

2010年4月15日

理化学研究所仁科加速器研究センター

RIBF 施設利用報告書

(文部科学省先端研究施設共用促進事業)

1. 利用課題番号：IC10-02 (トライアルユース)
2. 利用課題名：パラジウム箔をベースとした多層膜中のプラセオジムの存在判定
3. 利用者名、所属機関・部署、所在地：

岡野 達雄	岩村 康弘
国立大学法人東京大学	三菱重工業株式会社
生産技術研究所	先進技術研究センター
東京都目黒区駒場 4-6-1	神奈川県横浜市金沢区幸浦 1-8-1
5. 利用実施期間：2010年2月11日 15日(内2日間は加速器調整であり実実験時間は約2日間である。)
6. 利用施設名：重イオン線型加速器(RILAC)およびリニアック小照射室 e6 コース
7. 利用したビーム  
種類：Os-188、O-16  
エネルギー：0.8MeV/u  
強度：0.1pnA 以下
8. 理研側支援者 仁科加速器研究センター 高橋和也、木寺正憲

## 9 . 利用目的・内容

独立行政法人理化学研究所仁科加速器研究センターの重イオン線形加速器と ECR イオン源を用いて行われる、「極微量多元素同時加速器質量分析技術 ( ECRIS-AMS ) 」 ( 図 1 ) を用いて、パラジウムと酸化カルシウムをベースとした多層膜中のプラセオジムの存在判定実験を行う。 ECRIS-AMS は試料の前処理なしに極微量元素の測定が行えることから、今回この利点を利用し、スパッタリング法にて試料中のプラセオジムの存在判定実験を行う。

三菱重工による D2 実験にて多層膜中にプラセオジウムが微量ながら存在していることがこれまでの幾つかの実験で知られている。この含有において、プラセオジウムが D2 実験により新たに出現したのか、または、もともとの試料中にある程度の量存在し、D2 実験によって凝縮 ( 集 ) されたのか等を判別するため、D2 実験を行う前の試料中のプラセオジウム存在判定 ( できれば限界量の算出 ) を ECRIS-AMS による極微量元素分析法により調査する。独立行政法人理化学研究所の所有する加速器施設にて行われている ECRIS-AMS 法は試料の前処理なしに試料中 ( 深層にあるものまで ) の極微量の元素分析が行える世界で唯一の方法であり、他の分析方法においてはこれまで問題であった試料の前処理中の汚染等が本手法ではないことから、本手法を用いることは大変意義深い実験であると考えられる。

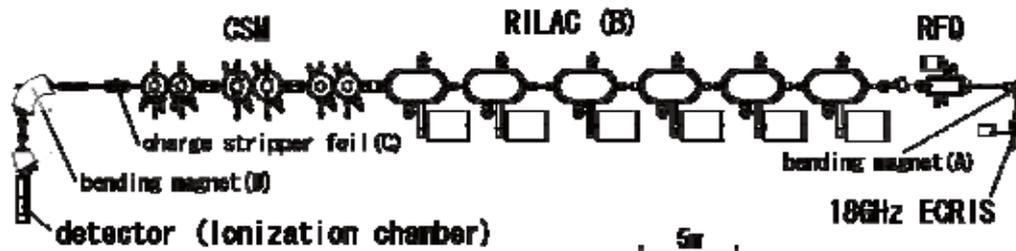


図 1 . ECRIS-AMS の全景図

### 実験手順の概要

1.  $^{16}\text{O}^{2+}$  ( $M/q = 8$ ) を用いて加速器調整、スポット作りを行う
2.  $^{16}\text{O}^{2+}$  のデータから比例計算で加速器のパラメータを  $M/q = 7.83\dots$  に合わせる
3. MIVOC 試料から取り出した  $^{188}\text{Os}^{24+}$  ビームによるスポット確認
4. C-foil をセット後、 $^{188}\text{Os}^{36+}$  ( $M/q = 5.222$  相当) に合わせスポット調整
5. 一度、バックグラウンド測定
6. 既知量プラセオジウムをインプラントした試料に電圧をかけ、スパッタ法による試料のイオン化でプラセオジウム ( $^{141}\text{Pr}^{27+}$ ) の確認と測定 ( ここまで 1 日強 )
7. 一度イオン源を大気にして内部の清掃、および焼き出しを行う。イオン源以外の加速器等は維持 ( 清掃および焼き出しで 2 日間 )
8. 焼き出し後、バックグラウンド測定と本試料のスパッタ法による測定 ( 1 日弱 )

## 10．成果の概要

実験は手順通り最後まで行われた。 $^{188}\text{Os}$  の MIVOC 試料がイオンビームの輸送及び調整を行うには量が少なく、多少時間が必要であった。実験手順 8 におけるバックグラウンド測定での E- E スペクトルを図 2 に示す。

このバックグラウンド測定において、ECR イオン源内の部材中に極わずかに含まれていると考えられるランタノイド系列の元素が測定された。プラセオジウムも含まれているため、このバックグラウンドの量が今測定系における測定限界値を決定することになる。

地球上でランタノイド系列が多く含まれている物質はシリケート岩石である。実験室系でダスト（テフロンビーカーを放置しその表面に静電気により付着したもの）中の Pr の含有量を米田氏らが測定<sup>[1]</sup>したところ約 2 ppm という結果を得ている。また、珪酸塩系（橄欖石等）の石鉄隕石（石質隕石と鉄隕石の中間的性質の隕石）中の Pr 含有量は複数種の実験<sup>[2]</sup>から 0.022 ~ 0.37（平均 0.135）ppm であるという結果を得ている。また、鉄隕石（おそらく、銅、アルミなどの工業製品金属中の Pr 含有量の目安となる鉱物）中の Pr の含有量<sup>[3]</sup>が  $1.9 \times 10^{-4}$  ppm であり、また、この値は鉄とシリコンの広域平衡から計算される分配係数から予想される値（ $10^{-7}$  オーダー）から 3 桁多いとされ、わずかなシリケートが混入したのではという考察もなされている。

これらランタノイド系列に関する数少ない研究報告と、今回の実験結果を受けて、今回のイオン源内系におけるナチュラルバックグラウンドの最大限界値は「 $10^{-3}$  ppm」であるという見積りを暫定的に算出した。

チタニウムのバックグラウンドはプラズマチャンバー素材（シミーズと呼ばれる）に用いている純アルミニウムの添加元素である Ti（0.03%）が主な根源とかがえられ、また、プラズマ状態がおおよそ一定ならば、この量もおおよそ一定で生成されていると考えられるため今回では Ti のカウントを規格化に用いた。個々の実験において測定された Ti のカウントにより規格化した値より、試料中のプラセオジウム存在量の暫定的な最大存在量を算出した。さらなる詳細な結果は現在進めている解析を終えた後となる。

今回の実験にて、精錬された金属中には極々微量しか存在しないランタノイド系列の元素を超高感度で測定された結果は、本装置 ECRIS-MS の世界に比類のない性能が発揮されたものであり、また、この結果から本研究施設を用いた ECRIS-AMS

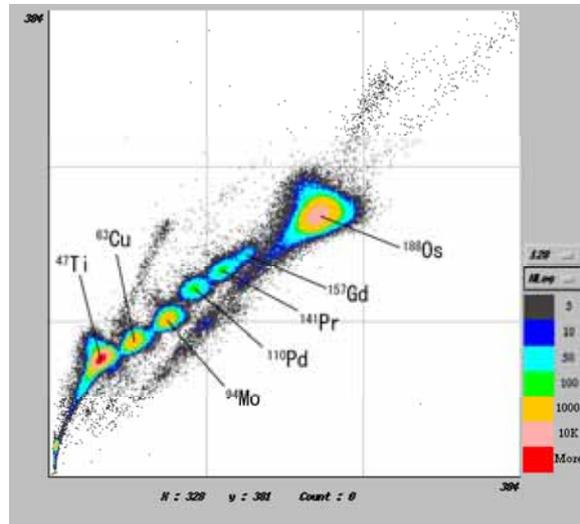


図 2 E E スペクトル

装置利用に関して新たな研究テーマおよびユーザーの発掘が期待できる副産物的成果である。これらの成果も含めて今後さらなる利用促進につなげたい。また、プラセオジウム存在測定の実験テーマに対しては、ランタノイド系列バックグラウンド存在量の精密測定、D2 実験前後での試料中のプラセオジウム存在量比較の測定等が計画されている。また、今回の実験から本テーマに対する課題としては MIVOC 試料の供給、マルチアノードタイプの Ionization chamber の更新、ECR イオン源のプラズマチャンバー内部材の見直しを行う等が挙げられた。

(参考論文)

- [1] 米田 成一(よねだ しげかず) 学位論文、1988 年、東京大学
- [2] Schmitt et al. (1963) *Geochim. Cosmochim. Acta*, **27**, 577-622.  
Masuda (1968) *Earth Planet. Sci. Lett.*, **5**, 59-62.  
Table of elements in geochemistry, Yttrium and Lanthanides, Table 39,  
57-71-C2
- [3] Schmitt et al. (1964) *Geochim. Cosmochim. Acta*, **28**, 67-86.

### 1 1 . 今後の展望

今回、Pr の存在判定に関して、いわゆるブランク試料の測定を通じ、イオン源からのバックグラウンドを見積もることができた。本来の趣旨は三菱重工業株式会社にて行われている、いわゆる D2 実験における Pr の存在判定である。そこで、今後は、イオン源の部材の吟味等を通じて、検出感度を高め、D2 実験における対照試料と実験試料を直接的に相互比較する実験を確度と精度を高めて行ってみたいと考えている。また、同時に、スパッタリングにより、効率よく目的とする元素を測定するだけでなく、今回のように例えば他の近在元素を検出できるというおまけ的な結果を得ることが出来たことは、他の材料科学への応用も期待できると考えている。

### 1 2 . 社会・経済への波及効果の見通し

三菱重工業株式会社における D2 実験の検証そのものが社会、経済へ与える波及効果は言うまでもない。一方、今回の実験を通じて、材料中の極微量元素の多元素同時分析がかなりの感度で行えることを実証することが出来た。これは、材料科学における微量元素制御をより高い感度で行えることを示しており、産業的な利用を期待できるのでは、と考えられる。

### 1 3 . その他、仁科センターに対する要望など

検出器 ( Ionization chamber ) およびデータ収集回路周りの設備の老朽化が目立ち、他所の同程度の設備にくらべ、カウントレートの限界値、分解能、およびデータ収集、解析などで差を感じた。世界に類を見ない手法であり、実験の質を高めることにもなるので、ぜひとも設備の更新を切に望みます。また、今後継続的な利用を検討する意味におきましても、低価格な利用料金を設定して頂きたく願います。