The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	大型二重収束質量分析装置による二重線（12C21H4－12C160），（12C21H4－14N2），（14N2－12C160）および（12C21H4－12C22D2）の質量差測定
Author(s)	仲伏，廣光
Citation	大阪大学，1969，博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/30067
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

【8】

氏名・(本籍)	仲(なか) 伏(ふし) 廣(ひろ) 光(みつ)
学位の種類	理学博士
学位記番号	第 1861 号
学位授与の日付	昭和 44 年 12 月 20 日
学位授与の要件	理学研究科 原子核 宇宙線学 専攻 学位規則第5条第1項該当
学位論文題目	**大型二重収束質量分析装置による二重線($^{12}C_2{}^1H_4$—$^{12}C^{16}O$), ($^{12}C_2{}^1H_4$—$^{14}N_2$), ($^{14}N_2$—$^{12}C^{16}O$) および ($^{12}C_2{}^1H_4$—$^{12}C_2{}^2D_2$) の質量差測定**
論文審査委員	(主査) 教授 緒方 惟一 (副査) 教授 堀江 忠男 教授 杉本 健三 助教授 吉沢 康和 助教授 村岡 光男

論文内容の要旨

10^{-8} 以下の測定精度で原子質量の精密測定を行なうため，系統的誤差の発見とその除去を主要な目的として，($C_2H_4-C^{16}O$), ($C_2H_4-{}^{14}N_2$)および ($^{14}N_2-C^{16}O$) の二重線質量差がピーク・マッチング法によって測定された。又原子質量の二次標準であるHとDとの質量差を求めるため，($C_2H_4-C_2D_2$) の質量差測定が同様に行なわれた。

測定に用いられた装置は1961年に台風による高潮で破壊された緒方—松田型質量分析器と同一の装置形式を持つもので，円筒電場（イオン軌道半径＝1093mm，偏向角＝84°50′）と一様磁場（イオン軌道半径＝1200mm，偏向角＝60°）とから成る二重収束型である。上記の精度での質量差測定を可能にするためには，まず第一に高分解能が長期にわたって維持されると共に，装置各部の動作の安定性あるいは再現性が高い事が要求される。イオン源は熱陰極を有する低アーク放電型のもので，エミッション・レギュレーターの採用および陰極支持方法の改良等によって安定で再現性の良好な動作が得られた。円筒電場および一様磁場の電源回路には電池を用い，これと負荷との間に安定化回路を挿入して，場のドリフトは $1\sim5\times10^{-7}$/min, におさえられた。一方，装置の収束調整段階において，60Hz の弱い交流磁場が装置全体をおおっていて，これによるイオン・ビームの振動は検出スリットの所で装置の分散度に対して約 3×10^{-5} に相当するものである事が判明した。その後，この交流磁場の源の発見とその除去に取り組み，イオン・ビームの振動幅を約 1×10^{-6} に相当する所まで下げることができ，さらに収束調整が続けられ，半波高値で約30万の分解能が定常的に得られるようになった。（主スリット幅＝0.007mm，検出スリット幅＝0.01mm)

ピーク・マッチング法で質量差の測定を行なう場合，円筒電場電圧とイオン加速電圧を同時に切換えるリレー回路が必要であり，そして測定される二重線質量差△Mは円筒電場電圧のスイッ

チング回路（ピーク・マッチング回路と呼ぶ）を構成する抵抗の値と

$$\frac{\Delta M}{M}=\frac{\Delta R}{R} \qquad (1)$$

によって関係づけられるが，系統的誤差を考察あるいは実験的に調査するために，次式に示すように α および β なる補正項が導入された。

$$\frac{\Delta M}{M}=(1+\alpha)\frac{\Delta R}{R}+\beta \qquad (2)$$

ここで α は 10^{-5} 以下であればそして β は 10^{-8} 以下であれば無視してよい。

まず α として予想されるものとしてピーク・マッチング回路における bleeder mismatch, leakage resistance, e.m.f. in R および transient effect と電場電極面に生ずる surface contact potential とが考えられる。前三者はこれらの量の概算より無視できることがわかり，又 transient effect についてはスイッチング・リレー回路にこの影響を避けるような工夫がなされた。そして上記以外の予想することのできないものを含めて surface contact potential に対する補正量を求めるために，二重線 (COH−CO) の質量差が測定され，(COH−CO)＝1.007861±5μ なる結果が得られた。これは1964年のマス・テーブルよりの水素原子の質量 (H＝1.007825μ) と比較され，$\alpha=-3.6\times10^{-5}$ の補正が必要であることがわかった。次に β に関する調査のために3つの反転用スイッチが導入され，これらの操作により測定条件を変えて主に二重線 ($^{14}N_2-CO$) の質量差測定が行なわれた。第一のスイッチによってピーク・マッチング回路に挿入されているリレーの接点部分に生ずる contact resistance あるいは contact potential による誤差のチェックが可能であるが，初期のチェックにおいて β に換算して約 8×10^{-7} というような大きな系統的不一致が検出された。これは上記の要因による不一致とするには余りに大きなものであった。後に，これはリレーの接点部分ではなくて，リレーのコイルの作る磁場によるものであることがわかり，ピーク・マッチング回路をイオン軌道から遠ざけ，さらに磁気遮蔽を完全にして，この磁場による影響は消された。現在，上記の contact potential によるものと考えられる約1×10^{-8} の不一致が検出されている。第二のスイッチによって，可変抵抗 ΔR 内に存在する thermal あるいは contact potential による誤差のチェックが可能であり，この実験結果は β に換算して約 2×10^{-8} の不一致を示した。第三のスイッチによってイオン掃引場の反転を行なうことができるが，これによるチェックでは不一致は 10^{-8} 以下であることが示された。しかしながら，peak asymmetry あるいは personal judgement に起因する誤差は別の測定条件下では無視できない大きさになることが充分予想されるので，上記の第三のスイッチによる結果をもって，これによる系統的不一致は無視できると結論することは早計であろう。

上記のように系統的誤差の実験的検討がなされたあと，(C_2H_4-CO)，($C_2H_4-N_2$)，(N_2-CO) そし ($C_2H_4-C_2D_2$) ての二重線質量差のいわゆる "run" 測定が行なわれた。1つの run は β のチェックに用いられた3つの反転用スイッチを含む4つの反転操作より得られる16個の測定から成っている。上記二重線のうち，前三者は1日にそれぞれ1つの run 測定が行なわれ，それぞれについて 7runs が，又 ($C_2H_2-C_2D_2$) 二重線については 5runs が行なわれた。(C_2H_4-CO)，($C_2H_4-N_2$)，そして (N_2-CO) の質量差測定値より triplet closed cycle error は

$\delta=0.26\pm0.31\mu u$ と計算された。この closure error は最少二乗法を用いて処理されるのが通常であるが，今回のデータの内容を検討した処，このような処理の仕方は適当でなく，この誤差は β に含まれるものに起因しているのではないかと結論された。この場合，closure error δ と β は $\delta=-M\cdot\beta$ なる関係にある。β に関して予想される誤差は run 測定の中へ有効と思われる反転操作を導入してそれらの影響は相殺されている筈であるが，上記の closure error に関する考察は予期しない誤差が存在する可能性を示しており，このような誤差の究明には一層の測定精度の向上が必要である。

最後に(2)式に従って各質量差の測定値に α と β の補正が加えられ，得られた効果が最近の関連する結果と共に下表に示されている。

unit : μu

reference		C_2H_2-CO	$C_2H_2-N_2$	N_2-CO	H_2-D
Ogata and Matsumoto	(1)	36,383.2±1.1	25,154.9±2.3	11,227.4±1.1	1,553.1±10.3
Mattauch, Thiele and Wapstra	(2)	36.385.72±.20	25,151.96±.26	11,233.76±.24	1,548.16±.14
Moreland and Bainbridge	(3)				1,547.77±.28
Stevens and Moreland	(4)				1,548.07±.08
Johnson et al.	(5)				1,548.22±.05
present		36,386.01±.24	25,152.44−.19	11,233.57±.20	1,548.08±.08

(1) Pro. Int. Conf. "Nuclidic Masses", p. 415, Vienna (1963)
(2) Nucl. Phys. **67**, 1 (1965)
(3) Pro. Int. Conf. "Nuclidic Masses", p. 423, Vienna (1963)
(4) Pro. Int. Conf. "Atomic Masses", p. 673, Winnipeg (1967)
(5) Pro. Int. Conf. "Atomic Masses", p. 793, Winnipeg (1967)

論文の審査結果の要旨

質量分析法により決定される原子質量値は数年来その桁数10を数え，又その測定値に付加されている誤差も質量値の 10^{-8} に達するものが発表されるようになった。しかし，その絶体値に対する信頼度にはなお多くの疑問が未解決で残されている。

一般に精密測定において最も慎重に検討さるべきものは，それぞれの測定における系統的誤差であることは言うまでもないが原子質量測定においてはこの点の考慮とその実験的検討が現在まで殆んどなされていない。これが原子質量測定の際の最重要準標準である ^{1}H, ^{2}D, $^{35,37}Cl$ の測定値に付記誤差の数倍する不一致の見られる主原因と考えられる。

仲伏君はこの点に特に注目，質量分析法による原子質量測定の際の系統的誤差の実験的研究を主目的として本研究を行なった。

使用装置は理学部の豊中移点後に建設に着手された第2代大型二重収斂質量分析装置で，仲伏君はマス・ピーク走査による電気的方法でその最終結像調整を完成，主スリット・コレクター・スリット巾約 1/100mm の条件下で半巾分解能約 300,000 を安定に得ることに成功，本研究を

通じこの分解能を維持することが出来た。二重線質量差測定にはNier方式による重畳法を使用，重畳決定はマス・ピークの直接重畳を直視で読出す方法を採用した。この方式においては重畳を行なう為に使用する精密抵抗の高精度測定と，その安定性が本質的となる。本研究においては抵抗値は 10^{-5} まで測定され，その程度の安定性を得るため測定用精密抵抗系は $(30\pm0.1)^{\circ}C$ の恒温槽内に格納されている。又シンクロスコープ上でのマス・ピーク直視のための走査は磁場方式を使用しているが重畳法はその走査場の零点で行ないそれに起因する誤差を除いている。この走査周期としては30Hzを用いているが，重畳を行なうための電場電圧切換へ周期は 25Hz として， 切換え後 40msec はシンクロスコープをショートし， 過渡現象より来る誤差を除去した。さらに切換え用リレー励起電流からの漏洩磁場が大きな誤差原因となることを発見，その影響を最小限にとどめる方策を講じている。

これらの改良により，直接測定操作より来る系統的誤差の主要部の克服に成功したが，なお系統的誤差の原因となる多くの要素が考えられる。すなわち分析装置固有の誤差，測定系における接触電位差，アースへの漏洩電流による誤差，分析場電極等への電荷蓄積，其他原因を予測し得ない誤差等が考えられるが仲伏君はそれらの誤差の種類と結果に対する寄与度を解析し，その補正を行なう実験的方法を研究，補正項を対象二重線比質量差に比例する部分とそれに無関係な部分とに分離し，それぞれの補正値の決定を (C_2H_4-CO)，$(C_2H_4-{}^{14}N_2)$，$({}^{14}N_2-CO)$ の閉鎖環をなす二重線群の質量差測定によって行なった。

上記の二つの補正値の前者の決定には $(COH-CO)$ 線対とHの原子質量値を使用， 後者の決定は上記の閉鎖環二重線群の二重線質量差間の一種の残差から求め，これらの補正値を使用して上記三つの二重線質量差の直接測定値も補正，それぞれの二重線質量差を決定した。又 (H_2-D) 質量差を決定するため $(C_2H_4-C_2D_2)$ 二重線の質量差を測定，上で得た補正値がこの場合にも適用可能として (H_2-D) 質量差を決定している。

以上仲伏君の研究は精密測定の範鋳にある原子質量決定にあたって，従来殆んど系統的な詳細な実験的検討を加えられていなかった系統的誤差の究明・解析をはじめて行ない得たものである。補正項を必要とする誤差原因の解明については，現状においては直接の質量差読出し精度がなお不充分であるため今後この点に対する一枡程度の改良を要することも明らかにした。

仲伏君の本研究は系統的誤差という精密測定の領域において最重要な要素を実験的に詳細に究明したもので今後の原子質量精密測定の分野に多大な寄与をしたものとして理学博士の学位論文として十分の価値あるものといえる。