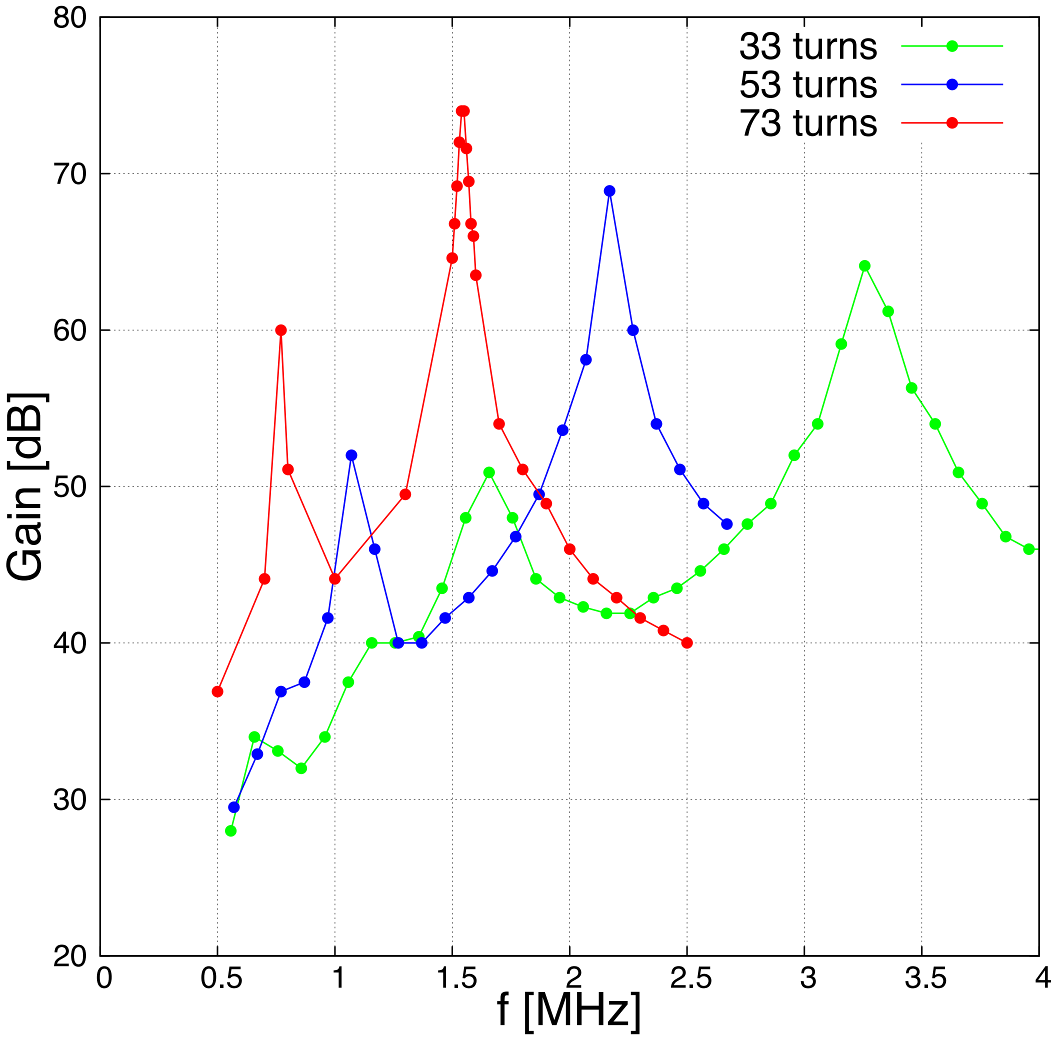


Figure 4-19 コイルの巻き数による共振周波数の変化

4.6.4. 増幅率の飽和

次に、各巻き数のコイルについて、共振周波数においてファンクションジェネレータからの入力電圧を増加させた時に得られる出力電圧を調べた。Fig. 4-20 にその結果を示す。いずれのコイルでも、入力電圧が 0.6 V 付近にした時に出力電圧に飽和が見られた。

これは、トロイダルコイルは鉄心にコイルを巻きつけたものであり、鉄心中の磁束が飽和し磁気飽和が生じたためであると考えられる。コイルが磁気飽和すると、コイルのインダクタンスが減少し、大電流が流れる恐れがあるため、磁気飽和を起こさない電圧で使用する必要がある。

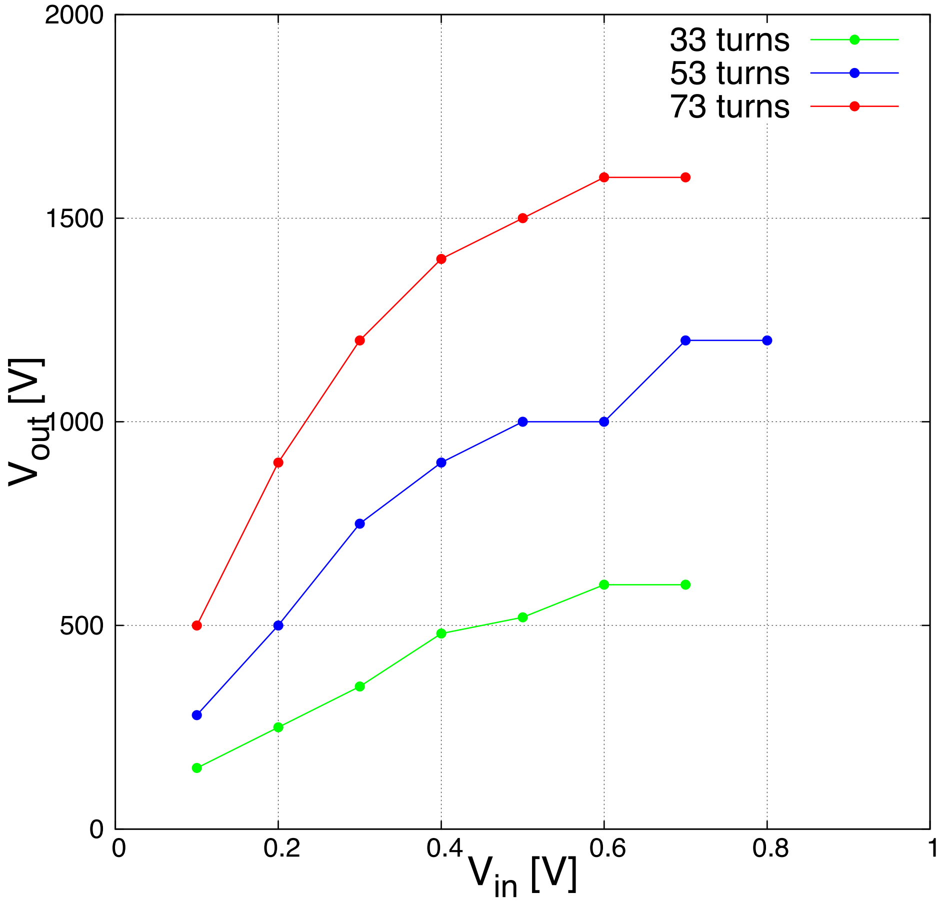


Figure 4-20 入力電圧と出力電圧の飽和

4.7. 差動排気系の設計

負イオン減速チャンバーはイオンビームの発散を防ぐために、RFQ 内部に He を導入し圧力を数 Pa 程度にして使用する。一方、減速チャンバー外の圧力は 10^{-4} Pa 程度の真空度であるため、差動排気系を構築し 4 桁の圧力差を実現する必要がある。減速チャンバー内は 2 つのアパーチャーに隔てられ A. RFQ 内部、B. チャンバー本体内部、C. 減速・加速管及び六方クロス内の 3 つの空間に分けられる(Fig. 4-21)。空間 C がチャンバー外とつながっており、A の真空度が 1 Pa の時、C の圧力が 10^{-4} Pa となるよう設計する。

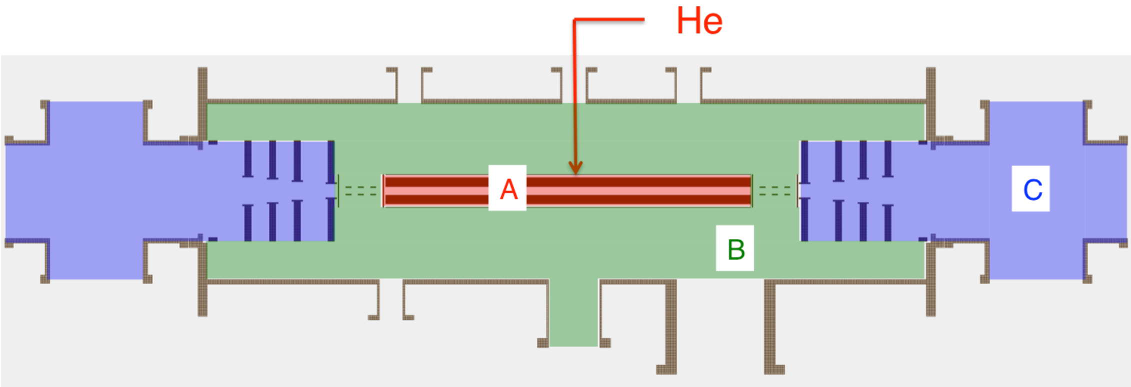


Figure 4-21 減速チャンバー内の空間の構成

A. RFQ 内部、B. チャンバー本体内部、C. 減速・加速管及び六方クロス内部

4.7.1. コンダクタンスの計算

Table 4-1 に空気と He に関するコンダクタンスを示す。コンダクタンスの計算方法については Appendix. 1 に示した。RFQ(A)とチャンバー本体内部(B)間のアパーチャー径は直径 0.4 cm、チャンバー本体内部と減速・加速管及び六方クロス内(C)間のアパーチャー径は直径 0.3 cm であるため、アパーチャーの面積はそれぞれ 0.1257 cm^2、0.0707 cm^2 となる。空気の分子量は 28、He の分子量は 4 として計算した。

Table 4-1 ガス分子の種類とアパーチャー径、コンダクタンス

Gas	Radius of aperture [cm]	Area of aperture [cm^2]	Conductance [L/s]
Air	0.15	0.0707	0.827
	0.2	0.1257	1.471
He	0.15	0.0707	3.139
	0.2	0.1257	5.581

4.7.2. 必要な排気速度の推定

計算したコンダクタンスを用いて、排気速度を変えた場合の各部の圧力の変化を計算した。Fig. 4-22 に示すように、本体に排気速度 S1 [L/s] 、六方クロスに排気速度 S2 [L/s] のターボ分子ポンプを接続した時、RFQ 内の圧力が P_A [Pa] 、チャンバー本体の圧力が P_B [Pa] 、減速・加速管及び六方クロス内の圧力が P_C [Pa] となったとする。He を導入した際 P_A は数 Pa になるのに対し、チャンバー外部の真空度は 10^{-4} Pa 程度であるため、P_A と P_C の間で 4 桁の圧力差を作る必要がある。チャンバー内の空間は 3 つに分かれているため、P_A と P_B で 2 桁、P_B と P_C で 2 桁の計 4 桁の圧力差ができるよう 2 段階の差動排気系を設計した。

Figure 4-23 は $P_A = 1$ [Pa]の時の P_B と S1 の関係を示す。S1 が 400 [L/s]の時、P_B は空気の場合 3.7×10^{-3} Pa、He の場合 1.4×10^{-2} Pa となった。Fig. 4-24 は P_B がこれらの値をとる時の P_C と S2 の関係を示す。空気の場合、S2 が 300 [L/s]の時 P_C は 1.0×10^{-5} Pa となった。一方、He の場合、S2 が 300 [L/s]の時、P_C は 3.8×10^{-5} Pa となった。

したがって、He を導入した時、S1 に 400 [L/s]以上、S2 に 300 [L/s]以上の排気速度を持つターボ分子ポンプを接続すれば、RFQ 内部と六方クロス内で 4 桁の圧力差が実現できると考えられる。

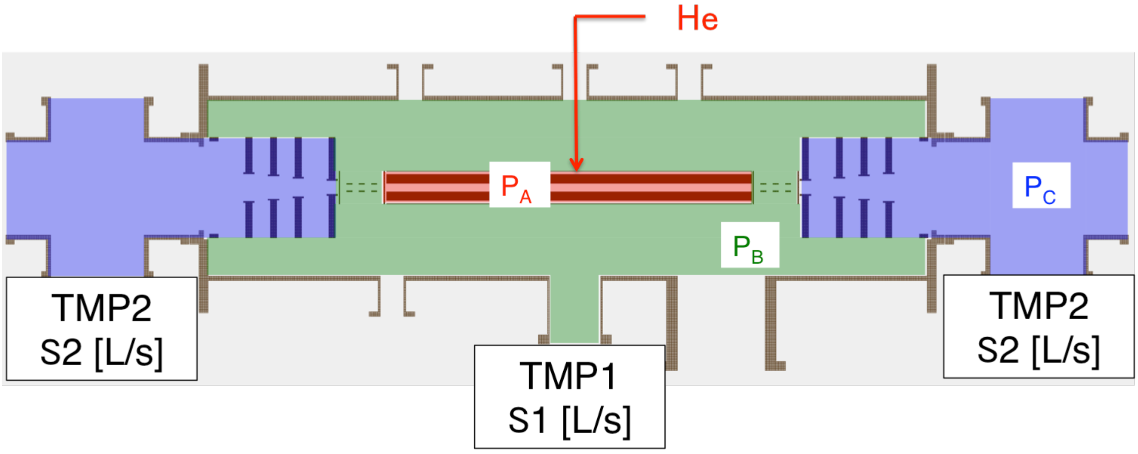


Figure 4-22 各部の圧力とポンプの排気速度

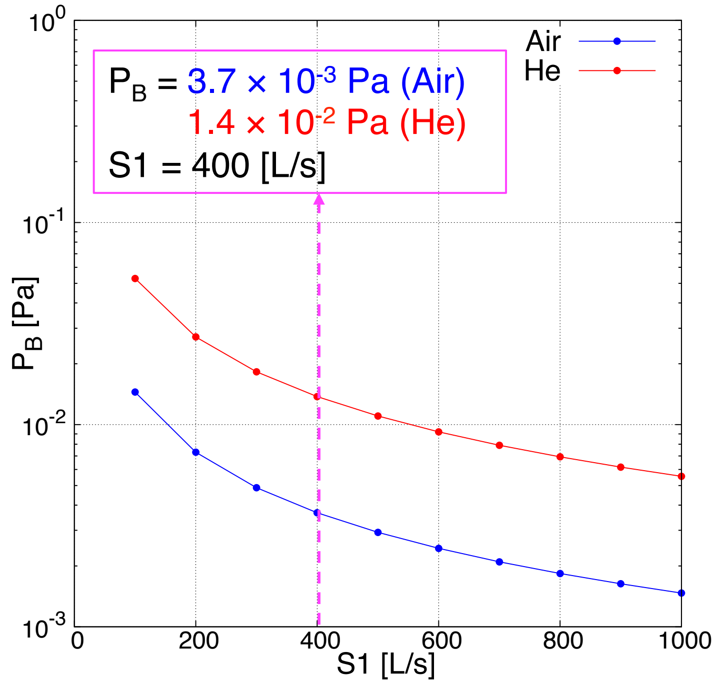


Figure 4-23 P_B と S1 の関係

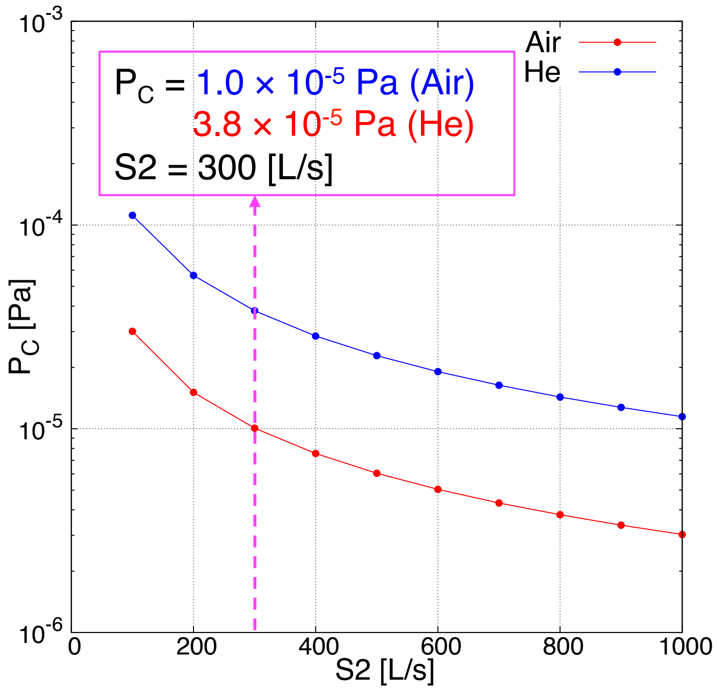


Figure 4-24 P_C と S2 の関係

4.8. テストベンチビームラインの構築まとめ

製作した負イオン減速チャンバーの性能の評価のため、負イオン源、電磁石、減速チャンバー、静電偏向器、ファラデーカップ等の検出器類から構成されるテストベンチビームラインを構築した。

イオン源架台に接続した同軸ケーブルにより、チャンバー架台に設置された高圧電源(HVS_i)までイオン源架台の電圧を伝送することで、減速チャンバー内部の高電圧を構成した。これにより、減速チャンバー内に導入されるイオンのエネルギーはサンプルカソードの電源(CAT)と HVS_i の差で決定され、エネルギーの精密な調整が可能となった。

四重極電極に印加する高周波電源はファンクションジェネレータ、プリアンプ、変圧器から構成され、ファンクションジェネレータから出力された正弦波状の電圧をプリアンプで増幅し、変圧器で増幅及び正負に分けて出力することにより、高周波電圧を生成する。

変圧器はトロイダルコアにコイルを巻きつけて作成した。33 巻き、53 巻き、73 巻きの変圧器を作成し、共振周波数を測定したところ、それぞれ 1.544 MHz で 74 dB、2.17 MHz で 68.9 dB、1.54 MHz で 74 dB の増幅が観測された。実際の運用においては、Mathieu diagram の安定領域である $0 < q < 0.908$ を満たすように電圧と周波数の組み合わせを選択する。

負イオン減速チャンバーの四重極部内部とチャンバー外との間で 4 桁の圧力差を実現するため、差動排気系を設計した。差動排気系は２段階で構成され、四重極部とチャンバー内部、チャンバー内部とチャンバー外部からなる。四重極部とチャンバー内部の間の開口部径は 4 mm、チャンバー内部と外部の間の開口部径は 3 mm であることを考慮すると、気体のコンダクタンスと排気速度の関係から、チャンバー本体に 400 L/s、チャンバー外部に 300 L/s のターボ分子ポンプを接続すれば、四重極部の圧力が 1 Pa の時、チャンバー外部の圧力が He で 3.8×10^{-5}Pa、空気で 1×10^{-5} Pa となることが計算された。

4.9. 使用機器のまとめ

テストベンチビームラインで使用している機器について、それぞれ Table 4-2 に電源類、Table 4-3 に真空機器、Table 4-4 に検出機器、Table 4-5 に高周波電源や磁石電源、レーザー等の機器の一覧を示す。

Table 4-2 電源類のまとめ

EXT、CAT、FOC はそれぞれイオン源のエクストラクター、カソード、アインツェルレンズを示す。OVN、ION はセシウムオーブンとアイオナイザーを示す。

イオン源		
機器名	**出力電圧**	**使用機器**
GLASSMAN HIGH VOLTAGE INC. SERIES EH	+15 kV	EXT
GLASSMAN HIGH VOLTAGE INC. SERIES EH	-10 kV	CAT
GLASSMAN HIGH VOLTAGE INC. SERIES EW	5 kV	FOC
GLASSMAN HIGH VOLTAGE INC. SERIES EW	-15 kV	HVS
EMS POWER SUPPLY 150-7	150 V	OVN
EMS POWER SUPPLY 20-30	20 V	ION
減速チャンバー		
機器名	**出力電圧**	**使用機器**
GLASSMAN HIGH VOLTAGE INC. SERIES EH	+10 kV	HVS_i
松定プレシジョン HJPM-3R5-2PL12V	±3 kV	PS1
松定プレシジョン HJPM-1P15V	+ 1 kV	PS2

Table 4-3 真空機器のまとめ

TMP（ターボ分子ポンプ）		
機器名	**排気速度**	**使用箇所**
SHIMADZU TMP-403M	400 L/s	イオン源
PFEIFER HiPace 300	300 L/s	減速チャンバー
PFEIFER HiPace 300	300 L/s	減速チャンバー
EDWARDS nEXT 400	400 L/s	減速チャンバー

TMP コントローラー	
機器名	**使用箇所**
SHIMADZU EI-303M	イオン源
PFEIFER TC400	減速チャンバー
PFEIFER TC400	減速チャンバー
EDWARDS TAC Gauge Controller D395-92-000	減速チャンバー

真空計	
機器名	**使用箇所**
PFEIFER Full Range Gauge PKR 361	イオン源
EDWARDS Wide range Gauge WRG-S-CF40	減速チャンバー
ANELVA M-342DG-IN/N25	減速チャンバー

ゲージコントローラー	
機器名	**使用箇所**
PFEIFER Single Gauge TPG361	イオン源
ANELVA M-601GC	減速チャンバー
EDWARDS TAC Gauge Controller D395-92-000	減速チャンバー

Table 4-4　検出機器のまとめ

機器名	使用箇所
TOA Digital picoammmeter AM-271A	FC1
TOA Digital picoammmeter AM-271A	FC2
TOA Digital picoammmeter AM-271A	FC3

Table 4-5 その他機器類

機器名	備考
電磁石	
DANFYSIK System 8000 MAGNET POWER SUPPLY	磁石電源
Group 3 DTM-141 Digital Teslameter	表示器
高周波電源	
GWINSTEK AFG-2112	ファンクションジェンレーター
Mini-Circuits TVA-R5-13	プリアンプ
レーザー	
IPG Photonics Corporation GLR SERIES GREEN FIBER LASER GLR-20	レーザー

5. テストベンチによる透過効率の評価

本章では第 4 章で構築したテストベンチにより、設計したチャンバーの透過効率を評価し、第 3 章における設計の妥当性を検証した。まず、He ガスを RFQ 内に導入し、差動排気について確認した。

5.1. 差動排気系の確認

RFQ 内部への He ガス導入量は HORIBA 社製マスフローコントローラー(MFC) SEC-400 により制御した。MFC は MFC ＝ 1000 時に最大流量となるように設定され、MFC の値を調節することで、ガス導入量を変化させせることが可能である。

Figure 5-1 に MFC の値を変化させた時の RFQ 内部、チャンバー内部、チャンバー外部の圧力の変化を示す。MFC = 215 の時、RFQ 内部、チャンバー内部、チャンバー外部の圧力はそれぞれ 7.53×10^{-3} Torr (= 1 Pa)、3.8×10^{-4} Torr (= 5×10^{-2} Pa)、3.8×10^{-6} Torr (= 5×10^{-4} Pa)となり、RFQ 内部とチャンバー外部において 3 桁から 4 桁の圧力差を実現していた。He ガス導入量を増加させてもこの関係は維持され、差動排気系が想定通り設計されていることが確認された。

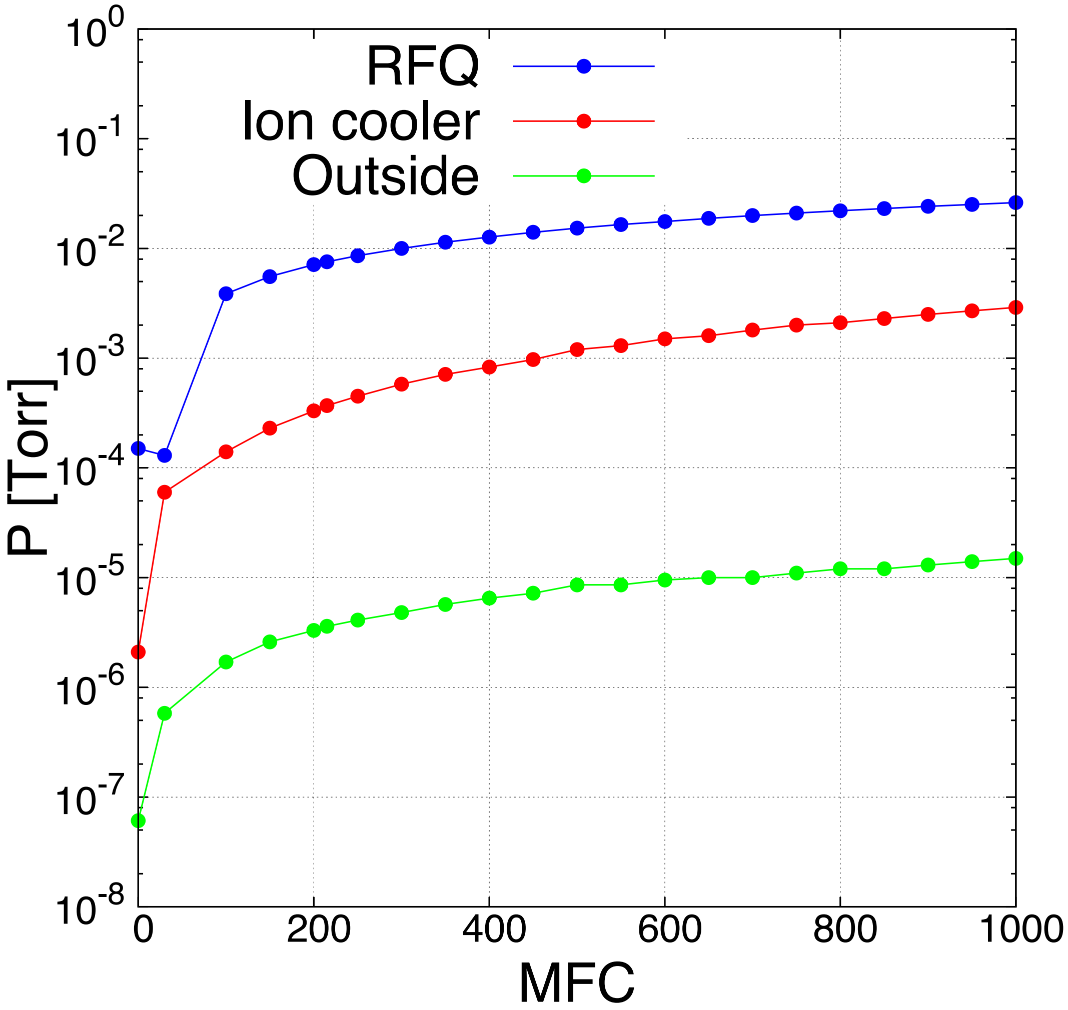


Figure 5-1 He ガス導入量を変化させた時の RFQ 内部、チャンバー内部、チャンバー外部の圧力の変化

図中の青は RFQ 内部、赤はチャンバー内部、緑はチャンバー外部の圧力を示す。

5.2. テストベンチビームラインの電源構成

5.2.1. イオン源の電源構成

テストベンチビームラインによる実験では ^{35}Cl のエネルギー24 keV の負イオンビームを用いた。まずはイオン源における 24 keV の負イオンビームの生成方法を説明する。

Figure 5-2 にイオン源の電源構成を示す。イオン源に設置された高圧電源は HVS、EXT、CAT の 3 種類あり、生成されるイオンビームのエネルギーは次のように計算される。

$$E\,[keV] = \left(|CAT|[kV] + EXT[kV] + |HVS|[kV]\right) e\,[keV] \tag{5-1}$$

加速管のイオン源側のフランジに高圧電源(HVS)の出力端子が接続され、HVS により-6 kV まで昇圧される。そこにエクストラクター用の電源(EXT)の出力端子を接続し、EXT の接地端子はイオン源の架台に接続される。この時、EXT で 12 kV の電圧を出力すれば、イオン源架台の電位は-18 kV まで昇圧される。

カソードの電位は-6 kV に設定され、エクストラクターの電位が 12 kV であるため、試料から生成した負イオンはエクストラクター通過時には-18 kV まで加速される。その後に設置された加速管により、最終的にイオン源から生成される負イオンビームのエネルギーは-24 keV となる。

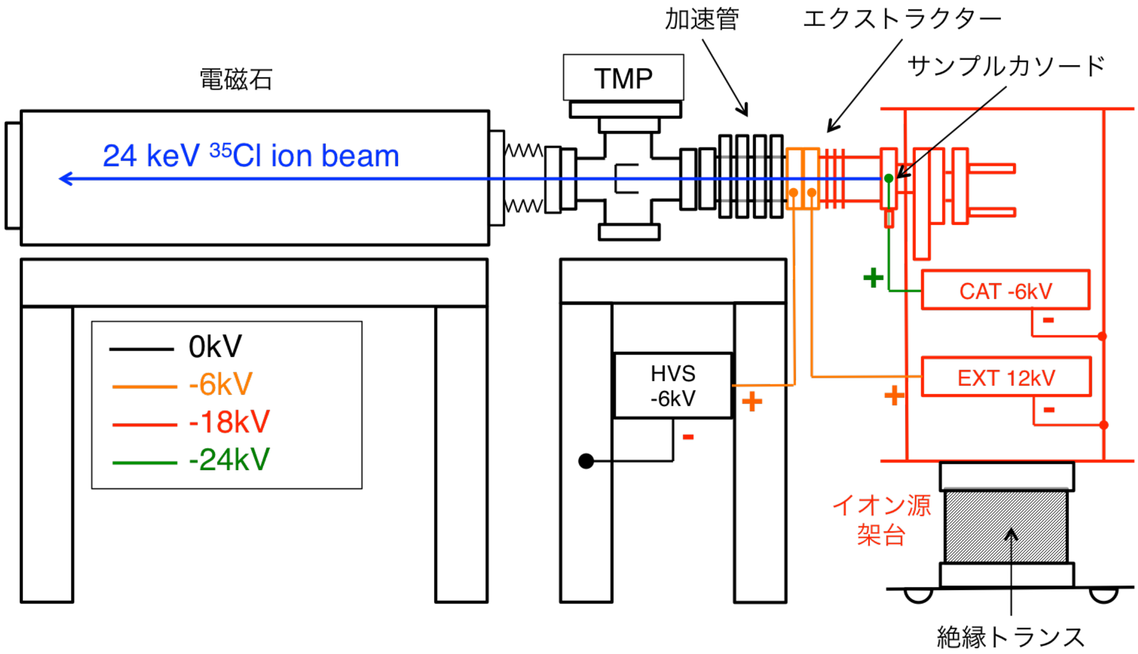


Figure 5-2 イオン源の電源構成

5.2.2. イオン源と減速チャンバー間の接続

減速チャンバー内の高周波四重極に導入するイオンのエネルギーは〜100 eV にするため、イオン源から生成したイオンビームのエネルギーを 24 keV 程度減速し、ほぼ 0 にする必要がある。イオン源と減速チャンバー内部の電圧差を小さくするために、イオン源と同様に高圧電源を用いることが考えられるが、イオン源の電圧とのマッチングが困難であると考えられる。

そこで、本研究では減速チャンバーとイオン源の電圧差を小さくするために、イオン源架台の電圧を同軸ケーブルで伝送することを考案した(Fig. 5-3)。減速チャンバー内部に電圧を加えるため、チャンバー下部にはイオン源と同様に絶縁トランスと電源用架台が設置される。チャンバー側の架台にも高圧電源(HVS_i)を設置し、HVS_i の出力端子にイオン源架台に接続した同軸ケーブルを挿入する。HVS_i の接地端子をチャンバー側架台に接続し、HVS_i に電圧を加えれば、チャンバー側架台の電位はイオン源架台の電位と HVS_i の出力電圧を足し合わせた電位となる。

したがって、チャンバー内部におけるイオンビームのエネルギーは式(5-2)に示すように、CAT と HVS_i の電圧差によって決定される。例えば、CAT = -6 kV、HVS = -6 kV、EXT = 12 kV、HVS_i = 5.9 kV の場合、イオン源から生成されるイオンビームのエネルギーは 24 keV であるが、チャンバー内部に入射するイオンビームのエネルギーは 6 – 5.9 = 0.1 keV = 100 eV と計算される。

$$
\begin{aligned}
&E\,[keV] \\
&=\left(\left\{|CAT|[kV]+EXT[kV]+|HVS|[kV]\right\}-\left\{EXT[kV]+|HVS|[kV]+|HVS\_i|[kV]\right\}\right)e\,[keV] \\
&=\left(|CAT|[kV]-|HVS\_i|[kV]\right)e\,[keV]
\end{aligned}
\tag{5-2}
$$

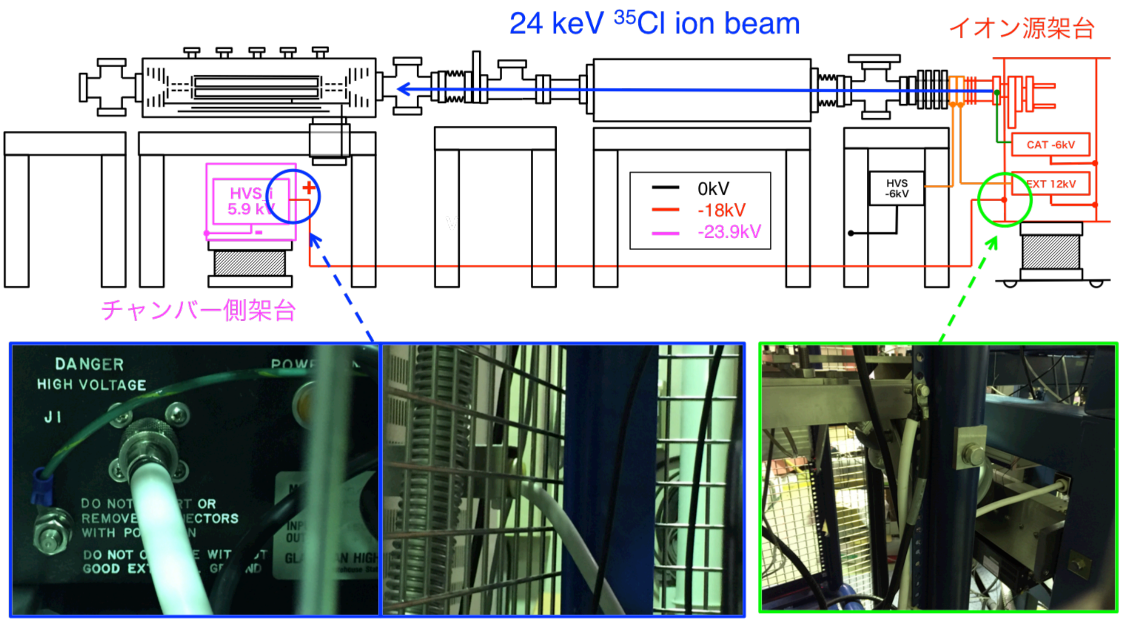


Figure 5-3 イオン源−チャンバー間の接続

図中の白いケーブルがイオン源架台とチャンバー架台を接続する同軸ケーブルである。

5.2.3. 減速チャンバー内部の電源構成

減速チャンバー内部の電源構成を Fig. 5-4 に示す。24 keV のイオンビームを 100 eV まで減速することを考えた場合、チャンバー架台の電位は高圧電源(HVS_i)によって、-23.9 kV まで昇圧される。

減速チャンバーの減速部と高周波電極、高周波電極と加速部の間にはそれぞれ 3 枚のガイド電極が設置されるが、ここでは 3 枚の電極のうち中央の 1 枚に電圧をかけ、アインツェルレンズとして使用することを考える。

チャンバー架台には前後アインツェルレンズ用の電源が 2 つ(PS)、高周波電極に高周波電圧を加えるための RF 電源、高周波電極に組み込まれた DC 電極に電圧を加えるための DC 電源が設置される。チャンバー内部において、高周波電極部の外筒、減速電極の 4 枚目電極(e4)、加速電極の 1 枚目電極(e5)、高周波電極部の入口と出口のアパーチャーはそれぞれチャンバー架台と同電位となる(Fig. 5-4)。

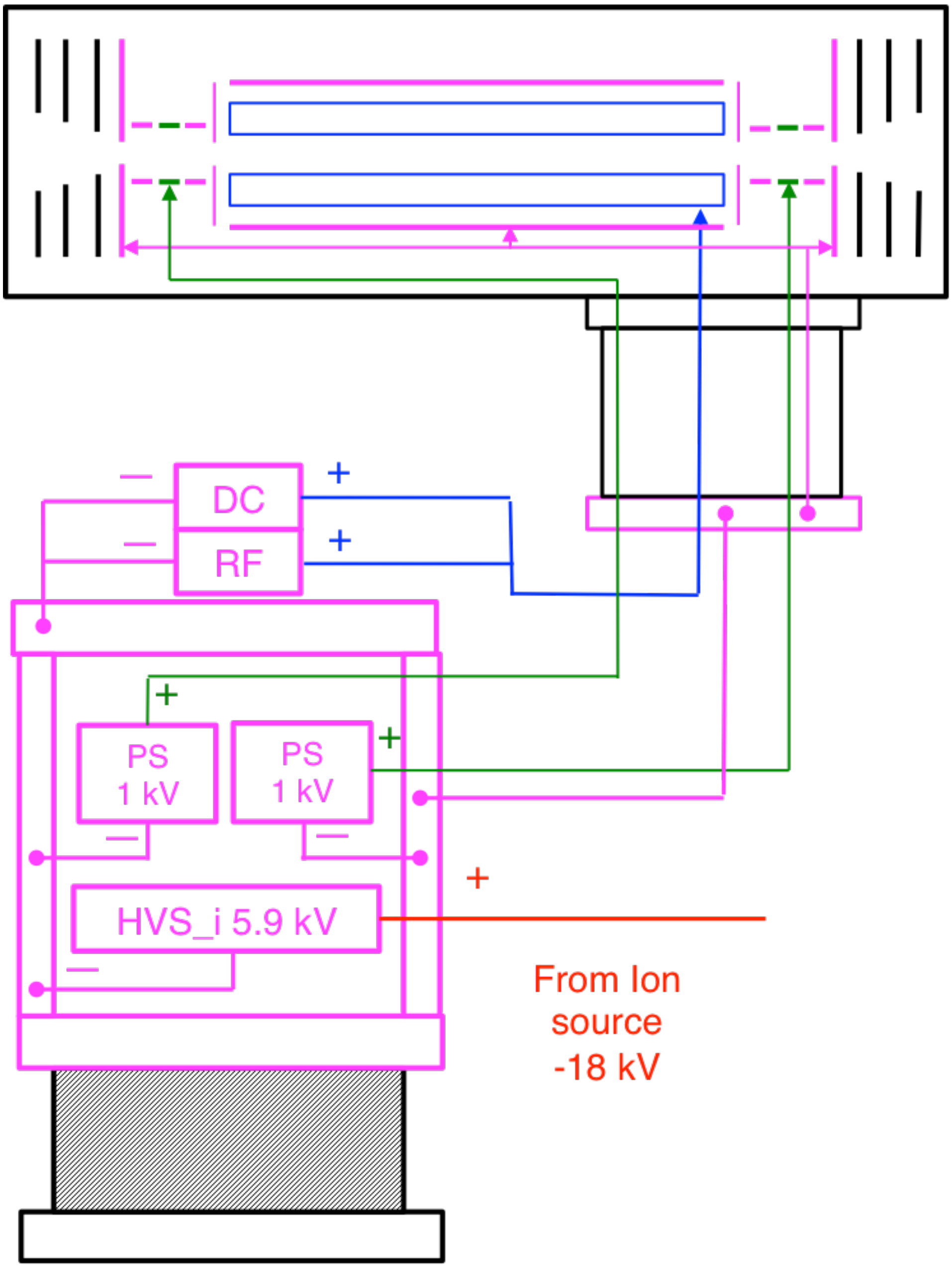


Figure 5-4 減速チャンバーの電源構成

5.3. スリットによる透過効率の最適化

テストベンチにおける透過効率の評価は、電磁石出口に設置したファラデーカップ(FC2)とテストベンチ最後部に設置したファラデーカップ(FC3)でそれぞれ得られた電流値を比較して行う。この際、チャンバー後部の静電偏向器付きフランジのレーザー導入用ビューポートをファラデーカップに変換して、再加速後のイオンの電流値を測定した(Fig. 5-5)。

5.3.1. テストベンチにおけるビーム集束系

テストベンチビームラインにおけるビームの集束は X 方向と Y 方向についてそれぞれ次の効果によって制御される。

<u>**X 方向：**</u>

・イオン源アインツェルレンズ
・電磁石のレンズ効果
・電磁石出口のスリット
・減速チャンバーのアパーチャー
・減速チャンバー内部のアインツェルレンズ(ガイド電極)

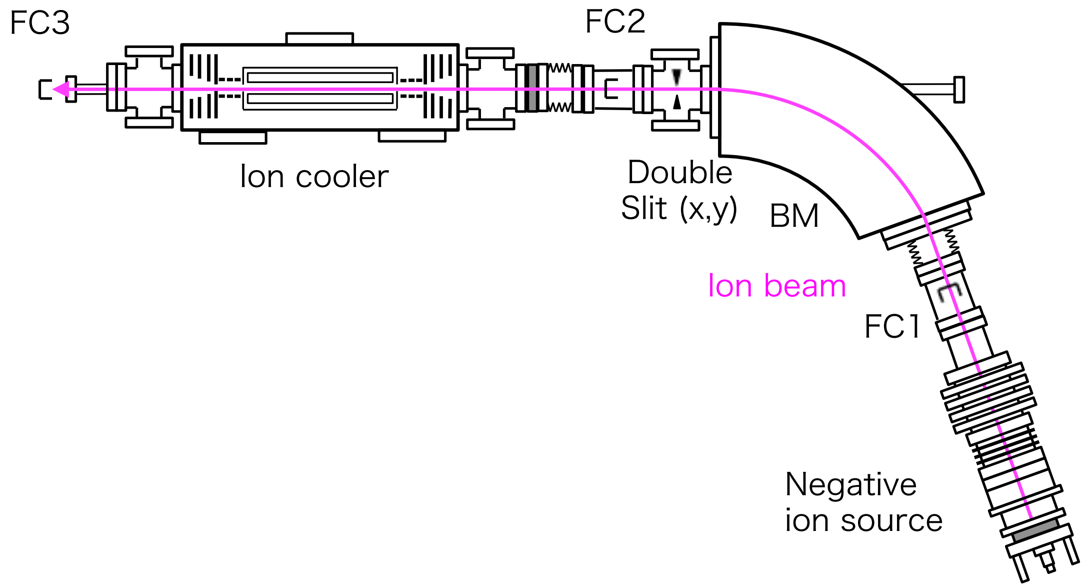


Figure 5-5 透過効率の評価時のファラデーカップの位置関係

<u>Y 方向:</u>

・イオン源アインツェルレンズ

・電磁石出口のスリット

・減速チャンバーのアパーチャー

・減速チャンバー内部のアインツェルレンズ(ガイド電極)

X 方向は電磁石によるレンズ効果とイオン源アインツェルレンズにおいて集束・発散を制御する。Y 方向についてはテストベンチに使用した電磁石ではフリンジング効果による Y 方向の集束が行われないので、イオン源アインツェルレンズによりイオンビームの集束・発散を制御する。

Figure 5-6 の下図はイオン源から出たビームのテストベンチビームラインにおける拡がりの変化を示す。電磁石通過後のイオンビームの焦点は前述の通り、集束機構が異なるため X 方向と Y 方向で異なることが予想される。そのため、減速チャンバーの減速管のアパーチャーでイオンビームが集束しない場合、イオンビームがアパーチャーに干渉すると考えられる。この場合、FC２と FC３で得られた電流値から透過効率を評価すると、減速チャンバーの透過効率を過小評価してしまう。

電磁石を通過するイオンビームのうち、FC３まで到達するイオンビームは Fig. 5-7 のピンク色で示す範囲に存在すると考えられる。イオンビームを FC3 まで踏圧する成分のみにするため、電磁石出口のスリットを用いた。

電磁石出口のスリットを挿入していくと、はじめは FC3 の電流値は変化しないが FC2 の電流値のみが減少していくと考えられる。スリットが FC3 まで到達するビームに干渉する範囲まで挿入されると、FC2 と FC3 の電流値がともに減少すると予想される。したがって、FC3 の値に干渉しない位置までスリットを挿入することで、減速チャンバーの透過効率を適切に評価することが可能になると考えられる。

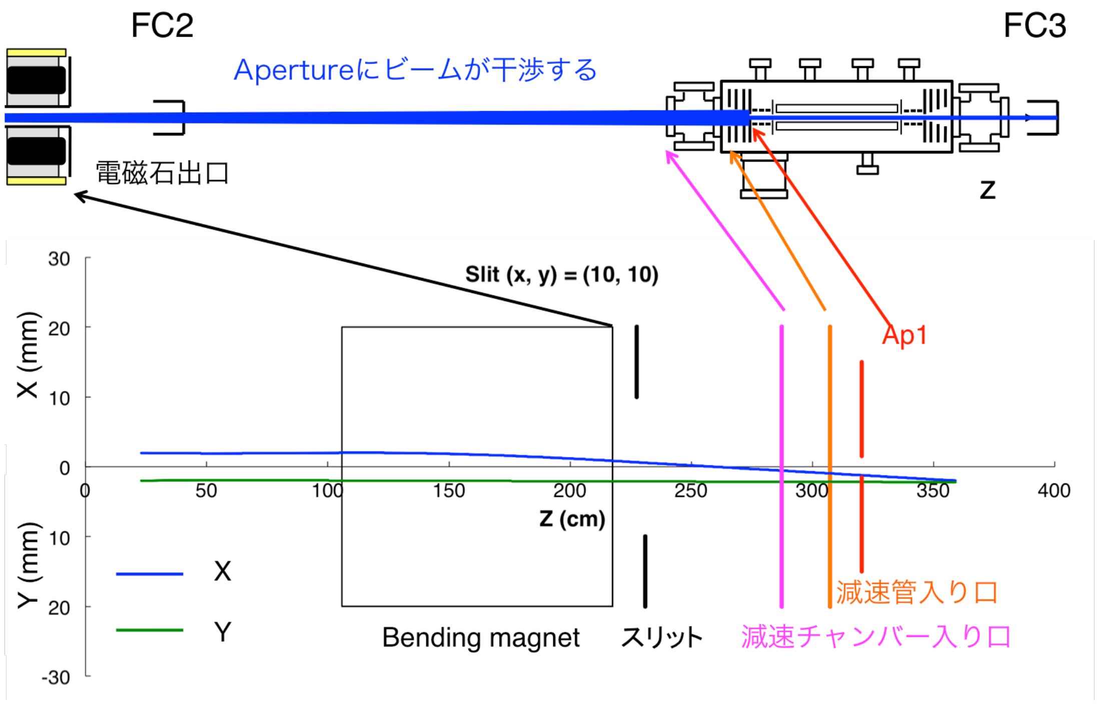


Figure 5-6 電磁石通過後のイオンビームの拡がり

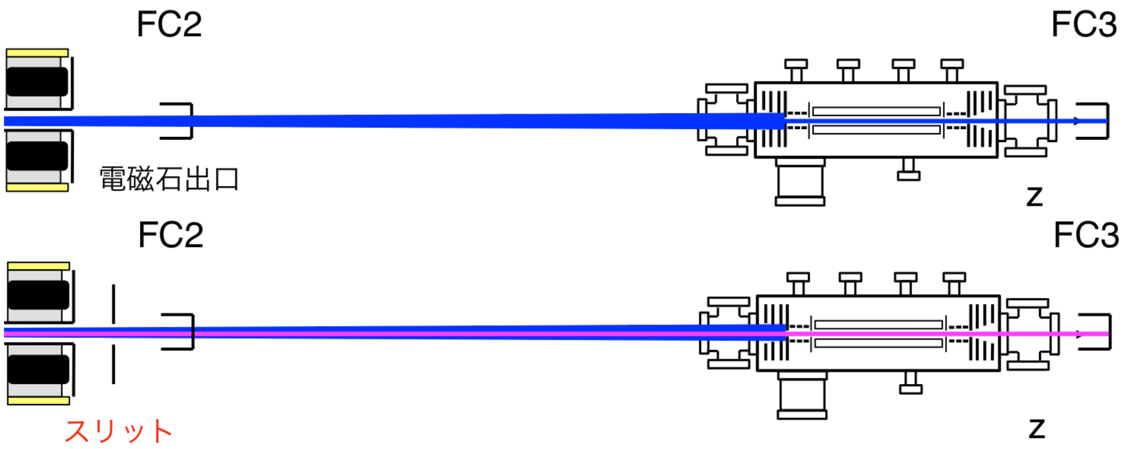


Figure 5-7 スリットによる透過効率の最適化

5.3.2. スリットの構造と座標系

Figure 5-8 に電磁石出口のスリットの構造を示す。X 方向のスリット(DS-X)は電磁石出口から 10 cm 程度離れた位置に設置され、Y 方向のスリット(DS-Y)は DS-X からさらに 3.5 cm 離れた位置に設置される。それぞれのスリットは 0.1 mm 単位で挿入することが可能であり、最適化の際には、はじめにそれぞれ 10 mm ずつ開放した状態で実験を行った(Fig. 5-9)。

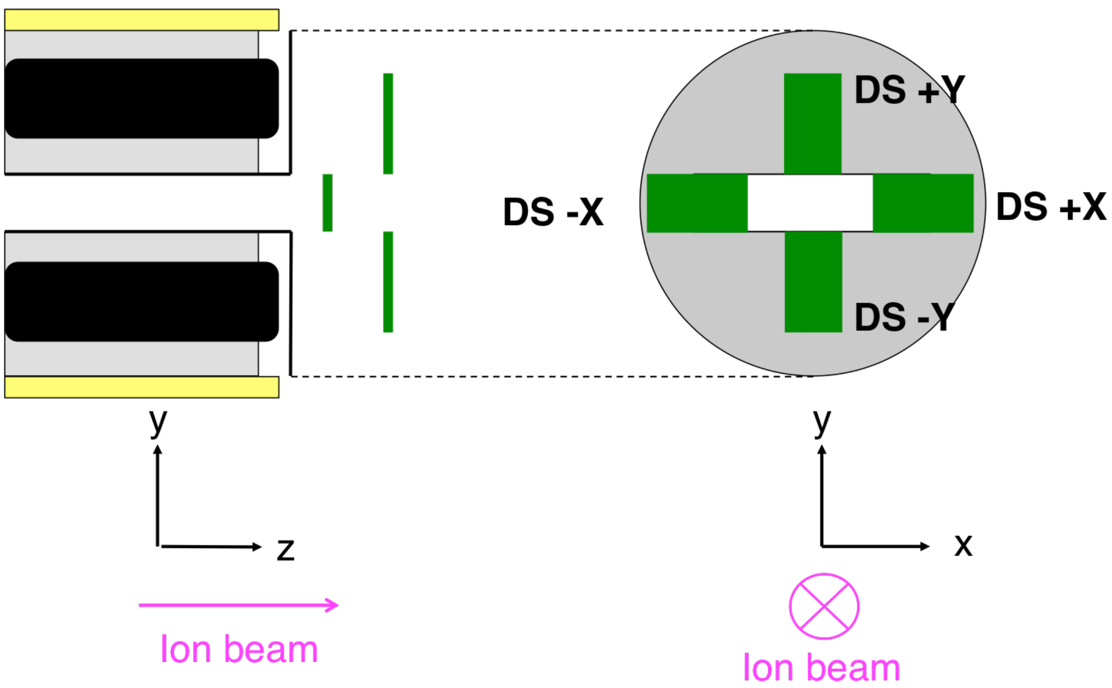


Figure 5-8 スリットの構造

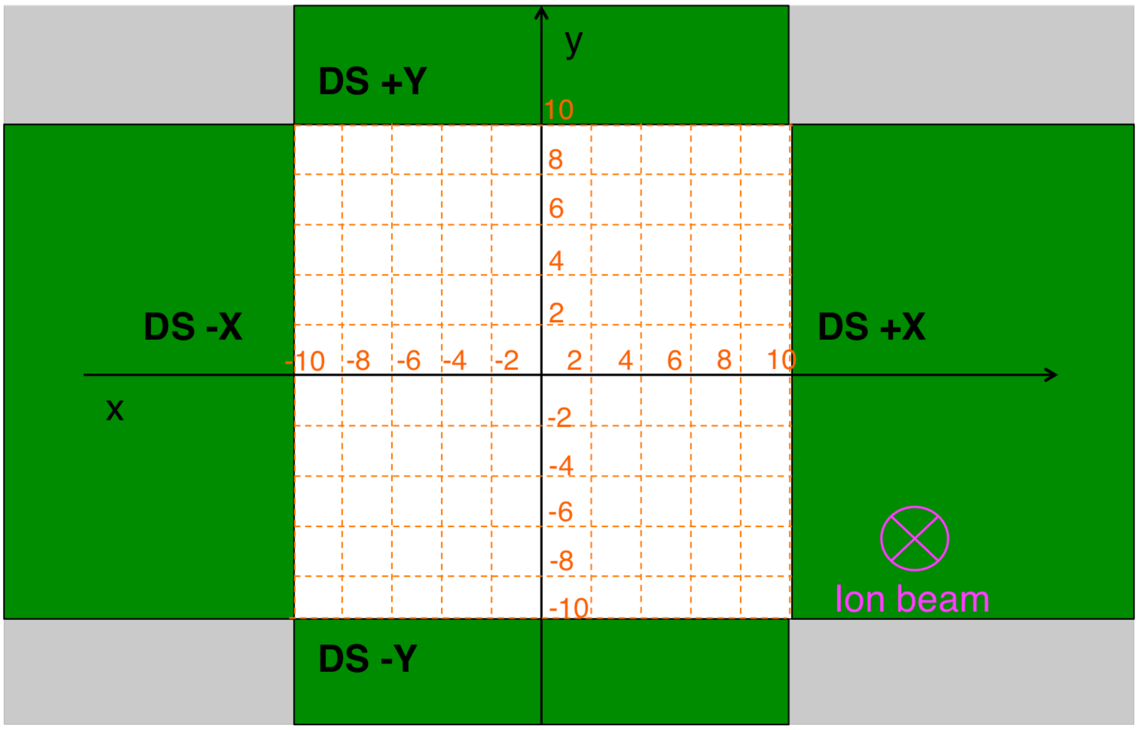


Figure 5-9 スリットの座標系

5.3.3. スリットによる透過効率の最適化

Figure 5-10 に X 方向の、Fig. 5-11 に Y 方向のスリットをそれぞれ動かした場合の FC2、FC3 の電流値の変化を示す。実験は ^{35}Cl の負イオンビームにより行い、エネルギーは 24 keV とした。この際、電磁石の磁場は 1449.65 Gauss、イオン源アインツェルレンズ(FOC)には 2.6 kV ~ 3 kV の電圧を加えた。また、減速チャンバー内の高周波四重極には周波数 1.718 MHz、V_{pp} 250 V の高周波電圧を加えた状態で実験を行った。

Table 5-1 にスリット位置による FC2、FC3 の電流値の変化を示す。各スリットが 10 mm 開いている状態での FC2、FC3 の電流値はそれぞれ 3.5 μA、50 nA であった。-X 方向の場合、X = -6 mm まで挿入すると FC3 の電流値が減少し始めたので、スリットが FC3 に到達するビームに干渉を始めると判断し、DS –X は-6 mm に設定した。+X 方向、-Y 方向についても同様に調べ、X = 2 mm、Y = -4 mm に設定した。+Y 方向はスリットを挿入しても FC3 に干渉しなかったため、全閉(Y = 0)とした。

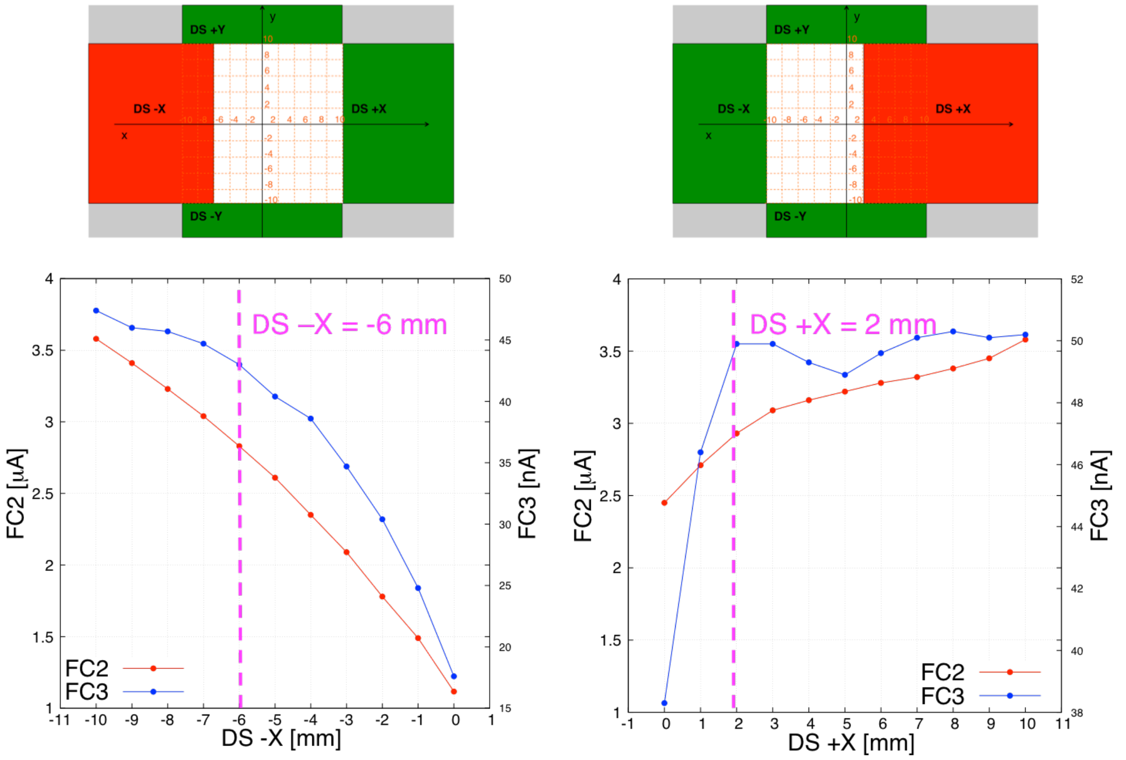


Figure 5-10 X 方向の最適化

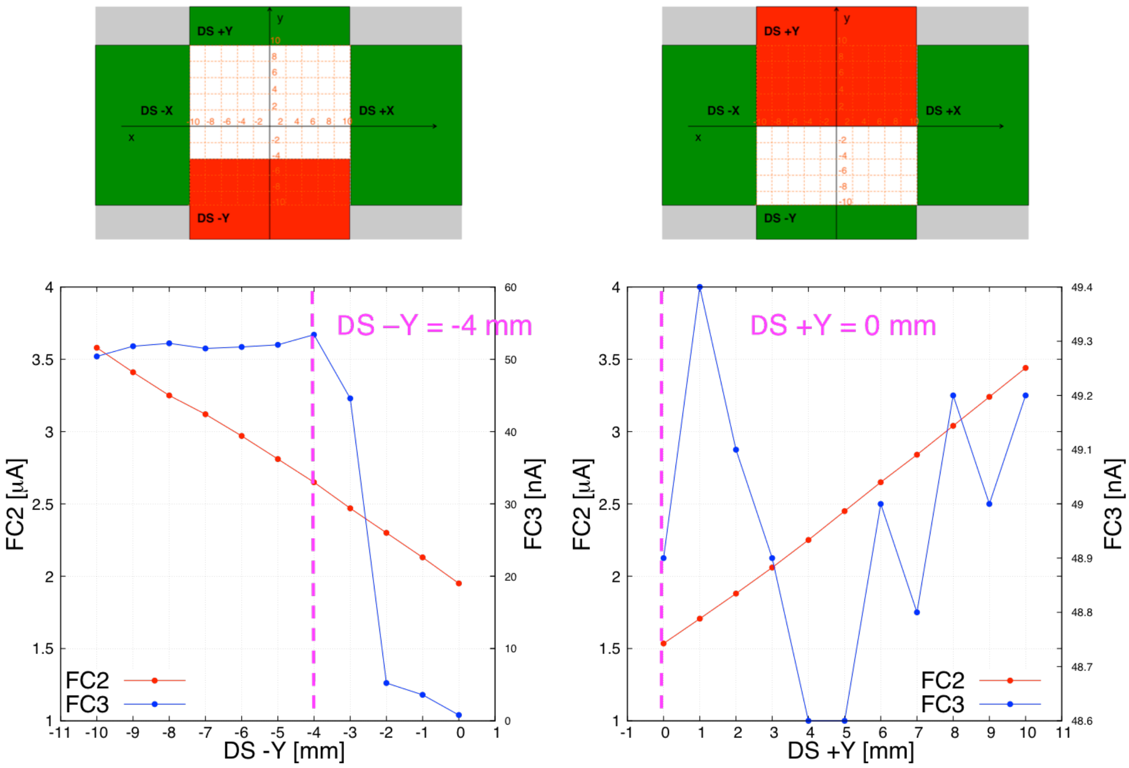


Figure 5-11 Y 方向の最適化

Table 5-1　スリット位置による FC2、FC3 の電流値の変化

DS –X/ mm	FC2/ μA	FC3/ nA	DS +X/ mm	FC2/ μA	FC3/ nA
10	3.58	47.4	10	3.58	50.2
9	3.41	46.0	9	3.45	50.1
8	3.23	45.7	8	3.38	50.3
7	3.04	44.7	7	3.32	50.1
6	2.83	43.0	6	3.28	49.6
5	2.61	40.4	5	3.22	48.9
4	2.35	38.6	4	3.16	49.3
3	2.09	34.7	3	3.09	49.9
2	1.78	30.4	2	2.93	49.9
1	1.49	24.8	1	2.71	46.4
0	1.117	17.6	0	2.45	38.3
DS –Y/ mm	FC2/ μA	FC3/ nA	DS +Y/ mm	FC2/ μA	FC3/ nA
10	3.58	50.4	10	3.44	49.2
9	3.41	51.8	9	3.24	49.0
8	3.25	52.2	8	3.04	49.2
7	3.12	51.5	7	2.84	48.8
6	2.97	51.7	6	2.65	49.0
5	2.81	52.0	5	2.45	48.6
4	2.65	53.4	4	2.25	48.6
3	2.47	44.6	3	2.06	48.9
2	2.30	5.23	2	1.88	49.1
1	2.13	3.6	1	1.706	49.4
0	1.95	0.8	0	1.535	48.9

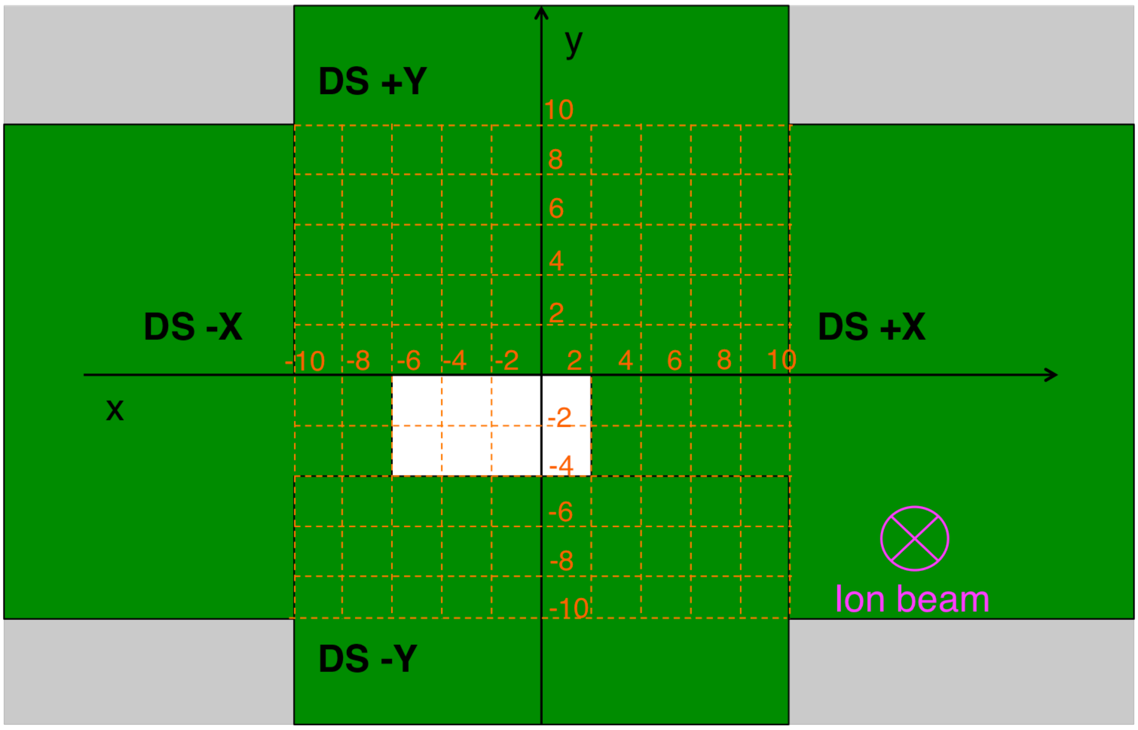


Figure 5-12 スリット最適化後のスリット位置

スリットを最適化した後のスリット位置を Fig. 5-12 に示す。この状態で FC2、FC3 の電流値はそれぞれ 334 nA、35.4 nA となり、FC2 から FC3 の透過効率は 10.6 %となった。

Table 5-1、Fig. 5-11 に示すように、+Y 方向のスリットを全閉にしてもイオンビームに干渉しなかったことと、-Y 方向のスリットを Y = -4 mm 以上挿入すると急激に FC3 における電流値が減少したことから、FC3 まで到達するイオンビームの中心はビームラインの中心から-Y 方向に少しずれた位置に存在すると考えられる。

5.4. イオンビームの減速による透過効率の変化

5.4.1. イオンのエネルギーと透過効率の変化

スリットの最適化後、減速チャンバー内の高周波四重極に導入するイオンの速度を徐々に減速した場合の透過効率の変化を調べた。測定はエネルギー24 keV の $^{35}Cl^{-}$ ビーム、磁場 1449.85 Gauss、FOC 3.2 kV、高周波四重極の周波数 1.728 MHz、V_{pp} 254 V の条件で行った。この時、FC2 の電流値は 517 nA であった。

高周波四重極に導入するイオンのエネルギーは式(5-2)で計算され、サンプルカソードの電圧(CAT)を-6 kV に設定した場合、チャンバー架台の高圧電源(HVS_i)の電圧を上昇させることで、イオンは 6 keV から 0 keV まで減速される。HVS_i の電圧を変化させた場合の透過効率の変化を Fig. 5-13 に示す。

導入するイオンのエネルギーを減少させると、透過効率は次第に落ちていくものの、単調ではなく複数のピークが認められた。ピークにおけるイオンのエネルギーと透過効率をまとめたものを Table 5-2 に示す。

イオンのエネルギーを 6 keV から 5.44 keV まで減少させると、透過効率は 15.3 %から 18.6 %まで上昇した。次に、4.1 keV まで減少する間、透過効率が減少を続け、12 %まで減少した。一方、2.9 keV まで減速する間に透過効率は上昇し、2.9 keV の時最大で 20 %となった。その後、透過効率は急激に減少し、エネルギーが 1.8 keV の時一旦ピークが現れたが、0.1 keV で FC3 の電流値は 0 nA となり、透過効率はほぼ 0 %となった。

この現象について、SIMION8.1 により実験状況の再現を行い、減速に伴うイオンビームの挙動を調べた。

Table 5-2 ピークにおけるイオンのエネルギーと透過効率

HVS_i [kV]	E [keV]	FC3 [nA]	Transmission (FC3/FC2) [%]
0	6	79.4	15.3
0.56	5.44	96.2	18.6
1.9	4.1	61.8	12.0
3.1	2.9	103.5	20.0
4.2	1.8	39.4	7.6
5.9	0.1	0	0

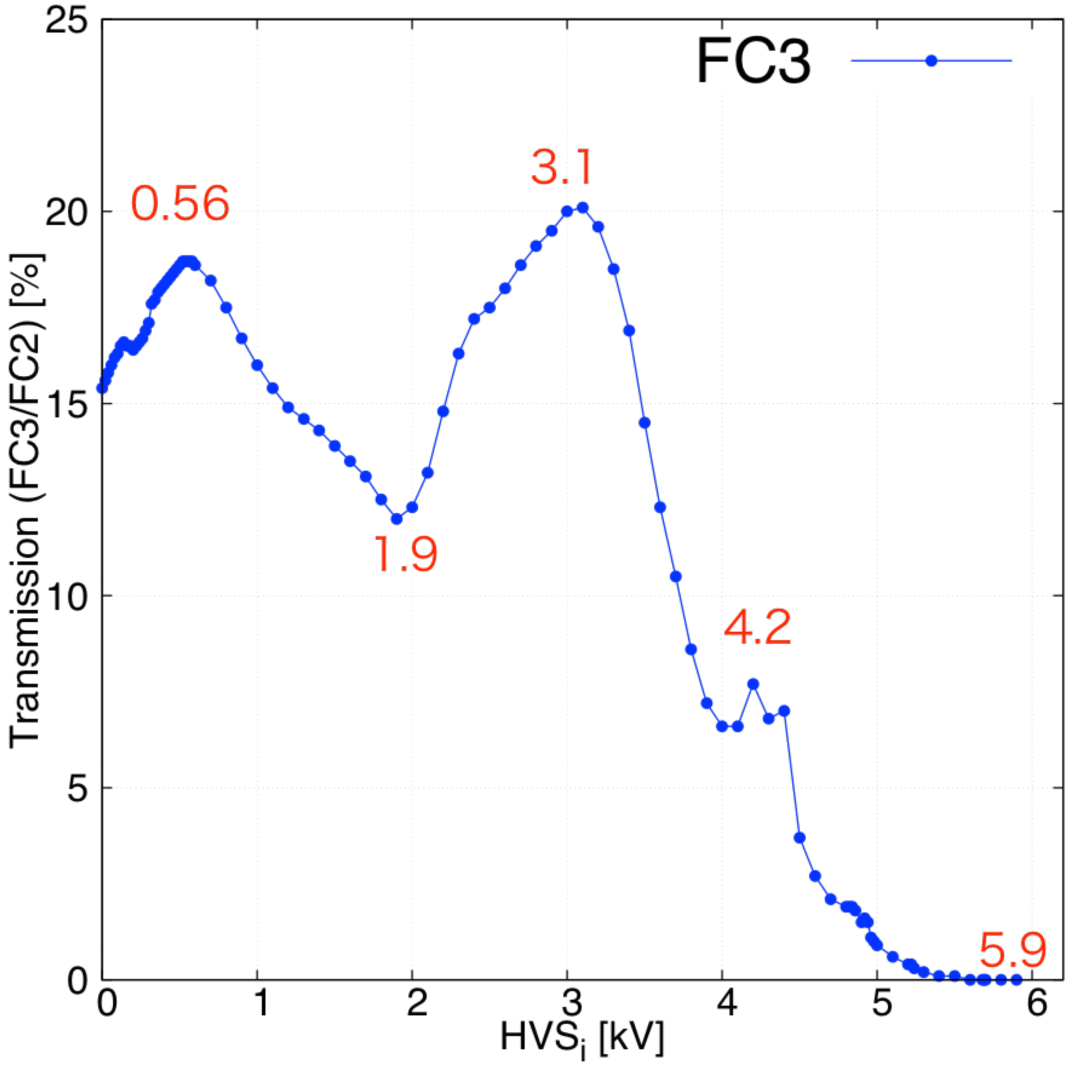


Figure 5-13 減速による透過効率の変化

5.4.2. 減速部におけるイオンビームの変化

SIMION による計算では、スリットによる最適化を考慮し、初期のビーム径として縦 4 mm、幅 8 mm の平行ビームに設定した。イオンの質量を 35 a.m.u.、エネルギーを 24 keV とし、エネルギーの分布は 8 eV の半値全幅を持つガウス分布を仮定した。

減速電極の最終電極(e4)、1 枚目のアパーチャー(Ap1)、3 枚のガイド電極(G1~G3)、2 枚目のアパーチャー(Ap2)、高周波四重極は全て等電位とした。その電位を V とすると、V はイオン源架台と HVS_i の和であり、

$$V[kV] = -(18 + HVS\_i) \quad V[kV] = -(18 + HVS\_i) \tag{5-3}$$

で計算される。

Figure 5-14 に減速部におけるイオンビームの変化を示す。HVS_i の値が大きくなるほど、イオンビームの節が高周波四重極内から減速部に移行することが確かめられ、HVS_i の値に対するビームの節の位置は次のようになった。

0 ~ 4 kV : 高周波四重極内
4 ~ 5.5 kV : ガイド電極部
5.5 kV ~ : 減速電極内

減速部における透過効率の減少はアパーチャーにイオンビームが干渉することが主な原因であると考えられる。イオンビームの節が高周波四重極内にある時、節が四重極の入口に近づくほど、２枚のアパーチャーの透過効率が上昇するため、Fig. 5-13 の 0 ~ 3.1 kV において透過効率が増加したと考えられる。

イオンビームがガイド電極部にある時、節で一旦集束したビームは、今度は拡がり始める。そのため、節が減速電極に近づくほど Ap1 の透過効率は上昇するが、Ap2 の透過効率は減少し始める。イオンビームが Ap1 を干渉せずに通過したとしても、Ap2 で干渉するため、結果として減速全体における透過効率は減少する。しがたって、Fig. 5-13 の 3.1 kV 以降の透過効率の減少は Ap2 でのイオンビームの干渉によるものであると考えられる。

イオンビームの節が減速電極内部に到達すると、イオンビームは Ap1 の手前で集束するため、Ap1 に干渉し始める。拡がりを持ってガイド電極部に入射したビームは発散し、Ap2 に干渉する。イオンビームを 40 eV 程度まで減速した時、

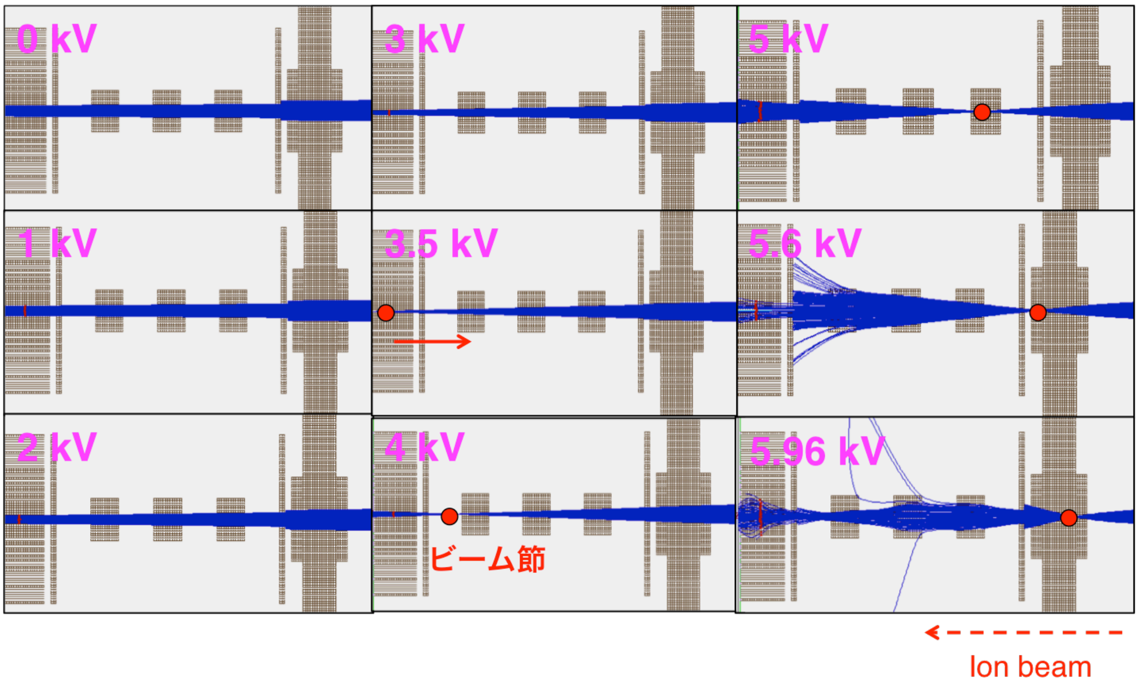


Figure 5-14 減速部におけるイオンビームの変化

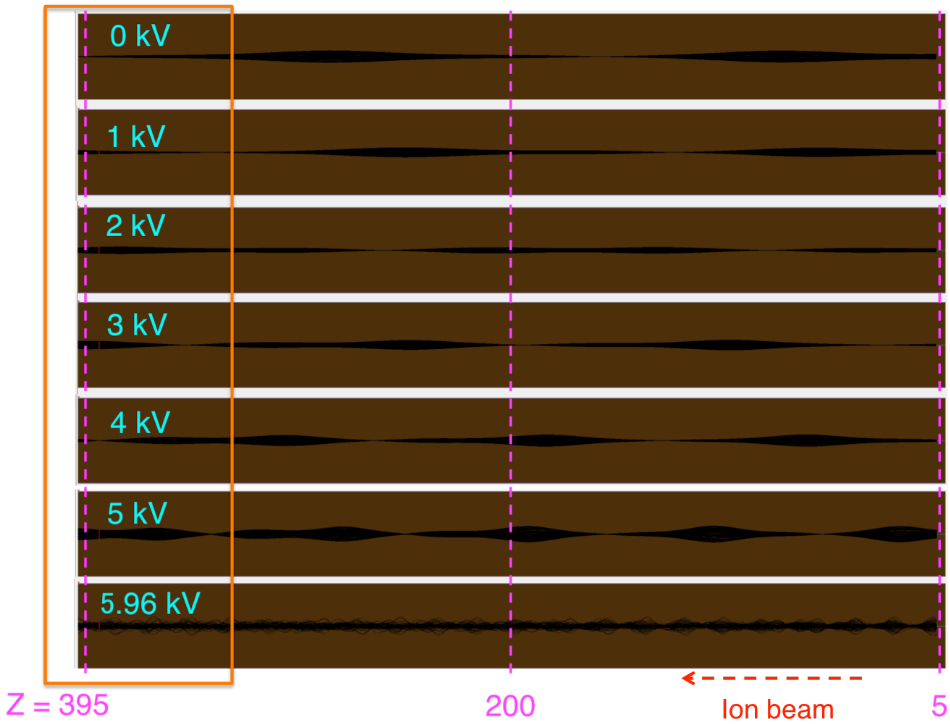
図中の電圧は HVS_i の出力電圧を示す。

ガイド電極内での集束が見られるが、Ap1 での損失が大きく、結果として透過効率は減少する。

5.4.3. 高周波四重極内のイオンビームの変化

次に高周波四重極内のイオンビームの変化について考察する。高周波四重極内のイオンビームの挙動を Fig. 5-15 に示す。四重極内における透過効率はほぼ 100 %であり、四重極内におけるイオンビームの損失はないと考えられる。

しかしながら、四重極内のイオンのエネルギーによって、四重極出口におけるビーム径が異なる。Fig. 5-16 に Fig. 5-15 の四重極出口を拡大した図を示す。四重極内を通過するイオンの速度が減速されるほど、イオンは高周波四重極によって作られる電場の影響を受け、集束と発散を多く繰り返すようになる。四重極出口においてビームが集束していた場合、加速部にはイオンビームが集束した状態で入射するが、発散していた場合は発散したイオンビームが入射する。加速部には減速部同様に 2 枚のアパーチャーが存在するため、四重極出口におけるビーム径とビームの拡がり方は加速部の透過効率に大きく影響することが予想される。



Figures 5-15 高周波四重極内のイオンビームの変化

図中の電圧は HVS_i の出力電圧を示す。

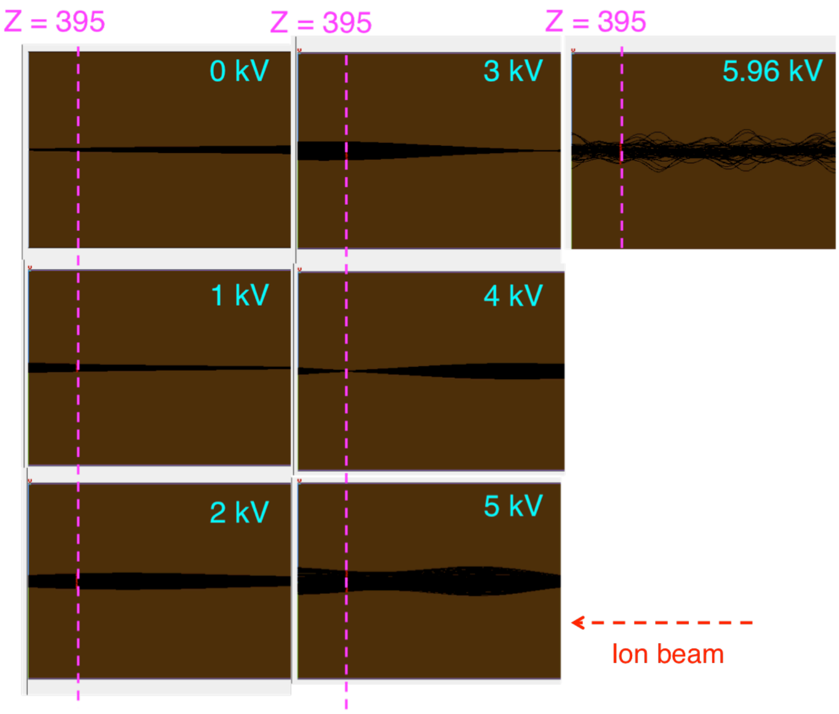


Figure 5-16 高周波四重極出口のイオンビームの変化

5.4.4. 加速部におけるイオンビームの変化

前節で述べた通り、加速部の透過効率は高周波四重極出口のイオンビーム径に依存すると考えられる。また、高周波四重極内ではイオンビームが集束と発散を繰り返すため、出口で集束していたビームはそれ以降で発散し、逆に発散していたビームは集束する傾向を示すと考えられる。

Figure 5-17 に加速部におけるイオンビームの変化を示す。HVS_i が 0 ~ 2 kV では四重極出口でイオンビームが発散する傾向にあり、そのため 2 枚目のアパーチャーでイオンビームが干渉し、透過効率が減少すると考えられる。2 ~ 3 kV では逆に、出口でイオンビームが集束する傾向を持ち、ガイド電極部で節を持つ。そのため、透過効率は上昇すると考えられる。

HVS_i が 4 kV 以上では 2 枚目のアパーチャーでビームが損失するが、4.4 kV ではビーム節がガイド電極部に移動することによる透過効率の増加が観測された。ところが、四重極内部におけるイオンのエネルギーが 1 keV 以下(HVS_i が 5 kV 以上)になると、高周波電場によるビームの集束効果が小さくなり、アパーチャーによるイオンビームの損失が大きくなり、透過効率が減少することが観測された。

減速部では HVS_i の値が大きくなると、イオンビームが減速するほどビーム節が手前に移行する傾向が見られた。一方で、加速部では四重極部内で作られたビームの節と山が交互に現れ、加速部におけるビームの節の位置は四重極出口のビームの状態に依存すると予想される。実際、減速部のような、イオンビームのエネルギー変化に伴うビームの節の移動は加速部では見られなかった。

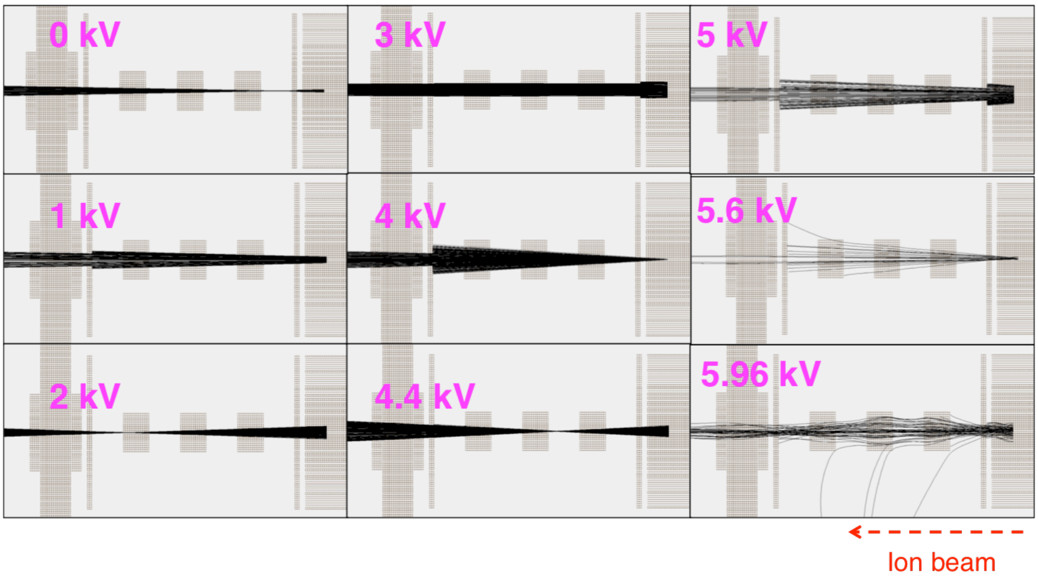


Figure 5-17 加速部におけるイオンビームの変化

5.4.5. イオンビームの減速による透過効率の変化まとめ

これまでの考察をまとめると Table 5-3 及び Fig. 5-18 のようになる。

Table 5-3 減速部、加速部、全体の透過効率の増減のまとめ

HVS_i [kV]	減速部の透過効率	加速部の透過効率	全体の透過効率
0 ~ 1	+	−	+
1 ~ 2	+	−	−
2 ~ 3	+	+	+
3 ~ 4	+	−	−
4 ~ 5	−	−	−
5 ~ 6	−	−	−

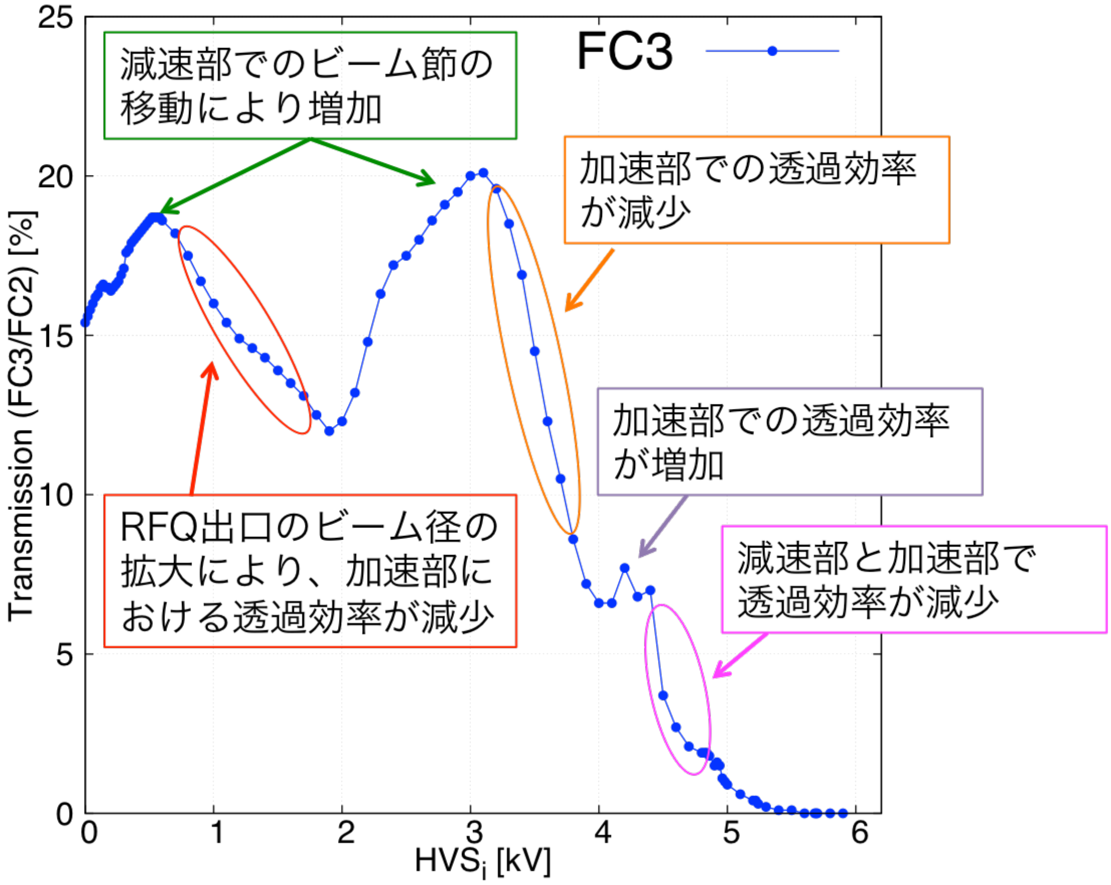


Figure 5-18　減速と透過効率の変化

5.4.6. SIMION の計算における透過効率の変化

Figure 5-19 に SIMION による計算における透過効率の変化を実測の透過効率の変化と比較したものを示す。5.4.2 節で述べた通り、SIMION による計算ではスリットによる最適化を考慮し、初期のビーム径として縦 4 mm、幅 8 mm の平行ビームに設定した。イオンの質量を 35 a.m.u.、エネルギーを 24 keV とし、エネルギーの分布は 8 eV の半値全幅を持つガウス分布を仮定した。入射イオンの数は 500 とし、加速部通過後のイオンを計数して透過効率を求めた。

得られたスペクトルは実測の場合と同様に、イオンの減速とともに透過効率が減少するが複数のピークが見られた。一方、ピークは実測よりもイオンビームを減速した(HVS_i が高い)位置に観測された。

このピーク間のずれの原因としては、減速チャンバーに印加された電圧が設定値と異なっていた可能性が考えられる。計算の場合では設定通りの電圧を電

極に加えることができ、イオンの減速も制御できる。実際の場合、HVS_i の出力電圧は設定した電圧が加えられているものとして実験を行っている。設定値と実際の出力電圧にずれがあれば、実験で得られたスペクトルがシフトする可能性がある。

現段階でこれ以上の考察は困難であるが、チャンバー側架台の OA タップの絶縁性の確認や減速されたイオンビームのエネルギーの計測機構の開発を検討する必要がある。

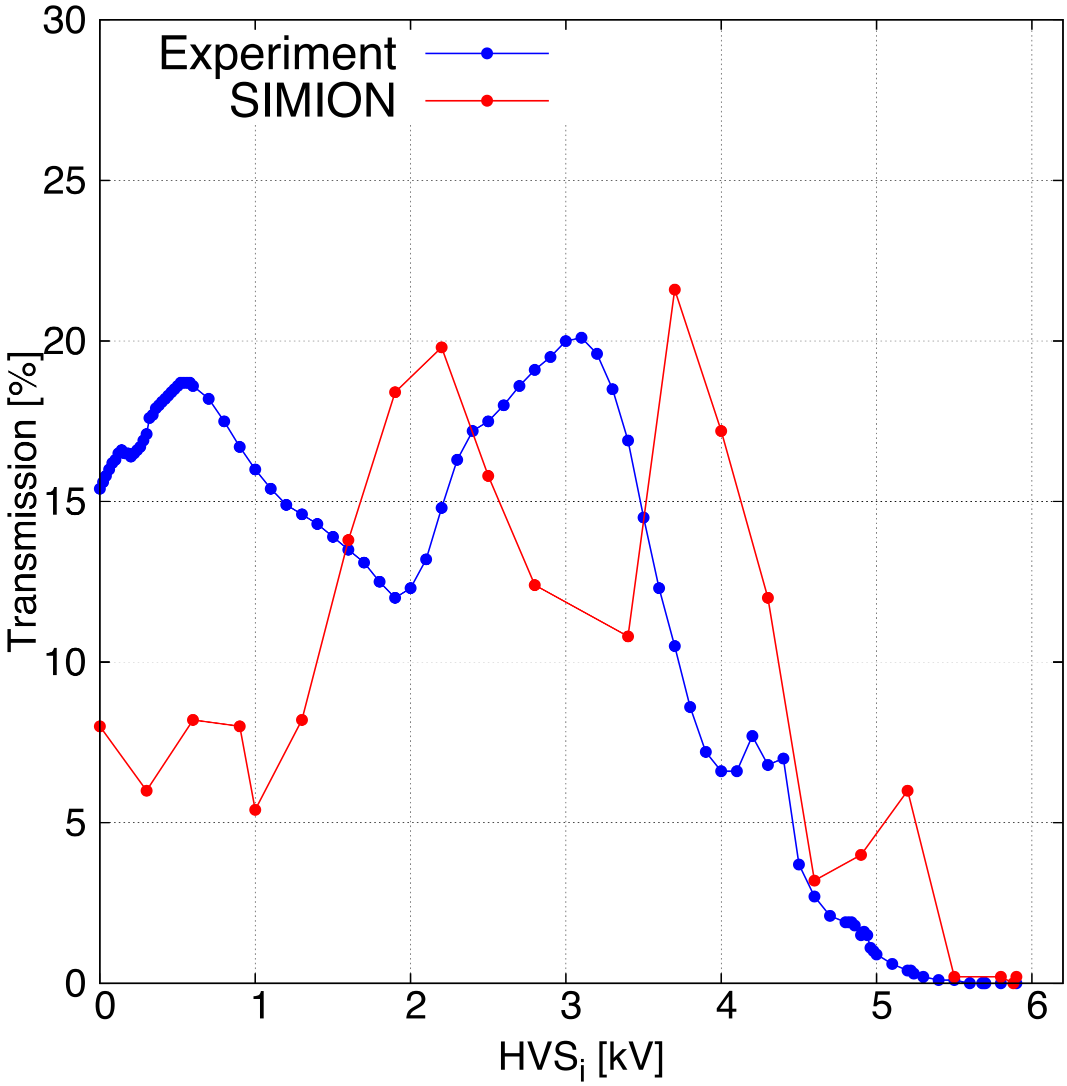


Figure 5-19 SIMION による計算における透過効率の変化

5.5. ガイド電極の効果の検証

本章では、ビームの集束を調整するために、高周波四重極の前後に設置された各 3 枚のガイド電極(前方: G1 ~ G3、後方: G4 ~ G6)のうち、それぞれ中央の電極のみに電圧を加えてアインツェルレンズとして使用した。この時、周囲の電極に対して高い電位とすることで、イオンビームを加速し内部でビームを集束させることが可能であると考えられる。

Figure 5-20 は高周波四重極前方の電極 G2 に加える電圧を変化させた場合の FC3 で観測された電流値の変化を示す。HVS_i の電圧は 5.88 kV に設定され、四重極に導入されるイオンのエネルギーは 120 eV となることが予想される。G2 以外には高周波四重極に周波数 1.718 MHz、V_{pp} 256 V の電圧を加えた状態で実験を行った。G2 に電圧を印加しない場合、FC3 の電流値は 6 pA であったが、G2 に 0.174 kV を加えると FC3 の電流値は 244 pA まで増加し、電流値は 40.6 倍まで増加した。

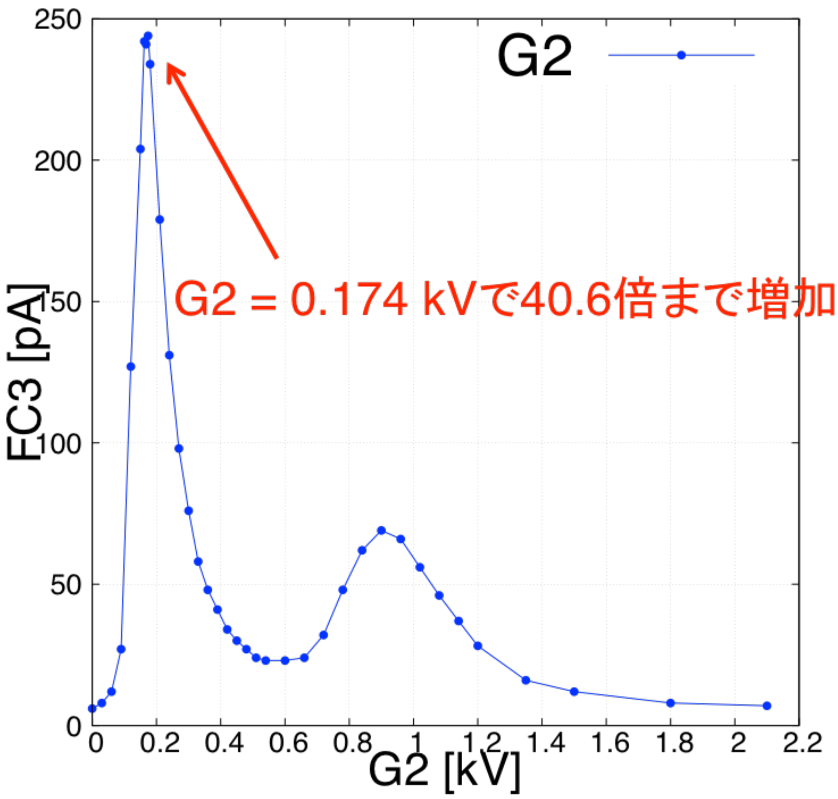


Figure 5-20 G2 の最適化

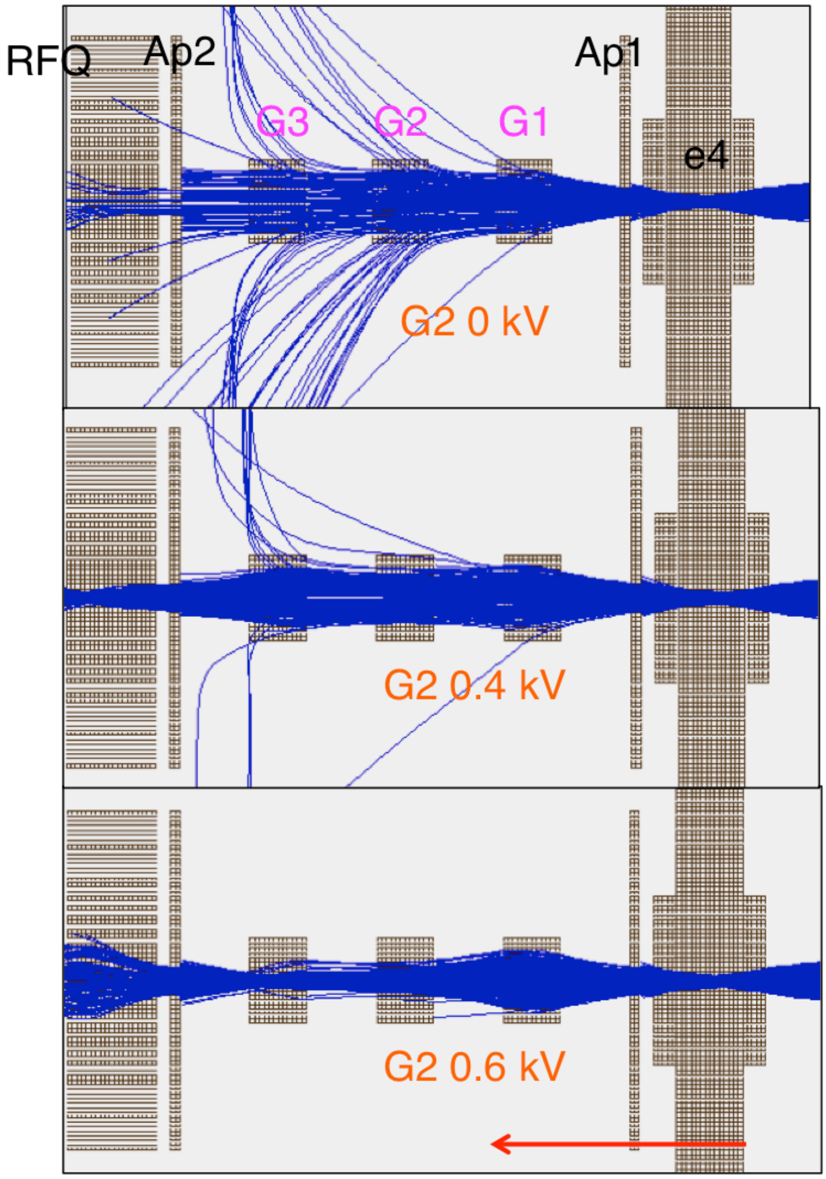


Figure 5-21 G2 の電圧を変化させた場合のビームの集束の変化

同様の条件を SIMION による計算で再現したところ、ビームの集束の変化は Fig. 5-21 のようになった。イオンビームが集束するには実際よりも高い電圧を加える必要があったが、G2 の電圧を高くするにしたがってビームが集束する様子が確認された。

次に、高周波四重極の最適化を行った。HVS_i は 5.88 kV とし、他の電極に電圧をかけない状態で、高周波四重極に加える V_{pp} の値を変化せた場合の FC3 の電流値の変化を調べた。

高周波電源はファンクションジェネレータ、パワーアンプ、共振器から構成される。73 巻のコイルを用いた場合、共振器のみで 25 倍 ~ 30 倍の増幅率が得られたため、本実験の際にはパワーアンプを使用しなかった。高周波電源の周波数は 1.728 MHz に固定し、ファンクションジェネレータの出力 V_{pp} 電圧(V_{in})を 1 V から 10 V まで変化させた時、増幅後の V_{pp} 電圧(V_{out})は Table 5-4 のようになった。

Table 5-4 共振器への入力電圧と出力電圧、FC3 の電流値

V_{in} [V]	V_{out} [V]	HVS_i [kV] 0	1	2	3	4	5	5.88
		FC3 [nA]						FC3 [pA]
1	32	13.1	5.49	2.64	1.2	0.36	0.098	0
2	58	13.7	6.47	3.78	2.23	0.62	0.32	0
3	82	16.1	8.5	6.37	5.0	1.37	0.56	1
4	106	21.2	12.0	10.6	9.6	2.5	0.98	4
5	134	25.8	15.1	15.2	12.7	3.8	1.18	6
6	156	24.8	20.6	16.9	15.5	5.0	**2.01**	**7**
7	182	20.3	18.9	18.6	**23.9**	3.7	1.38	**7**
8	204	18.7	16.8	**28.4**	11.7	4.1	1.49	6
9	228	22.9	15.6	21.0	11.54	**11.4**	0.58	4
10	252	**32.0**	**21.4**	11.9	12.48	5.4	1.10	4

Table 5-4 に示した通り、高周波四重極に入射するイオンのエネルギーによって、透過効率が最大になる V_{pp} は異なり、120 eV の時は V_{pp} が 156 V 及び 182 V で最大となった。Fig. 5-22 に V_{pp} を変化させた時の FC3 の電流値の変化を示す。120 eV のイオンビームを高周波四重極に導入した時、V_{pp} が 32 V ではイオンが四重極を通過しなかったが、V_{pp} が増加するとともに FC3 の電流値は増加し、156 ~ 182 V で最大値となった。それ以上に V_{pp} を増加させると、FC3 の電流値は減少した。したがって、120 eV の際の透過効率を最大化するため、高周波四重極の電圧は 182 V に設定した。

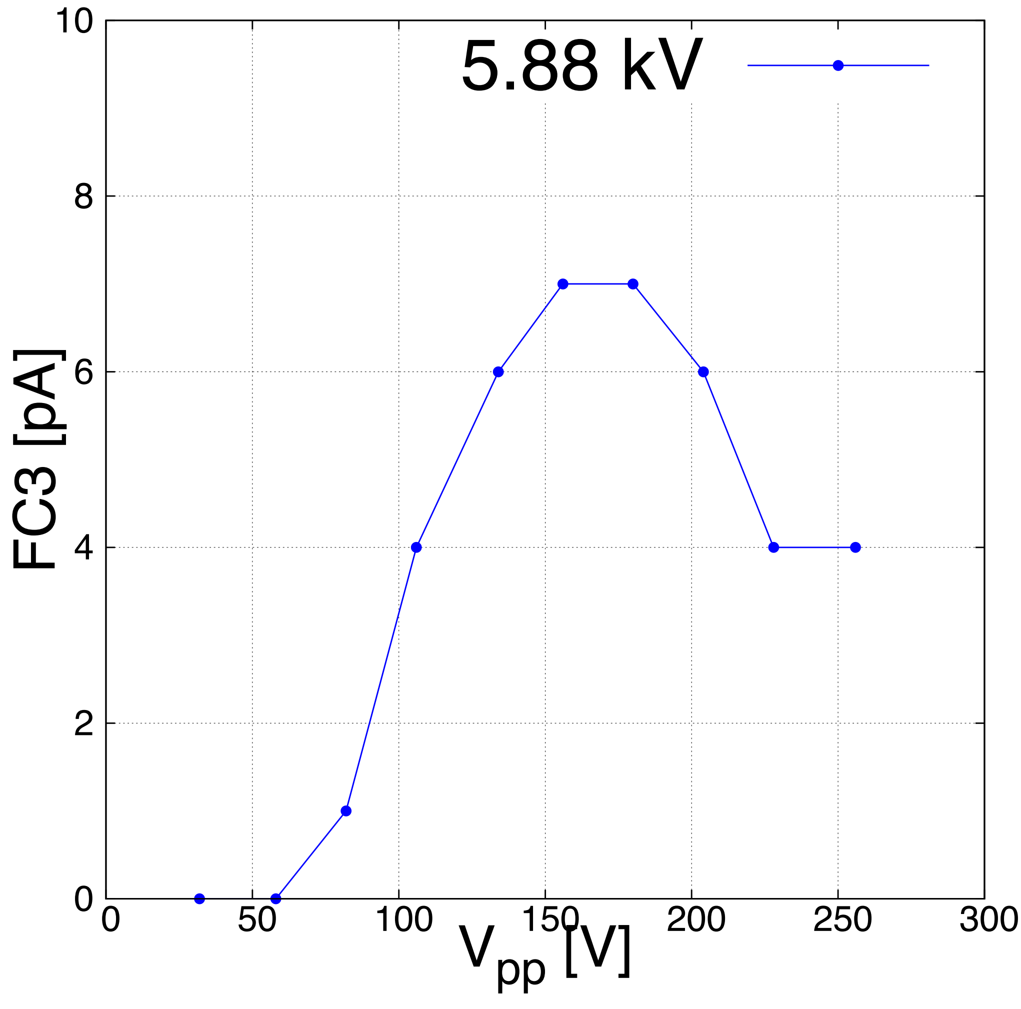


Figure 5-22　高周波四重極の V_{pp} の最適化

最後に、高周波四重極を最適化した状態で、G2 の最適化の場合と同様に、高周波四重極後部の電極 G5 のみに電圧を加えた時の FC3 の電流値の変化を調べた。Fig. 5-23 に G5 の電圧に対する FC3 の電流値の変化を示す。四重極のみを最適化した状態で 6 pA であった電流値は、G5 に 0.2 kV を加えると 80 pA となり、13 倍まで増加した。

ガイド電極及び高周波四重極を最適化した結果、120 eV における FC3 での電流値は 4.6 nA まで増加した。この時 FC2 における電流値は 130 nA であったので、透過効率を 3.5 %まで回復させることができた。

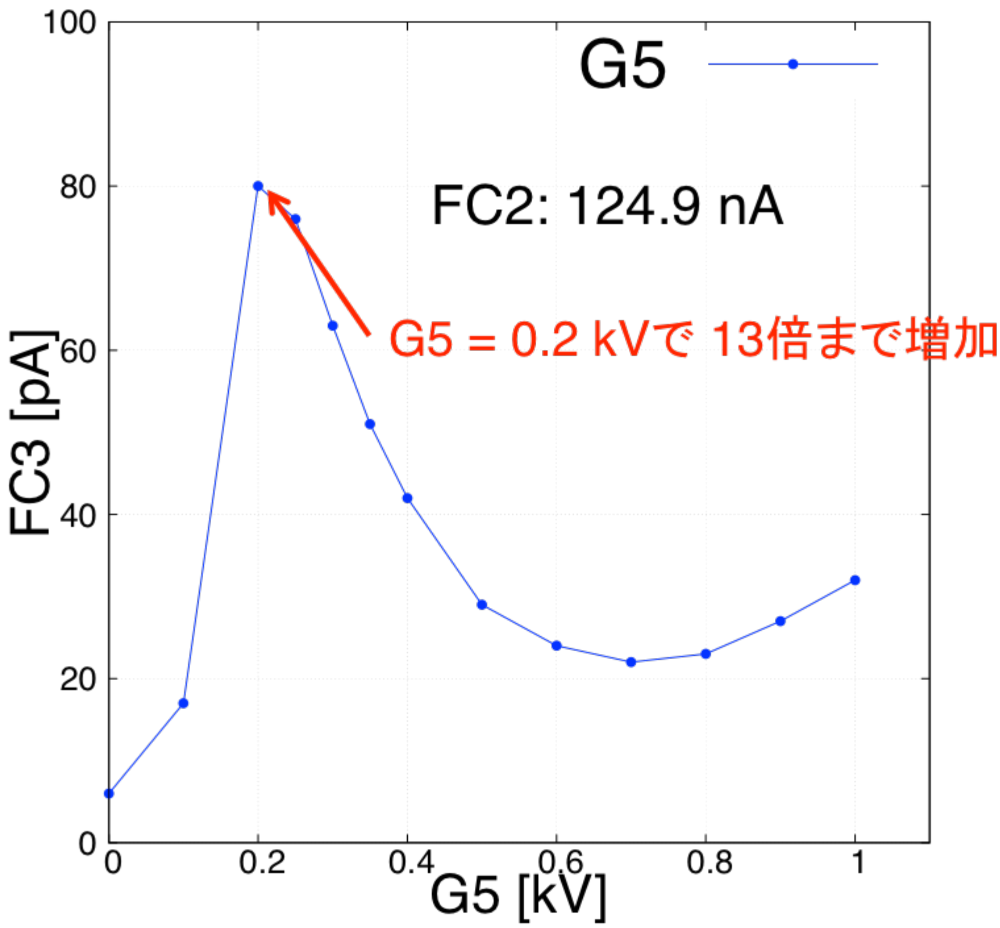


Figure 5-23 G5 の最適化

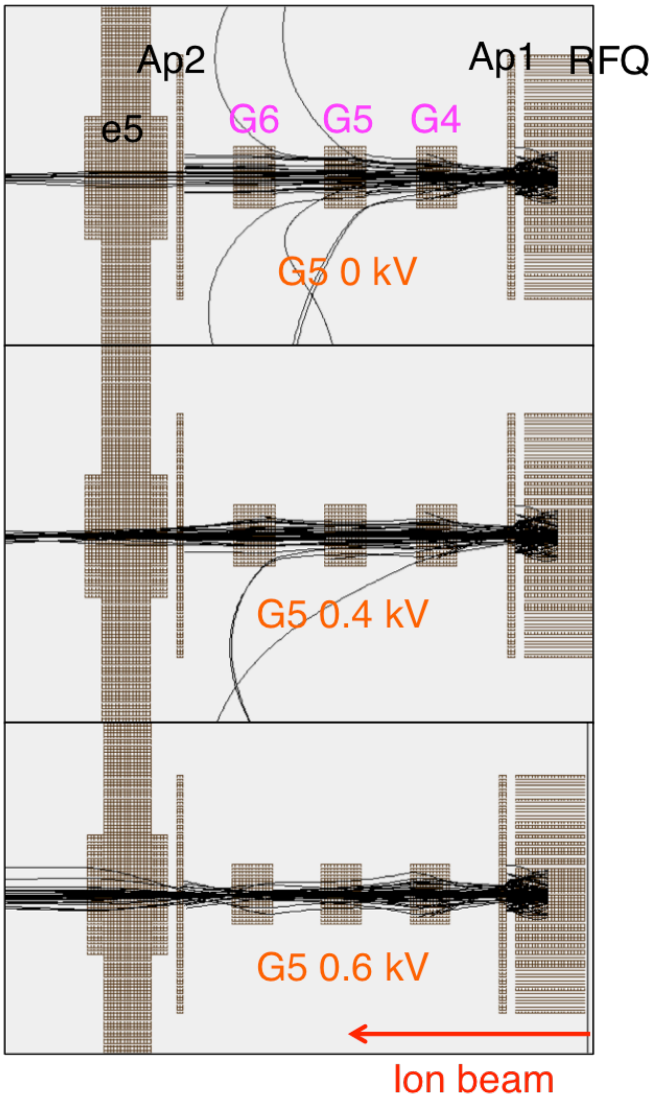


Figure 5-24 高周波四重極出口のビームの変化

G2 の場合と同様に、SIMION 上で実験の条件を再現すると、G5 に加える電圧を大きくするとイオンビームが集束する様子が観測された。G5 の場合も、ビームを集束させるためには実際の電圧よりも高い電圧を加える必要があった。

5.4 節の考察及びこれらの現象から、実験において四重極に導入するイオンビームのエネルギーは、2 つの高圧電源(CAT、HVS_i)の設定値の差から見積もった値であり、実際のイオンのエネルギーとは異なっている可能性がある。集束に必要な電圧が G2 及び G5 の場合で実際よりも計算の方が大きかったことから、実際のイオンビームは 120 eV 以下のエネルギーまで減速されていると予想される。

5.6. イオンビーム透過効率の最大化

5.6.1. イオンビーム径の最適化

ガイド電極及び高周波四重極の最適化により、120 eV まで減速したイオンビームの透過効率は 3.5 %まで回復した。ただし、直径 4 mm のイオンビームを入射した場合、Fig. 5-25 のようにアパーチャー(Ap1)でビームの損失がある可能性が SIMION の計算により示唆された。初期のビーム径を直径 3 mm とすると、Ap1 でのビームの損失が小さくなると予想されるため、5.3 節で最適化したスリットをさらに挿入した。

スリットを挿入した時の FC3 の電流値の変化から、-X 方向を X = -2 mm、+X 方向を X = 1 mm、-Y 方向を Y = -3.5 mm まで挿入し、スリットにおけるビーム径を約 3 mmΦ まで絞ると、FC2 で 103.4 nA であった電流値は 39.5 nA まで減少した。FC3 の電流値については 4.5 nA から 3.44 nA に減少した。

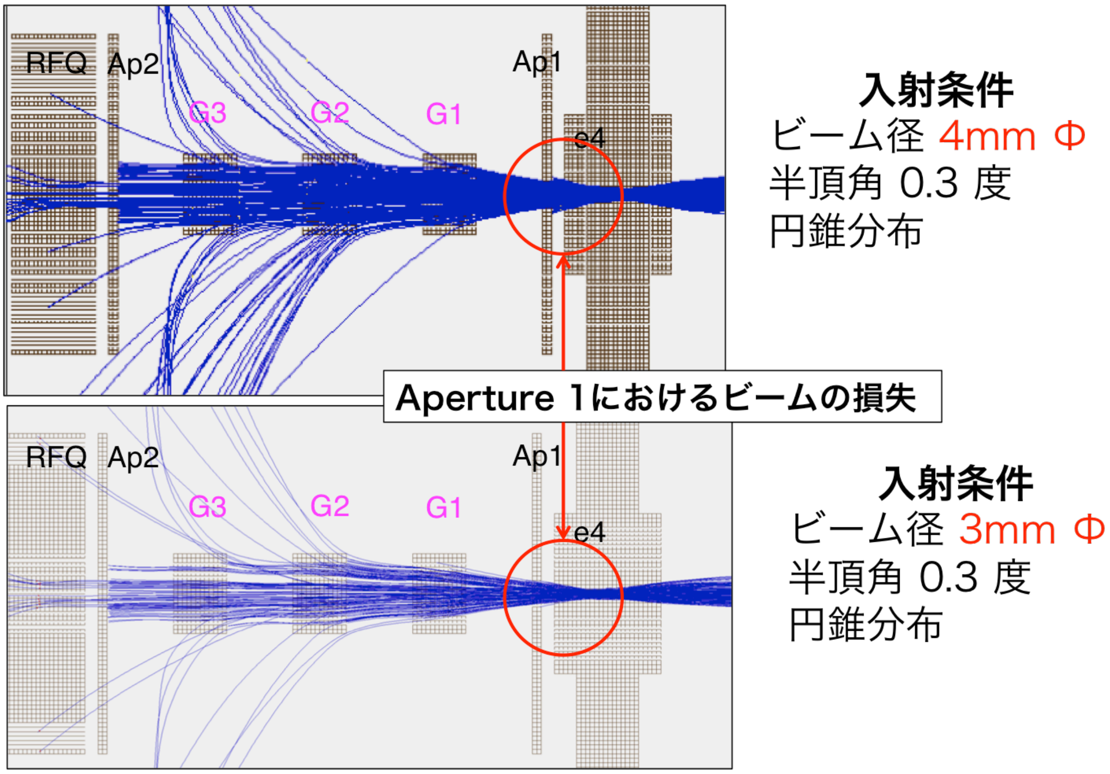


Figure 5-25 イオンビーム径の最適化

5.6.2. イオンビームの焦点の最適化

5.3.1 節で述べた通り、テストベンチにおけるイオンビームの焦点はイオン源アインツェルレンズと電磁石によって決定される。イオン源アインツェルレンズは電圧を加えない場合、エクストラクターとの電位差は EXT の値と等しく、集束効果が最大となっている。アンツェルレンズに加える電圧(FOC)を増加させると、エクストラクターとの電位差が小さくなり、レンズによる集束効果が減少し、イオンビームの焦点をビームライン後方まで伸ばすことが可能であると考えられる(Fig. 5-26)。

そこで､FOC として使用する電源を発生電圧が最大 5 kV のものから最大 15 kV のものに変更し、アインツェルレンズとエクストラクターの電圧差を小さくして、イオンビームの焦点を後方まで伸ばすことを試みた。

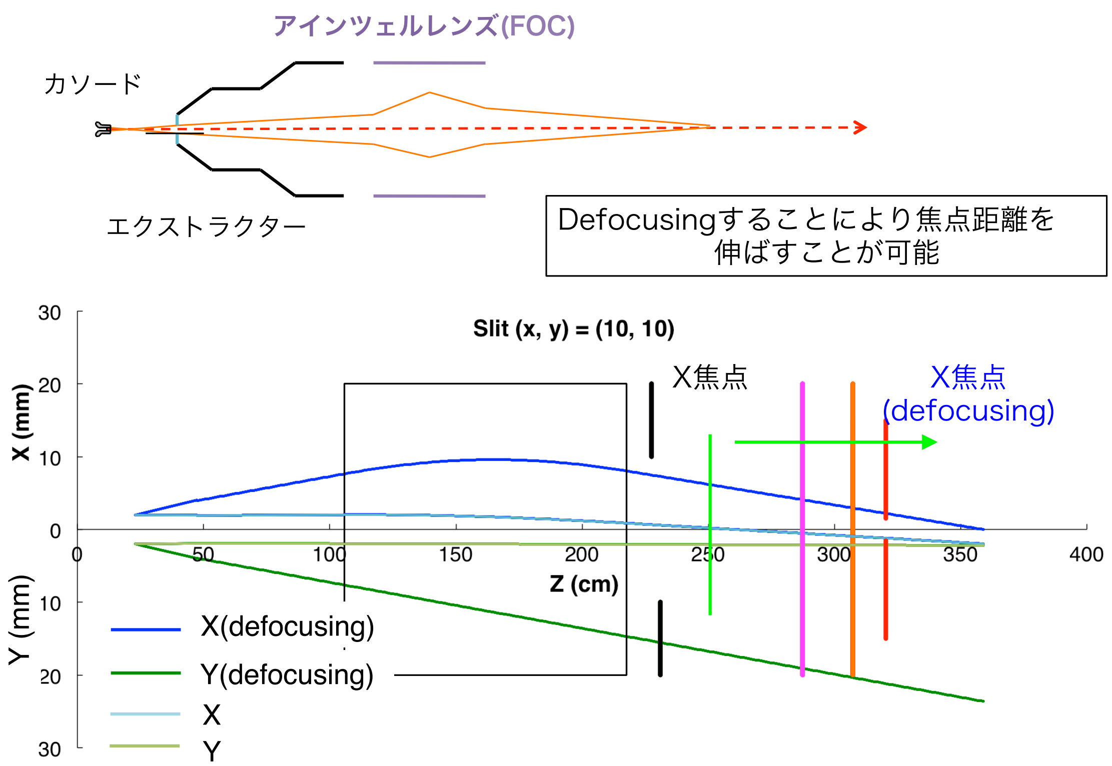


Figure 5-26 イオン源アインツェルレンズによる **defocusing**

Table 5-5 と Fig. 5-27、5-28 にアインツェルレンズの電圧(FOC)を変化させた時の FC2 及び FC3 の電流値の変化を示す。実験中の EXT の出力電圧は 12 kV であり、FOC の電圧を増加させ、EXT との差が小さくなるほど FC3 の電流値が大きくなることが確認された。FC2 の電流値は FOC を増加させると小さくなり、結果として、FOC = 8 kV の時に FC2: 38.1 nA、FC3: 6.7 nA となり、透過効率は 17.6 % まで増加した。

5.88 kV における FC3 の電流値はガイド電極や高周波四重極、アインツェルレンズの最適化の最適化を行う前は 0.01 pA であった。この時 FC2 の電流値は 517 nA であったため、透過効率を計算すると 0.002 %となる。ここからスリット及びビームの集束系を最適化することで、24 keV から 120 eV までイオンを減速した際にも最大 17.6 %の透過効率を実現した。イオンビームの集束に関しては SIMION による計算でも確認されており、高周波四重極の前後にレンズ機構を導入することにより、イオンビームの透過効率を回復する事が実験的にも確かめられた。

Table 5-5 FOC を変化させた時の電流値の変化

FOC [kV]	FC2 [nA]	FC3 [nA]	Transmission (FC3/FC3) [%]
3.8	40.7	3.89	9.6%
4	41.7	4.71	11.3%
5	40.5	6.1	15.1%
6	38.7	6.4	16.5%
7	38.4	6.6	17.2%
8	**38.1**	**6.7**	**17.6%**
9	**37.5**	**6.6**	**17.6%**
10	37.1	6.3	17.0%
11	36.4	6.1	16.8%
12	34.3	5.6	16.3%
13	34.1	5.4	15.8%
14	34.2	5.3	15.5%
15	34.7	5.3	15.3%
3.8	40.7	3.89	9.6%

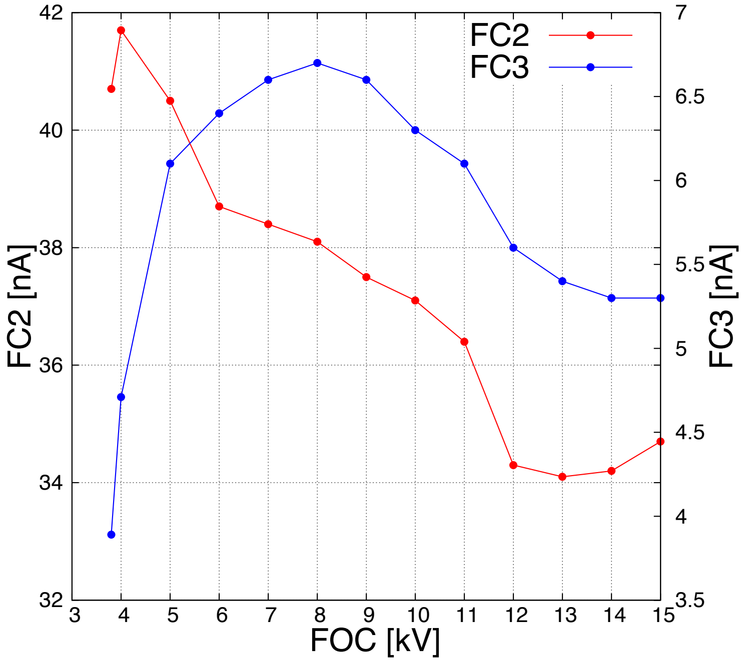


Figure 5-27　イオン源アインツェルレンズの最適化

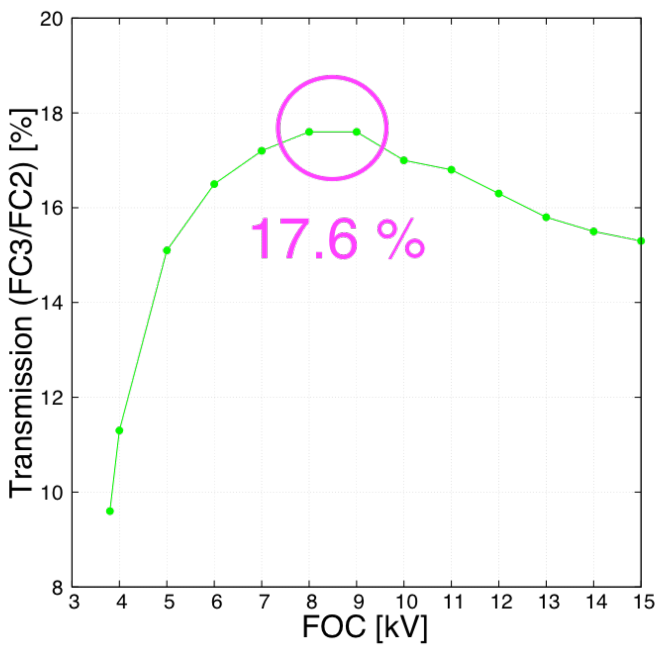


Figure 5-28　イオンビーム透過効率の最大化

5.7. 第 5 章のまとめ

第 5 章では製作した負イオン減速チャンバーの透過効率と高周波四重極の前後に導入したレンズ構造の効果を検証するために、第 4 章で構築したテストベンチビームラインによる実験を行った。

イオンビームを減速し、高周波四重極に導入するイオンの速度を落としていくと、透過効率が次第に減少するものの、単調に減少するのではなく複数のピークが認められた。この現象は減速にともなうビーム節の変化や、イオンのエネルギーによる高周波四重極の挙動及び四重極出口のビームの状態に依存する加速部のビームの挙動と電極構造のジオメトリの影響により生じることがSIMION8.1 によるシミュレーションにより明らかになった。

実験では 24 keV から 120 eV まで減速したイオンビームに関して、透過効率を 0.002 %から 17.6 %まで増加させることに成功した。これにより、減速した状態においても、導入したレンズ構造とスリット、イオン源アインツェルレンズの最適化によりビームの透過効率が回復することが実験的に確かめられた。以上から、第 3 章で行った負イオン減速チャンバーの設計の妥当性が実験的にも確認された。

今後の展開では、まずガスを導入した場合のイオンビームの透過効率の変化を調べる必要がある。高周波四重極内のガス圧を変化させることによる透過効率の変化やガス分子との衝突による負イオンの中性化の条件について、透過効率の計測に基づき調査する。さらに、その状態でレーザーを入射し、^{36}Cl の同重体である ^{36}S について、まずは ^{32}S のビームと相互作用させ、レーザーによる抑制率を計測し、イオンのチャンバー内の透過効率について見積もることを目標とする。Cl と S の組み合わせでレーザー光脱離法を検証後、その他の適応核種や分子イオンに関するレーザー光脱離法にも取り組む。

6. 結論

本研究では、福島第一原子力発電所周辺土壌中の ^{36}Cl の測定と、加速器質量分析におけるレーザー光脱離法の実装のために、負イオンの減速チャンバーを製作した。

福島第一原子力発電所周辺土壌の測定では、16 試料のうち 10 試料から有意な ^{36}Cl の値が得られ、塩素同位体比($^{36}Cl/Cl$ 比)は$(1.05 \pm 0.60) \times 10^{-12}$から$(2.63 \pm 0.54) \times 10^{-11}$ となった。事故前の福島第一原子力発電所周囲の土壌中の $^{36}Cl/Cl$ 比は 4.6×10^{-13} であり、事故前のバックグラウンドよりも高い $^{36}Cl/Cl$ 比が観測された。原子力発電所からの距離と得られた $^{36}Cl/Cl$ 比を比較すると、原発から 20km 付近の 1 点を除き、原子力発電所の近傍で極めて高い $^{36}Cl/Cl$ 比が観測された。同一土壌中の ^{36}Cl と ^{129}I も、原子力発電所近傍では正の相関を示し、^{36}Cl の沈着量が高かった地点では ^{129}I の沈着量も同様に高かった。これは、ヨウ素と塩素はともにハロゲンであり、揮発性も高いため炉内から放出された後、環境中で近い挙動を示すためであると考えられる。さらに、核分裂起源である ^{129}I と放射化起源である ^{36}Cl に相関があったことから、今回検出された ^{36}Cl は事故により放出されたものである可能性が高いと考えられる。

今回観測された ^{36}Cl から、事故により炉内の ^{36}Cl が環境中に漏洩したことが示唆された。しかしながら、処理可能な土壌試料量が限られていたことやガス充填型電磁石を使用したことによる測定効率の低下の影響により、得られた結果には 20 % ~ 60 %の比較的大きな誤差が見られた。^{36}S の干渉が大きく測定できなかった試料もあり、^{36}Cl の測定による事故の影響評価に向けて、少ない試料量で測定効率を低下させず ^{36}Cl の測定を行うことが可能な測定システムの構築が必要である。

そのため、新しい同重体分離手法としてレーザー光脱離法の開発に取り組んだ。レーザー光脱離法において、同重体抑制効果を高めるためにはイオンを減速し、レーザーとの相互作用時間を増加させることが重要であり、負イオン減速チャンバーを設計・製作した。負イオン減速チャンバーはイオンを減速する減速部、減速したイオンをトラップする四重極部、減速したイオンをもとのエネルギーまで加速する加速部で構成される。四重極部内には電場による減速だ

けでなく、さらに減速させるために He ガスを導入し、ガスを封入するために四重極の入口と出口にアパーチャーを設置した。アパーチャーをイオンビームが損失なく通過できるように、ビームの集束を調整可能なガイド電極によるレンズ構造を四重極の前後に導入した。

SIMION8.1 による計算の結果、6 Pa の He を用いればイオンのチャンバー内の滞留時間を 666 μs まで増加させることができ、^{36}S イオンを 99.3 %まで抑制することができると考えられる。イオンの透過率についても 80 %以上となり、透過率を確保しつつ十分に同重体を分離することが可能であると予測される。

次に、製作した減速チャンバーの性能の評価と設計の妥当性を検証するため、減速チャンバーを組み込んだテストベンチビームラインを構築した。テストベンチビームラインは負イオン源、電磁石、減速チャンバー、静電偏向器及びその他検出機器類から構成される。この際、イオン源から引き出されたイオンビームを効果的に減速できるように、減速チャンバーの電位構成を設計した。

実験では減速チャンバー前後に設置されたファラデーカップによりイオンビームを電流値として観測し、減速チャンバーの透過効率を評価した。^{35}Cl の負イオンビームを使用し、エネルギーは 24 keV とした。

減速チャンバー内の高周波四重極電極に導入するイオンビームの速度を減速していくと、透過効率は次第に減少するものの、単調ではなく複数のピークが観測された。この現象は、減速にともなうビームの集束位置の変化と電極構造のジオメトリの影響により生じることがシミュレーションにより明らかになった。さらに、減速した状態でも独自に導入したガイド電極によりアンンツェルレンズを構成することにより、ビームの集束を調整し、ビームの透過効率が回復することが実験的にも確かめられた。最終的には 24 keV から 120 eV まで減速したイオンビームの透過効率を 17.6 %まで増加させることに成功した。以上により、減速チャンバーの設計の妥当性を確認した。

今後の展開では、まずガスを導入した場合のイオンビームの透過効率の変化を調べる必要がある。高周波四重極内のガス圧を変化させることによる透過効率の変化やガス分子との衝突による負イオンの中性化の条件について、透過効率の計測に基づき調査する。さらに、その状態でレーザーを入射し、^{36}Cl の同重体である ^{36}S について、まずは ^{32}S のビームと相互作用させ、レーザーによる抑

制率を計測し、イオンのチャンバー内の透過効率について見積もることを目標とする。Cl と S の組み合わせでレーザー光脱離法を検証後、その他の適応核種や分子イオンに関するレーザー光脱離法にも取り組む。

福島第一原子力発電所事故により環境中に放出された難測定核種は、本研究を含めて、これまで ^{129}I や ^{36}Cl についての報告が行われてきた。しかしながら、放出された核種には、既存の測定手法では測定が困難であるか、測定手法が確立していないものも多数存在し、事故事象の解明や環境への影響評価のために今後も継続した調査と測定手法の検討が必要である。これらの知見は福島第一原子力発電所の廃炉作業においても非常に重要になると考えられる他、長半減期核種である性質を利用したトレーサー研究などを通して、地球化学や環境化学の領域において研究を大きく進める可能性がある。本研究で得られた知見が加速器質量分析の応用範囲を拡大し、加速器質量分析が福島第一原子力発電所事故の収束を含む様々な学問領域の進展の一助になることが期待される。

References

[1] 松崎浩之、加速器質量分析の原理、真空、Vol. 50, No. 7, (2007) pp. 467-474.

[2] W. Kutschera, Progress in isotope analysis at ultra-trace level by AMS, *Int. J. Mass Spectrom.* 242, pp.145-160 (2005).

[3] Y. Miyake et al., Isotopic ratio of radioactive iodine (^{129}I/^{131}I) released from Fukushima Daiichi NPP accident, Geochemical Journal Vol.46 (2012) pp.327-333.

[4] Y. Miyake et al., Measurement of long-lived radionuclides in surface soil around F1NPP accident site by Accelerator Mass Spectrometry, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 361 (2015) pp.627-631.

[5] Y. Muramatsu et al., Analysis of ^{129}I in the soils of Fukushima Prefecture: preliminary reconstruction of ^{131}I deposition related to the accident at Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP), *J. Environ. Radioact.* Vol. 139 (2015) pp. 344-350.

[6] 文部科学省, 文部科学省による放射線量分布マップ(ヨウ素 131 の土壌濃度マップ)の作成について, 原子力規制委員会ホームページ, http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/6000/5047/view.html, 平成 23 年 9 月.

[7] 日本原子力研究開発機構, 福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の分布状況等に関する調査, 4. 土壌濃度マップの精緻化に向けた調査, http://fukushima.jaea.go.jp/initiatives/cat03/pdf05/04-1.pdf.

[8] 東京電力株式会社, 瓦礫等および水処理二次廃棄物の分析状況, 原子力規制委員会ホームページ https://www.nsr.go.jp/data/000132078.pdf, 2015 年 12 月.

[9] C. Tnuiz et al., Accelerator Mass Spectrometry (1998) CRC Press.

[10] H.-A. Synal et al., ^{36}Cl measurements at the Zurich AMS facility, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 92 (1994) pp.79-84.

[11] I. S. Dmitriev and V. S. Nikolaev, Semi-empirical method for the calculation of the equilibrium distribution of charges in a fast-ion beam, *J. Exptl. Theoret. Phys*. 47 (1964) pp.615-623.

[12] R. O. Sayer, Semi-empirical formulas for heavy-ion stripping data, *Revue de Physique Appliquee* 12 (10) (1977) pp.1543-1546.

[13] 三宅泰斗, 東京大学大学院修士課程　工学系研究科原子力国際専攻修士論文　加速器質量分析による福島第一原子力発電所事故起源のヨウ素 129 と塩素 36 の測定 2014 年 2 月.
[14] S. Hatori et al., Gas-filled magnet at MALT – Measurement of ^{36}Cl, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 172 (2000) pp.211-217.
[15] K. Shima et al., Equilibrium charge fractions of ions of Z = 4-92 emerging from a carbon foil, *Atomic data and nuclear data tables* 51 (1992) pp.173-241.
[16] M.G. Klein et al., Performance of the HVE 5 MV AMS system at CEREGE using an absorber foil for isobar suppression, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 266 (2008) pp.1828-1832.
[17] C. Maden et al., SUERC AMS ion detection, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 259 (2007) pp.131-139.
[18] K. M. Wilcken et al., Improved ^{36}Cl AMS at 5 MV, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 268 (2010) pp.748-751.
[19] T. Orlowski et al., Comparison of detector systems for the separation of ^{36}Cl and ^{36}S with a 3-MV tandem, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 268 (2010) pp.847-850.
[20] K. Sasa et al., The new 6 MV multi-nuclide AMS facility at the University of Tsukuba, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 361 (2015) pp.124-128.
[21] O. Forstner et al., The ILIAS project for selective isobar suppression by laser photodetachment, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 361 (2015) pp.217-221.
[22] D. Berkovits et al., Selective suppression of negative ions by lasers, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. A 281 (1989) pp.663-666.
[23] D. Berkovits et al., Study of laser interaction with negative ions, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 52 (1990) pp.378-383.
[24] Y. Liu et al., Collisional cooling of negative-ion beams, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 187 (2002) pp.117-131.
[25] Y. Liu et al., Isobar suppression by photodetachment in a gas-filled rf quadrupole ion guide, *Applied Physics Letters* 87 (2005) 113504.
[26] Y. Liu et al., A high efficiency RF quadrupole ion beam cooler for negative ions, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 255 (2007) pp.416-422.
[27] Y. Liu et al., Purification of Radioactive Ion Beams by Photodetachment in a RF Quadrupole Ion Beam Cooler, *AIP Conference Proceedings* 1097 (2009) 431.

[28] A. Galindo-Uribarri et al., Selective isobar suppression for accelerator mass spectrometry and radioactive ion-beam science, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 268 (2011) pp.834-838.
[29] Y. Liu et al., Beam purification by photodetachment, *Review of scientific instruments* 83 (2012) 02A711.
[30] A. E. Litherland et al., Isobar separation at very low energy for AMS, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 259 (2007) pp.230-235.
[31] J. Eliades et al., Cl/S isobar separation using an on-line reaction cell for ^{36}Cl measurement, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 268 (2010) pp.839-842.
[32] J. Eliades et al., Isobar Attenuation Using Anion-Gas Reactions for Accelerator Mass Spectrometry and Application to ^{36}Cl, Geostandards and Geoanalytical Research, Vol. 34, No. 2, pp. 107-115.
[33] J. Eliades et al., Negative ion-gas reaction studies using ion guides and accelerator mass spectrometry Ⅱ: S^-, SO^- and Cl^- with NO_2 and N_2O, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 255 (2015) pp.416-422.
[34] J. Eliades et al., Computer simulations for a deceleration and radio frequency quadrupole instruments for acclerator ion beams, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 361 (2015) pp.311-316.
[35] M. Suter, Accelerator mass spectrometry: state of the art in 1990, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res*. B 52, 211-223 (1990).
[36] L. A. Chant et al., ^{129}I and ^{36}Cl concentration in Lichens collected in 1990 from three regions around Chernobyl, *Appl. Radiat. Isot*. Vol.47, No.9/10 (1996) pp. 933-937.
[37] 原子力安全・保安院放射性廃棄物規制課, 試料 3-1 コメントに対する回答 −Cl-36 分析結果関連−, http://www.nisa.meti.go.jp/shingikai/800/24/002/2-3-1.pdf (not available)
[38] 日本原燃株式会社, 日本原燃(株)六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センターにおける低レベル放射性廃棄物の線量評価と今後の対応について, http://www.jnfl.co.jp/press/pressj2011/110831besshi.pdf, 平成 23 年 8 月.
[39] K. Tanaka et al., Radiochemical analysis of rubbles and trees collected from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, *J. Nucl. Sci. Technol.* 51 (2014) pp.1032-1043.

[40] T. Fujiwara et al., Isotopic ratio and vertical distribution of radionuclides in soil affected by the accident of Fukushima Daiichi nuclear power plant, *J. Environ. Radioact*. 113 (2012) pp.37-44.
[41] H. Matsuzaki et al., The status of the AMS system at MALT in its 20th year, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 361 (2015) pp.63-68.
[42] P. Sharma et al., Development of ^{36}Cl standards for AMS, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 52 (1990) pp.410-415.
[43] R. Seki et al., Isotopic ratios of ^{36}Cl/Cl in Japanese surface soil, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 259 (2007) pp.486-490.
[44] 東京電力、添付資料 2-7 事故時に観測された中性子と燃料溶融の関連について、東京電力プレスリリース 2015 年　福島原子力事故発生後の詳細な進展メカニズムに関する未確認・未明事項の調査・検討結果「第 3 回進捗報告について」(http://www.tepco.co.jp/cc/press/betu15_j/images/150520j0122.pdf)、2015 年 5 月.
[45] E. W. McDaniel, *Collision phenomena in ionized gases*, New York, Wiley (1964).
[46] J. C. Rienstra-Kiracofe et al., Atomic and Molecular Electron Affinities: Photoelectron Experiments and Theoretical Computations, *Chem. Rev.* 102 (2002) pp.231-282.
[47] H. Wallnik, Optics of Charged Particles (1987) ACADEMIC PRESS, INC.
[48] F. Hinterberger, Ion optics with electrostatic lenses, *CAS - CERN Accelerator School and KVI: Specialized CAS Course on Small Accelerators, Zeegse, The Netherlands*, 24 May - 2 Jun 2005, pp.27-44.
[49] 裏克己、電子・イオンビーム光学 (1994) 共立出版株式会社.
[50] 石川順三、荷電粒子ビーム工学 (2001) コロナ社.
[51] D. J. Douglas, Linear quadrupoles in mass spectrometry, *Mass Spectrometry Reviews* 28 (2009) pp.937-960.
[52] 石川順三、イオン源工学 (1986) アイオニクス株式会社.
[53] D. J. Douglas and J. B. French, Collisional Focusing Effects in Radio Frequency Quadrupoles, *J. Am. Soc. Mass Spectrom.* 3 (1992) pp.398-408.
[54] J. A. Eliades, A Radio Frequency Quadrupole Instrument for use with Accelerator Mass Spectrometry: Application to Low Kinetic Energy Reactive Isobar Suppression and Gas-Phase Anion Reaction Studies, Ph. D thesis, University of Toronto 2012.
[55] R. L. Champion and L. D. Doverspike, Collisional detachment in collisions of Cl^- with the rare gases, *Physical review* A Vol.13, No.2 (1978) pp.609-616.

[56] B. T. Smith et al., Total electron-detachment cross sections for collisions of negative halogen ions and rare gases for energies around threshold, *Physical review* A Vol.18, No.3 (1978) pp.945-954.
[57] D. A. Dahl, SIMION for the personal computer in reflection, Int. J. Mass Spectrom. 200 (2000) 3.
[58] P. H. Dawson, Quadrupole Mass Spectrometry and Its Applications (1997) Springer.
[59] D. R. Denison, Operating Parameters of a Quadrupole in a Grounded Cylindrical Housing, Journal of Vacuum Science and Technology, Vol. 8, 1 (1971) pp. 266.
[60] J. R. Gibson and S. Taylor, Numerical investigation of the effects of electrode size on the behavior of quadrupole mass filters, Rapid Commun. Mass Spectrom. 15 (2001) pp.1960-1964.
[61] David Manura, Additional Notes on the SIMION HS1 Collision Model, Scientific Instrument Services, Inc., 2007-02.
[62] A. Bondi, van der Waals Volumes and Radii, *J. Phys. Chem.* 68 (1964) pp. 441-451.
[63] J. Eliades et al., Computer simulations for a deceleration and radio frequency quadrupole instruments for accelerator ion beams, *Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res*. B 361 (2015) pp.311-316.
[64] 池田啓典, 四重極イオントラップ用 rf 電源の製作とその評価、東京大学工学部システム創成学科シミュレーション・デザインコース　長谷川研究室　卒業論文, 2010 年 2 月.
[65] 山本英穂、改訂新版定本　トロイダル・コア活用百科　(2006) CQ 出版社
[66] Amidon 社ホームページ http://www.amidoncorp.com/t200-2/.
[67] 堀越源一、真空技術　第 2 版、東京大学出版会、1986 年２月

Appendix

A.1. 気体のコンダクタンスの計算方法

A.1.1. 気体分子の入射頻度

気体のコンダクタンスを計算するためには、気体の質量流量を求める必要がある。そのためにまずは気体分子の単位面積当たりの入射頻度を計算する。入射頻度の導出は[67]に従った。

気体分子がある容器内に存在する時、気体分子は容器の壁に常に衝突している。この時、容器壁の微小な面積 dS に単位時間当たりに入射する気体分子の数を考える。Fig. A-1 のように、dS に立てた法線を z 軸とし、分子同士は衝突を起こさないものとする。速度 v の気体分子が z 軸に対して θ の角度をもつ方向から dt 間に dS に入射する時、これらの分子は dS を底面、vdt を母線とする円柱内に存在する。これを、すべての θ について足し合わせることで、dS に dt 秒間に入射する分子の総数を求めることができる。

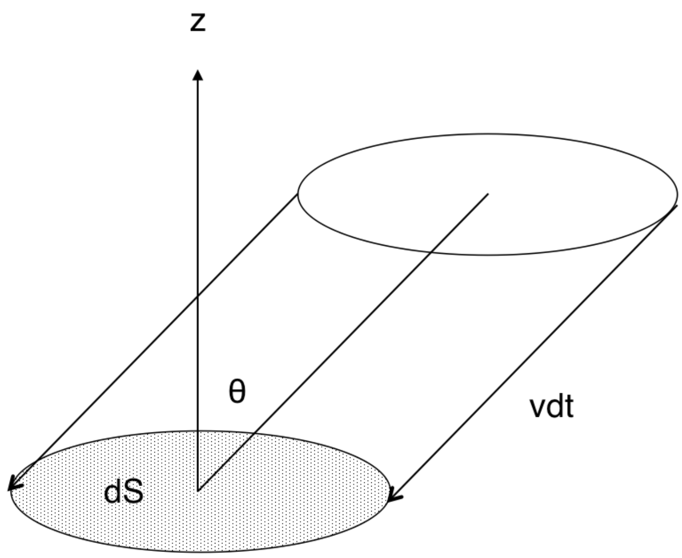


Figure A-1　微小面積 **dS** に入射する気体分子

分子の速度分布を f(v)とすると、立体角 dΩ の方向に速さ v で進む分子の密度 dn は

$$dn = nf(v)dvd\Omega / 4\pi \tag{A-1}$$

で表される。ここで、n は気体分子の密度である。

Figure A-1 に示す円柱の体積は dS・vdtcosθ で表されるから、円柱内に存在する分子の総数 dN は

$$dN = nf(v)dvd\Omega / 4\pi \cdot dS \cdot vdt\cos\theta \tag{A-2}$$

と書くことができる。

立体角の定義より dΩ=2πsinθdθ であるから、式(A-2)は

$$\begin{aligned} dN &= nf(v)dv \cdot \sin\theta d\theta / 2 \cdot dS \cdot vdt\cos\theta \\ &= nvf(v)dv \cdot \sin\theta\cos\theta / 2 \cdot dS \cdot dt \end{aligned} \tag{A-3}$$

と表される。

ここで、f(v)はマクスウェル分布

$$f(v) = 4\pi v^2 \left(\frac{m}{2\pi kT}\right)^{3/2} \exp\left(-\frac{mv^2}{2kT}\right) \tag{A-4}$$

であるから、vf(v)を dv について積分すると

$$\int_0^\infty vf(v)dv = \int_0^\infty v4\pi v^2 \left(\frac{m}{2\pi kT}\right)^{3/2} \exp\left(-\frac{mv^2}{2kT}\right)dv = \sqrt{\frac{8kT}{\pi m}} \tag{A-5}$$

が得られる。ここで、k はボルツマン定数[$m^2kgs^{-2}K^{-1}$]、T は気体の温度[K]、m は気体分子の質量[kg]である。さらに、dθ を 0 から π/2 まで積分すると、

$$\int_0^{\frac{\pi}{2}} \sin\theta\cos\theta d\theta = \frac{1}{2} \tag{A-6}$$

が得られる。以上より、式(A-3)を積分して時間 dt の間に dS に入射する気体分子の総数 N は

$$N = \frac{n}{4}\sqrt{\frac{8kT}{\pi m}} \cdot dS \cdot dt \tag{A-7}$$

となる。したがって、単位時間、単位面積当たりの分子の入射頻度を F とすると、

$$F = \frac{N}{dSdt} = n\sqrt{\frac{kT}{2\pi m}} \tag{A-8}$$

と表すことができる。

A.1.2 オリフィス径とコンダクタンス

Figure A-2 のように、開口部半径 r のオリフィスで隔てられた空間を考える。左側の圧力を P_1、右側の圧力を P_2 とする($P_1 > P_2$)。左側から右側に流れる分子の数は気体分子の面積 A に対する入射頻度に等しいため、体積流量は

$$\frac{FA}{n} = A\sqrt{\frac{kT}{2\pi m}} \tag{A-9}$$

と表される。したがって、左側から右側への質量流量 Q_1 は

$$Q_1 = P_1 A\sqrt{\frac{kT}{2\pi m}} \tag{A-10}$$

と書くことができる。同様に右側から左側への質量流量 Q_2 も

$$Q_2 = P_2 A\sqrt{\frac{kT}{2\pi m}} \tag{A-11}$$

と表される。

したがって、コンダクタンス C は

$$C = \frac{Q_1 - Q_2}{P_1 - P_2} = A\sqrt{\frac{kT}{2\pi m}} \tag{A-12}$$

と得られる。以上から半径 r の開口部を持つオリフィスのコンダクタンスは

$$C = \pi r^2\sqrt{\frac{kT}{2\pi m}} \tag{A-13}$$

と表すことができる。

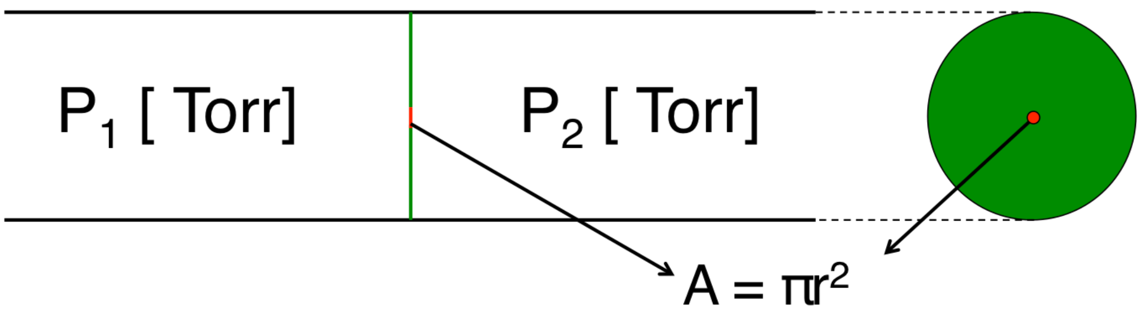


Figure A-2 開口部半径 r のオリフィスで隔てられた空間

A.1.3. コンダクタンスと排気速度

次に Fig. A-3 のように圧力 P_2 の領域に排気速度 S のポンプを接続した時のことを考える。P_2 の領域について、気体の流量の関係からコンダクタンスと排気速度について以下の式が得られる。

$$C(P_1 - P_2) = SP_2 \tag{A-14}$$

以上から、用いる気体の種類とオリフィスの開口部径から式(8-13)でコンダクタンスを計算すれば、式(A-14)により圧力差を実現するために必要なポンプの排気速度を計算することが可能である。

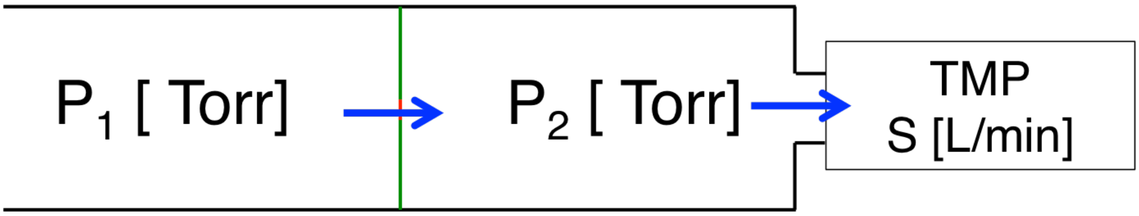


Figure A-3 排気速度 S のポンプを接続した場合

謝辞

本論文の作成にあたり、お世話になった方々に謝辞を述べたいと思います。

指導教員である、東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻教授の松崎浩之先生に厚く御礼申し上げます。松崎先生には工学部、修士課程を含め 6 年にわたり指導していただきました。東京大学での研究生活では、研究はもちろん、普段の生活も含めてあらゆる面で大変お世話になりました。出張でご一緒させていただいたことや、先生のご家族との食事にお誘いいただき、とても嬉しかったです。研究者としての夢をお聞きした時、「ヨウ素動態の解明」とお答えいただき、その時私も夢を語れるような研究をしたいと思ったことを今でもはっきりと覚えています。先生と色々議論しながら実験や論文を作成した時間は私にとってかけがえのない時間でした。この研究室で学ぶことができ、本当に幸運だったと思います。今後ともよろしくお願い申し上げます。

東京大学大学院工学系研究科原子力国際教授の長谷川秀一先生には、博士論文の副査をしていただきました。また、私の博士論文の装置の製作において、多大なご協力をいただきました。いつもお会いする度に温かいお言葉をかけていただき、なかなか研究が進まなかった時にはとても励みになりました。心より感謝申し上げます。

東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻教授の高橋浩之先生には、博士論文の副査をしていただきました。修士課程から高橋研究室の一員としてもお世話になり、研究室会ではいつも的確なコメントをいただき、大変勉強になりました。UC バークレーでのスプリングスクールやスウェーデンのサマースクールを始め、夏の学校や様々な発表の機会をいただき、私としても大きく成長できたと思います。誠にありがとうございました。

東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻教授の上坂充先生には、博士論文の副査をしていただきました。学部の頃からいつも気にかけていただき、お会いする度に温かいお言葉をかけていただきました。心より感謝申し上げます。

筑波大学大学院数理物質系准教授の笹公和先生には、博士論文の副査をしていただきました。学部の頃から実験や学会でご一緒させていただき、特に $^{36}\mathrm{Cl}$ の測定についてはとても勉強させていただきました。また、私が進路で悩んでいる時にもお力添えいただき、誠にありがとうございました。

MALT 技術専門職員の中野忠一郎さん、森田明さん、土屋陽子さん、技術補佐員の山道美和子さんには普段の研究生活で大変お世話になりました。中野さん、森田さんにはイオン源や加速器の装置関連に関して教えていただきました。私が装置を組み上げることができたのも、整備などでご一緒させていただいた経験があってのことだと思います。土屋さんには薬品の管理や発注、実験に関してだけでなく、普段の生活についていつもご支援していただきました。山道さんには化学実験についてアドバイスをいただいた他、BBQ や懇親会などで大変お世話になりました。皆様に心より感謝申し上げます。

松崎研究室特任研究員の楠野葉瑠香さんには、実験から学会、研究室会での議論まで研究関連のことはもちろん、普段の生活においてもご支援いただきました。楠野さんが松崎研に来てくださったことで、研究室の空気が随分明るいものになり、心強く思ったことをよく覚えています。ご結婚をお祝いできたこともとても嬉しく思います。本当にありがとうございました。

MALT 技術補佐員の徳山裕憲さん、川本万里奈さんには普段の研究生活で大変お世話になりました。お二人とは特に年齢が近いこともあり、研究室で気楽に過ごすことができたと思います。学外でも何かとご一緒できて、とても楽しかったです。誠にありがとうございました。

松崎研究室修士課程の中小司和広君、木島渉君とは博士課程の 3 年間同じ研究室で過ごすことができました。私にとっては修士課程に進んだ後輩は 2 人が初めてであり、学会やサンプリング、懇親会などをともにできたことをとても嬉しく思います。先輩らしいことができたかどうか分かりませんが、卒業後も同じ松崎研究室の卒業生として付き合いを続けることができたらと思います。本当にありがとうございました。

高橋研究室の皆様には研究室会や懇親会でいつもお世話になりました。特に島添先生、三好さん、入松川君、吉原さん、小山君にはいつも気軽に声をかけていただき、温かく接していただいたことは、同期や先輩がいなかった私にとってとても嬉しいことでした。心より感謝申し上げます。

筑波大学 AMS グループの皆様には塩素の測定の際いつもご協力いただきました。学会でもいつも温かいお言葉をかけていただき、誠にありがとうございました。

株式会社 JAPAN PJK の小長谷佳史さんにはテストベンチの製作に関して多大なるお力添えをいただきました。イオン源の改造、テストベンチの設置や電源系、冷却系の整備など私一人ではできないことをいつもしていただき、小長谷さんのご協力なしにはテストベンチの製作や本論文の完成もなかったと思います。心より感謝いたします。

Philippine Nuclear Research Institute の Bautista Angel Tugade Ⅶ君とは研究室の同期として、博士課程の 3 年間を過ごし、大変お世話になりました。英語や研究だけでなく、普段の生活でも一緒に過ごせたことは、私にとってかけがえのない思い出です。友人として、研究者として今後も切磋琢磨していきたいと思います。本当にありがとうございました。

本研究の一部は日本学術振興会科学研究費により助成を受けました。特別研究員として生活費に煩わされることなく、研究に専念できたことを深く感謝します。

最後に、私の研究生活を様々な面で支えてくれた友人、知人、そして私の家族に心より感謝申し上げます。

2017 年 2 月