

氏 名	甲 斐 潤 二 郎 か い じゆん じ ろう
学 位 の 種 類	理 学 博 士
学 位 記 番 号	論 理 博 第 2 号
学位授与の日付	昭 和 35 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 2 項 該 当
学 位 論 文 題 目	インパルス加速型質量分析装置
	(主 査)
論文調査委員	教 授 佐々木申二 教 授 城野和三四 教 授 高木 秀 夫

論 文 内 容 の 要 旨

主論文は、従来の質量分析装置とは著しく異なった新しい原理による質量分析法を考案し、試作品について実験した結果、この方法が実現可能であることを実証したものである。簡単のため、以下、既知同一電荷のイオンについて考えることとする。これまでもっとも普通に用いられている質量分析装置では、すべてのイオンは電位降下 V なる加速電場を通過して同一の運動エネルギー $1/2mv^2 = eV$ を得て、一定方向に進む細いイオン・ビームとなって均一磁場に入る。ここに m , e , v はイオンの質量、電荷、速度である。そこでイオン・ビームは、運動量 mv の値によって定まるいくつかの円軌道に分かれて進む。このようにして、イオン・ビームを質量の異なった成分イオン・ビームに分離して検出・測定できる。著者の提出した新しい質量分析法の原理は、上とは逆に、運動量が一定値をとるようにすべてのイオンを加速したのち、各成分イオンの運動エネルギーの値の差を利用して質量分析するものである。

この原理をさらに説明すれば、まず、ごく短時間の間、加速場のない状態でイオンをつくり、その直後に加速電極にパルス電圧をかけて加速場を形成する。この電場を $E(t)$ とし、電場の持続時間 τ を適当に短かくとれば、すべてのイオンが加速場内にある間に加速が終る。この場合には、イオンの運動方程式 $e \cdot E(t) = m \cdot (dv/dt)$ を $t=0$ のときに $v=0$ という条件で積分すれば $mv = e \int_0^\tau E(t) dt$ となる。したがって質量の異なったイオンに対しては、運動量は同じであるが、運動エネルギーは異なっている。なお、実際にはこのようなイオン生成—加速の手続きを繰り返して、運動量が一定な間歇的イオン・ビームを作ることが必要である。

このイオン・ビームを、運動エネルギーの違いを利用して、質量分析するのであるが、そのために適当な電場を通過させる。すなわち、2枚の同心円筒状電極で構成された放射状電場内を細いビームとして通過させると、電場の強さをかえていくことにより、任意の運動エネルギーをもつイオン・ビームが中心円軌道を通るようにできる。このビームは運動量一定の条件からわかるように、同一質量のイオンから成っているから、この軌道上に置いたスリット系を通して、そのイオン・ビームだけを取り出し、検出・測定

すればよい。もう一つの分析方法は追いつ返し電極を用いるものであって、この電極の電位を上げていくと、全イオン・ビームの中から、質量の大きいイオンから順に追いつ返ししていくことができるので、残ったイオン・ビームを測ることによって質量分析ができる。この方法では、スリット系を必要としないので、イオン・ビームの損失がないという利点がある。

つぎにこの原理を使った質量分析装置が、現在の技術で、実現可能であることを理論式による数値計算によって確かめている。すなわち

(1) 加速パルスの高さを80V程度とすると、加速場の長さ1cm, パルス幅100m μ secで、(質量数/電荷数)が1以上の全質量範囲が分析可能になる。

(2) 加速パルスの繰返しは、(質量数/電荷数)が300までなら、数10kc/sec以上くらいにできる。

(3) 分解能 $R = |m/\Delta m|$

(a) 放射状電場を使う場合: $R = A_e / (S_1 + S_2 + A_e |\Delta V_i| / V)$. ただし、 A_e は同心円筒状電極の中心半径、 S_1 および S_2 はそれぞれ主スリットおよびコレクタ・スリットの幅である。

(b) 追いつ返し電極を使う場合: $R = |V/\Delta V_i|$, ΔV_i は、イオンの $1/2mv^2 = eV$ によって定まるVが、熱運動や装置の不完全等に起因して持っているひろがりであって、重要な因子ではあるが理論的に大きさを予見することは困難である。

著者は、上述の理論的考察に基づく質量分析装置を試作し、アルゴン・窒素混合試料について実験を行ったところ、追いつ返し電極および放射状電場のいずれを用いた場合にも、アルゴンと窒素のピークを得ることができた。放射状電場の中心半径として10cmを用いたが、この場合、 $\Delta V_i = 0$ と仮定したときの理論分解能12に対して実験値約3を得た。装置の改善によって分解能は向上することが期待できる。

参考論文その1とその2は、その5において報告した固体試料分析用質量分析器を用いての定性および定量分析の結果とその考察に関するもので、その3はスパーク型イオン源で生ずる多原子分子イオンについての知見を述べたものである。その4は高真空下の物性研究のための質量分析計の試作およびそれを用いての二、三の稼働結果に関するもので、その5は Mattauch-Herzog 型二重収束質量分析器の設計・試作に関するものである。

論文審査の結果の要旨

従来ほとんどすべての質量分析装置では、イオン化操作によって発生したイオンはすべて、その両極に電位差Vが印加されている加速場を通りぬけるようにしてある。以下簡単のため、同一電荷のイオンだけを取り扱うこととする。しかしこのあとの記述に出てくるすべてのイオンの質量の代わりに、電荷数(電子電荷を単位としたもの)で除した質量を使うだけで、一般の場合に返えすことができる。さて、加速場を通りぬけたイオンはその質量には無関係に同一の運動エネルギーを得るのであって、その値は通過の際に印加されていた電位差Vとイオンの電荷eとの積eVに等しいのである。しかしながら、このようなイオンはその質量に特有の運動量を持っているので、リボン状にしたイオン・ビームを磁場内を通過させて運動量のスペクトルに分解することによって質量分析が行なわれるのである。現在使用されている重要な質量分析装置のほとんどすべてがこの磁場プリズム型に属している。著者は、このほとんど通念化してい

る定運動エネルギーに加速後異運動量によって分析するという原理から脱却して、これを逆転し、定運動量に加速後異運動エネルギーによって分析するという新しい原理に想到した。

すなわち、短時間のイオン化操作によって発生した一群のイオンに短時間の電圧の印加を行ない同一のインパルスを与付するときは、すべてのイオンはその質量に無関係に、同一の運動量を得るが、その運動エネルギーはその質量に特有の値をもっている。このようなイオン群の発生を速かに繰り返して得られる定運動量・異運動エネルギーのイオン・ビームの分析に使用された方法は2種である。その第1はリボン状にしたイオン・ビームを放射状電場内を通過させて運動エネルギーのスペクトルに分解する方法である。その主な特徴は、重量のかさむ磁石が不要なこと、容易にビーム幅を大きくできるから測定にかかるイオン量を増加できること等であるが、イオンの走行距離はなお相当大きい。第2の分析方法は追いつき電極を使用するものである。その主な特徴は磁石が不要なこと、太い束のイオン・ビームを使えるからイオン量が大きくできること等のほかに、イオンの走行距離をきわめて短かくできるという大きな長所があり、これらの特徴を利用すればきわめて軽量・小型の質量分析装置が可能になることは注目し値することである。

参考論文5編はすべて著者の過去6年間にわたる質量分析に関する専心研究の成果の一部であり、その4とその5は国内では最初の新型質量分析装置2種の試作に関するものである。その1は新型固体分析用装置によって行なった発光分光分析をのぐ高感度の定性分析に関するものであり、その2は同装置による新しい定量分析の創始に関するものである。その3はメタロイド元素電極間のスパーク放電による多原子分子イオンの発見に関するものである。

要するに、甲斐潤二郎は質量分析装置の分野において価値ある研究を行ない、新しい方法を導入し、また質量分析による化学分析法の分野において価値ある新方法を導入したのであって、そのすぐれた研究能力と独創力とは高く評価すべきものである。

よって、本論文は理学博士の学位論文として価値あるものと認める。

〔主論文公表誌〕

質量分析第15号（昭.35）予定

〔参 考 論 文〕

1. Mattauch 型2重収束質量分析器による化学分析（Ⅰ）（佐々木申二ほか2名と共著）
公表誌 質量分析 第12号（昭.34）
2. Mattauch 型2重収束質量分析器による化学分析（Ⅱ）（佐々木申二と共著）
公表誌 質量分析 第12号（昭.34）
3. Mattauch 型2重収束質量分析器による化学的研究（Ⅰ）（佐々木申二ほか1名と共著）
公表誌 質量分析 第12号（昭.34）
4. 高真空質量分析計の試作（後藤正之ほか3名と共著）
公表誌 質量分析 第14号（昭.35）
5. A Mass Spectrograph for the Analysis of Solids（固体分析用質量分析器）
（後藤正之と共著）
公表誌 Mitsubishi Denki Laboratory Report, Vol. 1（1959）.