

(論文内容の要旨)

本論文は、小型全反射蛍光X線分析装置を設計、開発し、更に高感度化を達成したことについても述べ、加えて装置の応用を示したものであり、7章から成っている。

第1章は序論であり、本研究の背景および得られた成果の概要が述べられている。

第2章では、入射X線のコリメータとしてX線導波路を試作し、1ワットの自然空冷式X線管と組み合わせて用いることで全反射蛍光X線分析装置の小型化に成功したことを述べている。微弱X線源から発生する連続X線を用いることによりng量の硫黄、カルシウム、3d遷移金属元素、希土類元素などを検出することに成功した。また、環境試料、飲料、生活用品中の微量元素分析への本装置の応用例を示すとともに定量精度を検討した。その結果、本装置を用いることで含有元素の濃度を分析できることを明らかにした。

第3章では、レコード盤を用いて試作した屈折レンズを本装置のX線光学素子として用い、X線導波路を用いて得られる分析感度との比較を行ったことについて述べている。レコード盤レンズを用いて測定した蛍光X線強度はX線導波路を用いた場合よりも弱いですが、レコード盤レンズを用いることで入射X線の角度発散を小さくし、蛍光X線分析線の信号対バックグラウンド強度比を高めることができた。その結果、X線導波路と同様にレコード盤レンズを用いることによりサブngから数ngの検出下限を達成した。

第4章では、装置を改良し高感度化に成功したことを述べている。従来、全反射蛍光X線分析法では入射X線を単色化し、スペクトルのバックグラウンドを低減させることで分析感度が改善できると考えられており、シンクロトロン放射光のような高強度X線源をモノクロメータと組み合わせて用いることでfg($1\text{ fg}=10^{-15}\text{ g}$)量の元素分析を可能としてきた。しかし、本論文において全反射蛍光X線分析では入射X線を単色化せずに用いることでスペクトルのバックグラウンドは高くなるが、元素の励起効率を高め検出下限を改善できることを示した。数ワットX線管を使用する場合には、発生するX線を単色化せずに用いることで数十pgの検出下限を達成できることを示し、従来とは真逆の微弱な非単色X線を励起源とする方法を用いて極微量元素分析が可能であることを示した。この方法を用いることで高感度化を達成し、環境試料、金属材料浸出水、食品などに含まれるppbまたはppm濃度の元素を分析できることを示した。

第5章では、装置の分析感度をさらに改善するために最適な試料量、視射角、X線管の管電圧および管電流を検討した結果について述べている。非単色X線を用いる場合には試料量を少なくすることにより、試料自体からの入射X線の散乱を減少させスペクトルのバックグラウンドが低減することを示した。検出可能な濃度の元素が含まれていれば試料自体による入射X線の散乱が十分に弱くなる程度に試料量を少なくすることで検出下限が改善することを明らかにした。視射角を 0.05° として試料を測定した時に、広範囲の元素において蛍光

氏名	国村 伸祐
----	-------

X線分析線の信号対バックグラウンド強度比を高めることができたので、この条件で測定を行うことにより広範囲の元素を同時に高感度で分析できることを示した。管電圧の上昇に伴い入射X線強度は強くなるが、各蛍光X線分析線のバックグラウンド強度も二次関数的に増加したので、管電圧を上げすぎると逆に検出下限が悪化することを示し、分析感度を改善するための最適な管電圧が25 kVであることを明らかにした。管電流は実用的な範囲内では上げれば上げるほどに検出下限を改善することができた。以上のように、管電圧、管電流、視射角を最適化し試料量を少なくして測定を行うことにより、本装置の検出下限を3d遷移金属元素において10 pgにまで改善することに成功した。

第6章では、本装置を用いて原産国の異なる6種のワイン等を分析し、それぞれのワインに含まれる無機元素の組成の差異をみることができたことについて述べている。ぶどうの品種、栽培土壌、製造工程などの違いに応じてワインに含まれる元素の組成が異なることから、含有元素を分析することで産地や種類を判別できるが、このような目的で本装置を用いることが可能なことを示した。

第7章は結論であり、本研究で得られた成果をまとめている。

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、小型全反射蛍光X線分析装置の設計、開発、高感度化に至った経緯および応用に関する研究成果をまとめたものである。得られた主な成果は以下の通りである。

1. 入射X線を平行化するための光学素子としてX線導波路を設計、試作し、数ワットのX線管と組み合わせて用いることで小型軽量の全反射蛍光X線分析装置を開発することに成功した。
2. レコード盤を用いてX線屈折レンズを試作し、本装置の光学素子として使用した。X線導波路を用いて得られる分析感度との比較を行った結果、レコード盤レンズを用いることによりX線導波路を用いる場合と同等の感度で元素を分析できることを明らかにした。
3. 全反射蛍光X線分析では、入射X線の単色化が分析感度改善のために必要不可欠と考えられ、シンクロトロン放射光のような高強度X線源をモノクロメータと組み合わせて用いることで検出下限が改善されてきた。しかし、数ワットのX線管を用いる場合には、発生するX線を単色化せずに用いるほうが検出下限を改善できることを本論文において明らかにし、微弱な非単色X線を用いることでシンクロトロン放射光にあと3桁に迫る10 pg (=10⁻¹¹ g)量の検出下限を得ることに成功した。この微弱X線源から発生する非単色X線を用いるという従来とは逆の発想を用いることで本装置の高感度化に成功した。
4. 本装置を用いることにより、溶液中に数ppb含まれる元素を検出することに成功し、環境汚染の評価、食品の安全性評価および産地判別、金属材料の耐食性評価などの目的に本装置を適用可能なことを示した。ICP(誘導結合プラズマ)装置や原子吸光分析装置が溶液分析に主に用いられているが、本装置はこれらの装置を凌駕する分析感度を達成しており、これらの装置に取って代わる可能性を示した。

以上のように本論文は微弱な非単色X線を用いる独創的な方法により極微量元素を分析できることを明らかにし、この方法を用いることで高感度かつ小型軽量の全反射蛍光X線分析装置の開発に成功するとともに、従来極微量元素分析に用いられてきた大型分析装置が本装置へと置き換わる可能性を示したものであり、学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成21年7月24日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。