修士論文

積分回路を用いた

質量分析計用信号取得システムの開発

大阪大学理学研究科物理学専攻M2 質量分析グループ

日野裕太

目 次

第 1章	はじめに	3
第2章	原理	5
2.1	飛行時間型質量分析計	5
2.2	検出器	6
2.3	アナログ的な信号処理	7
2.4	パルスカウント	7
2.5	新しい信号取得システム	7
	2.5.1 ピークの分岐 (CMOS アナログスイッチ)	8
	2.5.2 積分回路	9
第3章	回路	12
3.1	アナログスイッチ回路	12
3.2	積分回路	15
第 4章	性能評価	18
4.1	装置説明	18
4.2	ピークの選択	10
		19
4.3	ピークの蓄積	19 21
4.3 4.4	ピークの蓄積	19 21 21
4.3 4.4 第5章	ピークの蓄積 線形性 防止 の 一 の 下 た 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、	 21 21 21 24
4.3 4.4 第5章 5.1	ピークの蓄積 線形性 同位体比の測定 装置説明 	 19 21 21 24 24
4.3 4.4 第5章 5.1	ピークの蓄積 線形性 同位体比の測定 装置説明 5.1.1 ADC	 21 21 24 24 24
4.3 4.4 第5章 5.1	ピークの蓄積 線形性 線形性 5.1.1 ADC 5.1.2 超高感度極微量質量分析システム	 21 21 24 24 24 24 26
4.3 4.4 第5章 5.1	ピークの蓄積 線形性 	 21 21 24 24 24 24 26 27
4.3 4.4 第5章 5.1 5.2	ピークの蓄積 線形性 	 21 21 24 24 24 26 27 29

第6章	まとめ	りと課題																		39
	5.2.2	結果と考察		 	 •	 • •	•	 •	•	•	•	•	•	•	•	•	•	•	•	30

第1章 はじめに

我々のグループでは飛行時間型質量分析計を用いた超高感度極微量質量分析シス テム[1](図1.1)の開発を行っている。またそれを用いて隕石の同位体比を測定するこ とで、初期太陽系の形成についての情報を得る研究を行っている。隕石中の同位体 比の測定ではウランや鉛の同位体比の測定を行うことで隕石の年代測定を行い、更 に隕石中の鉱物組成や元素組成を調べることで初期太陽系の形成についての情報が 得られると期待される。

通常,飛行時間型質量分析計の検出器から得られるアナログ信号はデジタル信号 に変換する.しかし飛行時間型質量分析計から得られる信号は幅が数 ns 程度と非常 に短いため数 GHz の速いサンプリングレートで測定可能な高速 ADC を用いてデー タを得ることが必要である.しかし高速 ADC を用いるとダイナミックレンジは3 桁しか得られずそれ以上差があるものを見ることが出来ない.一方他の方法として パルスカウントと呼ばれるものがある.これは一定のレベル以上の信号が来た場合 にその時間を記録していく方法で,高速な信号にも対応出来るものがある.しかし 記録出来るのは信号が来た時間だけなので同時に複数来た信号も1としかカウント 出来ない.そこで本研究では,正確に定量分析が出来るようにパルスカウントとア ナログ的なデータ収集の両方の特徴を持った信号取得システムの開発を行った.こ のシステムの目的は複数 (10 個程度) の同位体を定量分析することである.

製作したのは3段階からなるシステムである.まず高速アナログスイッチを用い て検出器から出力された信号のうち目的とする同位体のピークの選択を行う.次に オペアンプを用いた積分回路に選択したピーク信号を入力しイオン量に比例した出 力信号を得る.このような回路を目的とする同位体の数だけ製作し,最後にサンプ リングレートは遅いが,分解能が良いADCを用いてデジタル信号に変換し,デー タを得る.システム全体の流れを図1.2に示す.すでに先行研究[2]で同様のシステ ムの開発が行われていたが今回多くの点で新たな機能を取り入れ改良を行った.

本論文では2章で質量分析計と信号取得システムの原理説明,3章で実際に製作 した回路の説明,4章で性能評価,5章で実際に同位体比の測定を行った結果,6章 でまとめと今後の課題について説明を行う.



図 1.1: 超高感度極微量質量分析システム



図 1.2: 信号の流れ

第2章 原理

2章では直線型の飛行時間型質量分析計の簡単な原理,信号の保存方法と問題点, 開発を行った信号処理システムの原理の説明を行う.

2.1 飛行時間型質量分析計

飛行時間型質量分析計とは原子や分子をイオン化し、一定の電場でイオンを加速 して自由空間を飛行させ、飛行時間を計測することによって質量電荷比 (*m*/*z*)を測 定する手法である.その主な原理を簡単に説明する.



図 2.1: 飛行時間型質量分析計模式図

図 2.1 のように、イオンの質量をm、電荷をqとすると電圧Vで加速されたイオンの速さvはエネルギー保存則 (2.1) によって与えられる.

$$\frac{1}{2}mv^2 = qeV \tag{2.1}$$

よってイオンが電圧をかけられてから検出器に到達するまでの時間を*t*,その距離を *L*とすると式 (2.1) から

$$t = \frac{L}{v} = L\sqrt{\frac{m}{2qeV}} \tag{2.2}$$

が得られる. 以上より m/q は次のように表される.

$$\frac{m}{q} = 2eV(\frac{t}{L})^2 \tag{2.3}$$

これによりLおよびVを一定にして飛行時間tを測定することで、質量電荷比(m/z)を求めることができる.

2.2 検出器

飛行時間型質量分析計で飛行したイオンは検出器に入射する.一般的に検出器に は MCP(micro-channel plate)が用いられている. MCP は電子を増幅することでイ オン量に比例した電流を出力する.チャンネル径が 10~20 μ m 程度のチャンネル トロンを板状に並べた構造をしており,応答が非常に速く,大口径,平面性が良い などの特徴を持つ.印加する電圧 (1.5~2kV 程度)に従って,およそ 10⁶~10⁸ 倍の 電荷を出力する.なお電子が増幅される時の個数にはばらつきがあるため出力にも ばらつきが生じる.

2.3 アナログ的な信号処理

飛行時間型質量分析計で得られる信号は非常に高速で図 2.2 に示す様にイオン1 個が検出器に衝突した時に得られる信号は数 ns の幅しか持たない.検出器から得ら れたアナログ信号をコンピュータで処理するためには数 GHz のサンプリングレート を持つ高速 ADC が必要だが 12 ビットのものしかないためダイナミックレンジは狭 くなる.数十~数千回の信号の平均化を行う事によってダイナミックレンジを改善 することは可能だが検出器に来る頻度が非常に低い場合は平均化されることによっ て S/N 比が悪くなり、ノイズと信号の区別がつかなくなる.



図 2.2: イオン一個が検出器に衝突した時に得られるアナログ信号

2.4 パルスカウント

信号を検出する方法の1つにパルスカウントと呼ばれる方法がある.TDC(timeto-digital converter)を用いて一定以上のレベルの信号が来た場合にその時間を記 録していく方法であるが1ビットのダイナミックレンジしかない.そこで多数のス ペクトルを積算してダイナミックレンジを改善する.しかし,同時に複数来た信号 も1としかカウント出来ない.そのため複数のイオンが同時に来るような,イオン 強度が強いものの定量分析には向いていない.

2.5 新しい信号取得システム

アナログ的な信号処理は頻度が低い信号の処理に向いておらず,パルスカウント は頻度が高い信号の処理を行う事が出来ない.そこで両方の欠点を克服したシステ ムの開発を行った.この信号取得システムはアナログスイッチを用いて測定を行い たいイオンのピークのみを切り出し,別々の積分回路に入力する.積分回路では入 力された電荷量に比例する出力が得られ,それを保持する.積分回路から得られた 出力は遅いため高速 ADC を用いる必要はなく,量子化ビット数の高い ADC でデジ タル信号に変換することが可能である.このシステムを用いることでダイナミック レンジが向上し,検出頻度が低いイオンも高いイオンも同時に測定可能である.信 号取得回路の原理を説明する.

2.5.1 ピークの分岐 (CMOS アナログスイッチ)

検出器の信号から測定するピーク信号を分岐する為にアナログスイッチを用いる. アナログスイッチとは制御信号によって ON, OFF を切り替え,スイッチの開閉を 行うことが出来る素子である.この素子を制御信号によって測定したいピーク信号 が来たときだけスイッチを ON にすることで,回路に測定したいピーク信号のみを 入力することが出来る.以下に回路図を示す.



図 2.3: CMOS アナログスイッチ

COMS アナログスイッチは伝送ゲート (transmission gate) とも呼ばれており、リ レースイッチに置き換わる重要な回路である。図 2.3 のように pMOSFET と nMOS-FET が並列接続されており、pMOS, nMOS 両方が ON 状態になると入出力間は低 抵抗となり、入出力のいずれの方向にも信号を伝送することができる。アナロ グス イッチを ON 状態にするには、pMOS のゲートの電圧を接地電位 (GND), nMOS の ゲートを電源電圧 (+Vdd) にする. OFF 状態にするには、 $pMOS \ \ +Vdd$, nMOS を GND にする.

2.5.2 積分回路

積分回路とは抵抗を通って入力された電流を積分した値に比例した電圧を出力す ることができる回路である.以下にオペアンプを用いた積分回路の回路図を示す.



図 2.4: 積分回路

入力電圧を V_{in} ,電流をI,抵抗をR,コンデンサーの容量をCとすると出力電 EV_{out} は,

$$V_{out} = -\frac{1}{C} \int_0^t I dt \tag{2.4}$$

が得られる.オペアンプの-端子と+端子は仮想的に短絡されこの場合ゼロ電位となる.よって $I = V_{in}/R$ となるので式 (2.4)より出力電圧は入力電圧を積分した値に比例した電圧を出力することが分かる.

また,一度コンデンサーに蓄積された電荷は放電されずそのままとなるので,一 回の測定ごとに蓄積された電荷を放電する仕組みが必要である。そこでフォトリレー をコンデンサーと並列に入れ,蓄積された電荷を放電するシステムを取り入れる。 回路を図 2.5 に示す.

フォトリレーはフォト MOSFET などと呼ばれるスイッチ IC で、内部にある発光 ダイオードが光ると光発電セルが FET のゲート容量を充電し、FET が導通する仕



図 2.5: フォトリレーを入れた積分回路

組みとなっており,スイッチ側と信号側が電位的に完全に遮断された構造となって いるため使用することとした.アナログスイッチよりも反応は遅いが放電するタイ ミングは数十μsずれても構わないため問題はない.フォトリレーを ON にした時 は数Ω程度の非常に低い抵抗が入っている状態となっており ON にすると速やかに 放電を行う.

また、今回はピークの幅を広げるため、フォトリレーを用いて放電を行う積分回路の前段にもう一段積分回路を置いている。この場合も一回の測定ごとに蓄積された電荷を放電する必要があるため抵抗をコンデンサーに並列入れた、回路を図 2.6 に示す.

抵抗を R'とすると,積分回路と同様に

$$V_{out} = -\frac{1}{CR} exp(-\frac{1}{CR'}) \int_0^t V_{in} exp(\frac{1}{CR'}t) dt$$
 (2.5)

が得られる.

ここで,放電する時定数*CR*′よりもピークの入力時間*t*が非常に小さいと近似すると

$$V_{out} = -\frac{1}{CR} \int_0^t I dt \tag{2.6}$$



図 2.6: 抵抗を入れた積分回路

が得られる.

この時積分回路と同様に入力した電圧に比例した電圧を出力することが分かる. またこの時ピークの入力時間 *t* は飛行時間型質量分析計の場合数十 ns となるので, それに対して時定数 *CR*['] が十分に大きくなるように回路を設計する必要がある.

第3章 回路

3章では実際に製作した回路について説明を行う。回路はアナログスイッチ回路 と積分回路からなっている。



図 3.1: 全体の流れ

3.1 アナログスイッチ回路

今回用いたアナログスイッチは、アナログデバイセズ社の CMOS アナログスイッ チ ADG751[3] である。ADG751 は制御信号が+Vddのときはスイッチが OFF、GND の時はスイッチが ON になる。オフ・アイソレーション-75dB、帯域幅 300MHz、オ ン抵抗 15 Ω 、スイッチング時間 t_{on}9ns、t_{off}3ns、リーク電流± 0.01nA である。

アナログスイッチ ADG751 を用いたスイッチ回路図を図 3.2 に示す.

オフセット電圧をカットしベースラインの変動を防ぐ為に、ピークの切り出しに 用いるアナログスイッチの前に別のアナログスイッチとコンデンサーからなる回路 を導入した.このアナログスイッチはグラウンドと繋がっており、ピークの切り出 しに用いるアナログスイッチとは完全に逆のタイミングで動かす.ピークの切り出 しを行っていない時は、図 3.3 に示す様にこのスイッチは ON となりコンデンサー のアナログスイッチ側の電位はグラウンドと繋がるため OV となる.



図 3.2: アナログスイッチ回路



図 3.3: ベースラインの変動を抑えるアナログスイッチが ON の時

図3.4に示す様に切り出しのタイミングではこのアナログスイッチをOFFにする. コンデンサーのアナログスイッチ側の電位は最初は0Vである.スイッチをOFFに している間は100ns程度で十分に短いためコンデンサーのアナログスイッチ側の電 位は変化が非常に小さい.これにより図3.5に示す様にベースラインが変動してい る場合もその影響を積分回路側に伝える事はなくピークだけを伝える事が出来る様 になる.



図 3.4: ベースラインの変動を抑えるアナログスイッチが OFF の時



図 3.5: ベースラインの変動模式図

3.2 積分回路

今回積分回路に用いたオペアンプはアナログデバイセズ社のAD8065[4]とAD8033[5] である。先行研究に基づき二段階の積分回路を製作した。一段目の積分回路で入力 されるピークの幅を広げ、二段階目の回路で積分結果を保持し読み取りを行った。

ー段目には、入力バイアス電流が非常に小さく、帯域幅が145MHzのAD8065を使用した。AD8065FastFET アンプはFET 入力の電圧帰還型アンプである。基本性能は、入力ノイズ電圧 7 nV/ \sqrt{Hz} 、入力バイアス電流 1 pA、帯域幅 145 MHz、スルーレート 180V/ μ sである。二段目には、入力バイアス電流が非常に小さい AD8033 を使用した。AD8033FastFET アンプはFET 入力の電圧帰還型アンプである。基本性能は入力ノイズ電圧 11nV/ \sqrt{Hz} 、入力バイアス電流 1pA、帯域幅 80 MHz、スルーレート 80V/ μ sである。

一段目の AD8065 は AD8033 よりスルーレートが速い。また二段目の AD8033 は
 AD8065 より放電時間を長くすることが可能である。表 3.1 に使用 したオペアンプの比較表を示す。

また放電用のフォトリレーには TLP3241 を用いた。TLP3241 はフォト MOSFET と赤外線発光ダイオードを光結合させたフォトリレーである。基本性能は阻止電圧 40V,オン抵抗 7 Ω ,出力端子間容量 0.7pF,スイッチング時間 t_{on}26 μ s. t_{off}45 μ s である。

オペアンプ	AD8065	AD8033
入力ノイズ電圧	$7 nV / \sqrt{Hz}$	$11 nV/\sqrt{Hz}$
入力バイアス電流	1 pA	1 pA
帯域幅	$145 \mathrm{~MHz}$	80 MHz
スルーレート	180 V/ μ s	$80 \text{ V}/\mu \text{ s}$

表 3.1: オペアンプ比較

積分回路全体の回路図を図 3.6 に示す.

ここで一段目と二段目の積分回路の間にはオフセット電圧をカットするためのコ ンデンサーを入れた.このコンデンサーをC,二段目の積分回路の抵抗をR,コン デンサーにかかる電圧を V_C ,信号のピーク電圧をVとするとコンデンサーは

$$V_C = V e^{-\frac{t}{CR}} \tag{3.1}$$

に従って放電を行う.よって時定数*CR*が短いと積分結果を保持している間もコン デンサーに貯まっている電荷が流れ続け,積分結果は徐々に0に近づく.そこでこ



図 3.6: 積分回路

の時定数を 9.4ms にして測定の間は積分結果が保持されるようにした.しかし,実際には測定は 500Hz で行う予定であるため 9.4ms では次の測定まで電荷が貯まる事となってしまう.そこで抵抗にもフォトリレー(2)を付け,積分結果の読み取りが終わったあとにフォトリレーを用いて一気に放電することで積分結果に影響を及ばさないようにした.放電のタイミングは,積分の放電用のフォトリレー(1)と同じタイミングとした.

アナログスイッチと積分回路全体の回路図を図 3.7 に示す. また, これと同じ物 を4個並列に作り, 実装を行った写真を図 3.8 に示す. 以後この4つ作った回路を写 真上部から ch1, ch2, ch3, ch4 とする.



図 3.7: 信号取得用回路図



図 3.8: 実際に製作した回路

第4章 性能評価

4章では製作した回路の動作確認と評価について説明を行う.

4.1 装置説明

回路の動作確認の為にディレイジェネレーターのパルスを疑似信号として用いた. 用いたディレイジェネレーターは BNC 社の Model 555 Digital Delay-Pule Generator である.電圧とパルス幅を設定することができ,疑似信号の発生源として使えると 判断した.生成した疑似信号をオシロスコープで測定したものを図 4.1 に示す.信 号は幅 50ns 電圧 500mV に設定をして用いた.実際の信号はこれよりも電圧も幅も 小さいが動作確認としてはこれで十分と判断した.

また各アナログスイッチの制御,放電用のフォトリレーの制御にもディレイジェネレーターを用いた.図4.2に500Hzで測定を行う場合の各タイミングを示す.



図 4.1: 疑似信号



図 4.2: 制御タイミング

4.2 ピークの選択

アナログスイッチによってピークの切り出しが行える事を確認する実験を行った。

測定条件

アナログスイッチが ON の状態の時のみ疑似信号がアナログスイッチを通過して いるか確かめる実験行った.ディレイジェネレーターで疑似信号を生成し,アナログ スイッチ回路に入力して出力信号をオシロスコープで測定した.スイッチは (A) ス イッチ ON の状態でピークが入力するタイミングと,(B) スイッチ OFF 状態でピー クが入力するタイミングで測定を行った.スイッチ ON のタイミングは 0~100ns の 100ns 間,ピークを入力する時間は (A) が 20ns から立ち上がり,(B) が 150ns から 立ち上がりとした.

結果と考察

図 4.3 にアナログスイッチ通過後のピークの様子を示す.スイッチ ON の時のみ ピークがアナログスイッチを通過していることが確認出来た.スイッチ切り替えタ イミングでノイズが見られる.これはスイッチ切り替えによるノイズである.このノ イズは一定の大きさであるため測定には影響しない.またピークの切り出しは,ス イッチを閉じる時間が 100ns あれば充分行える事が分かった.



図 4.3: アナログスイッチ通過後のピーク (上:(A) スイッチ ON のタイミングでピー ク入力,下:(B) スイッチ OFF 状態でピーク入力)

4.3 ピークの蓄積

積分回路がピークの蓄積を行えることを確認する実験を行った.

測定条件

ディレイジェネレーターで疑似信号を生成し,アナログスイッチを通過させた後 に,積分回路に入力した.出力をオシロスコープで測定した.

結果と考察

結果を図 4.4 に示す.

ピークの蓄積が行われその結果が保持されていることが分かる.またフォトリレーが ON になったタイミングで即座に放電が行われていることが分かる.



図 4.4: 積分回路通過後のピーク

4.4 線形性

積分回路の線形性を確認する実験を行った後,製作した4つの回路全てで線形近 似を行い較正に用いる式を求めた.

測定条件

ディレイジェネレータで疑似信号を生成し,信号の大きさを変化させて入力する 電荷量を変えた.信号は幅15~50ns,電圧は500mV~1.5Vの間で変化させた.測 定はオシロスコープを用いて行い,入力電荷量に対する出力信号の大きさをプロッ トした.

結果と考察

図 4.5 に示す様に線形性があることを確認出来た.またこのとき線形近似直線を V=aq とすると

$$a = 3.267 \pm 0.014 \times 10^9 (\frac{V}{C}) \tag{4.1}$$

であった.



図 4.5: 積分回路の線形性

また同様に他の4つの回路についても線形性を確認した.全て近似直線の比例係 数を求めると

$$a = 3.201 \pm 0.008 \times 10^9 (\frac{V}{C}) \tag{4.2}$$

$$a = 3.165 \pm 0.017 \times 10^9 (\frac{V}{C}) \tag{4.3}$$

$$a = 3.188 \pm 0.017 \times 10^9 (\frac{V}{C}) \tag{4.4}$$

となった.実際の測定ではこの式を用いて回路毎の較正を行う.なお,回路間の比 例係数の違いは抵抗やコンデンサーの差によるものと考えられる.



図 4.8: ch4 の線形性

第5章 同位体比の測定

5章では実際に製作した回路を用いて鉛の同位体比を測り、その結果と評価について報告を行う.

5.1 装置説明

5.1.1 ADC

今回実験で用いる ADC はナショナルインスツルメンツ社の DAQ デバイス USB-6251 である.装置を図 5.1 に示す. USB-6251 の制御とデータの取得には同社の Lab-VIEW(Laboratory Virtual Engineering Workbench) を用いた.

USB-6251

USB-6251 は複数のデータを取得する場合,マルチプレクサによりチャンネルの 切り替えを行って1つの ADC で測定を行っている. そのため8チャンネルのアナ ログ入力チャンネルを備えているが同時に複数のチャンネルで測定出来る訳ではな く,1つチャンネルのみを用いる測定ならサンプリングレートが1.25MHz で測定出 来るが,4つのチャンネルを用いて同時測定を行おうとした場合サンプリングレー トは250kHz,8つのチャンネルを用いて同時測定を行おうとした場合サンプリング レートは125kHz となる.量子化ビット数は16bit,アナログ入力レンジは±10,± 5,±2,±1,±0.5,±0.2,±0.1Vを選択出来る.



⊠ 5.1: USB-6251

LabVIEW

LabVIEW を用いて製作したデータ収録と制御システムについて説明する.Lab-VIEW はグラフィック型言語によってプログラミングを行うことが出来る開発環境 で,主に計測や制御システムに用いられる.USB-6251の制御はディレイジェネレー タからの短形波をトリガーとし測定を行うこととした.測定は繰り返し行われるが, 外部トリガーを受けたカウンタ出力を生成することで再トリガを行っている.USB-6251 は設定したサンプリングレートで測定を行い,収録されたデータはPCに送ら れる.そのデータを収録と並列で抽出し,各チャンネル毎に得られた積分中の値を 1点抜き出しこれを記録する.以上の動作を測定を行っている間繰り返す.これに より 500Hz でデータの書き込みと収録を同時に行う事を可能にした.

5.1.2 超高感度極微量質量分析システム

実験に用いた質量分析計についての簡単な説明を行う。

今回実験に用いた質量分析計はイオン化法に SIMS(secondary ion mass spectrometry), 質量分離部に MULTUM II(マルチターン飛行時間型質量分析計)を用いた. 写真を図 5.2 に示す.

SIMS 部にはエスアイアイ・ナノテクノロジ ーの SMI3050MT を改良したものを 用いた. 一次イオンビームは Ga であり,一次イオンを任意の時間 (200-1000ns) で ブランキングし,スパッタリングをパルス的に行って質量分析計に接続を行ってい る. またこのとき生じる粒子の多くは中性粒子でありそれをさらにイオン化するた めにフェムト秒レーザーを取り付けている.用いたレーザーは Spectra-Physics 社製 の Solstice 1K-230V である.

MULTUM II は多重周回飛行時間型質量分析計で同一軌道を何度も周回させることで飛行時間をのばし、より高い分解能を出す事が出来る. MUTUM II は 1200 回 周回させることにより質量分解能 250000 を達成している. [6]



⊠ 5.2: MULTUM-SIMS

5.1.3 **プリアンプ**

検出器の後に 100 倍のプリアンプを取り付け,その後ろに自作のプリアンプを取 り付けた. 100 倍ブリアンプは ORTEC 社の 9306 1-GHz Preamplifier で立ち上がり が 350ps の高速プリアンプである.出力は 0~2V であるが 1 つのイオンが来た時の MCP の出力は 1.9kV で 15mV 程度である.そのため直前に自作の RC 回路を取り付 けて信号の出力を下げた.あまり時定数が遅いとアナログスイッチの開く時間に影 響するため時定数を 4.7ns にした.その結果ピークの電圧が半分近くになった.また MCP からの出力は-側に現れるが,アナログスイッチは GND から電源電圧までの 電圧を通す様に出来ているので反転させる必要がある.そこで-1 倍のプリアンプを 製作し,アナログスイッチの前に取り付けた.オペアンプにはアナログデバイセス 社の高速 FET オペアンプ ADA4817を用いた.基本性能はは入力ノイズ電圧 4nV/ √ Hz,入力バイアス電流 2pA,帯域幅 1050MHz,スルーレート 870V/µs である. また帯域に余裕を持たせるため,オペアンプの前に RC 回路を取り付けて信号を少 しなまらせた.9306 1-GHz Preamplifier の写真を図 5.3 に,プリアンプの直前につ けた RC 回路の回路図を図 5.4 に,製作したプリアンプの回路図を図 5.5 に示す.



 \boxtimes 5.3: 9306 1-GHz Preamplifier



図 5.4: RC 回路



図 5.5: プリアンプ回路図

5.2 鉛の測定

実際に鉛の測定を行い同位体比に関する考察を行った.

5.2.1 測定条件

鉛の主な同位体は²⁰⁴Pb, ²⁰⁶Pb, ²⁰⁷Pb, ²⁰⁸Pbの4種類である。隕石の年代測定 にはこのうち²⁰⁴Pb, ²⁰⁶Pb, ²⁰⁷Pbが用いられるが,今回は4つの信号取得システム を用いて同位体比を求める事が出来る事を示すため、4つ全ての同位体比の同時測 定を行った。

ch1 に ²⁰⁴Pb, ch2 に ²⁰⁶Pb, ch3 に ²⁰⁷Pb, ch4 に ²⁰⁸Pb の信号を入力した. 1次イ オンビームの照射時間は通常数百 ns であるが,今回イオンがたまにしか来ない状況 と1~2 個程度来る状態を同時に作る為に 145.5ns と短くし,イオンの量を減らし ている. 測定 50 万点分を1回として 10 回行った. また,イオンが1つ来た時の様 子を詳しく知るために ch1 のみを 100 万点分取得する測定を1回行った. MULTUM はセクター電極 I への電圧印加時間幅を 42.3 μ s に設定して 2 回周回させた. MCP にかけた電圧は 1.9kV である. またプリアンプの後の波形をオシロスコープでも測 定した. 積算回数は 10000 回である. MULTUM の電圧条件を表 5.1 に示す.

アナログスイッチを ON にするタイミングの調整は、イオン量を多くしてオシロ スコープでプリアンプ直後の信号とアナログスイッチ直後の信号を同時に確認しな がら行った.²⁰⁶Pb がアナログスイッチ通過した後のピークを図 5.6 に示す.

P1	$1.4 \mathrm{kV}$	P2	-2.53kV
P3	-5.0kV	L1	$3.023 \mathrm{kV}$
L2	$1.199 \mathrm{kV}$	DEF1V	49.5V
DEF1H	-24.3V	DEF2V	$-50.4\mathrm{V}$
DEF2H	32.1V	MCP	2.4kV
EF1+	$0.995 \mathrm{kV}$	EF2+	$0.995 \mathrm{kV}$
EF3+	$0.939 \mathrm{kV}$	EF4+	$0.991 \mathrm{kV}$
MP14	$0.650 \mathrm{kV}$	EF1-	-0.993kV
EF2-	-1.0kV	EF3-	-0.990kV
EF4-	-0.991kV	MP23	$0.632 \mathrm{kV}$

表 5.1: MULTUM 電圧条件



図 5.6: アナログスイッチ通過後のピーク

5.2.2 結果と考察

オシロスコープで得た結果を図 5.7 に示す. 51.44 μ s 付近にあるピークが ²⁰⁴Pb, 51.6 μ s から 52.0 μ s の間にある 3 つのピークが ²⁰⁶Pb, ²⁰⁷Pb, ²⁰⁸Pb である.

製作した信号取得システムを用いて 50 万点分測定した結果を図 5.8~図 5.11 に示 す.式4.1~式4.4を用いて ch1 に合わせて規格化し,バックグラウンドから原点を 合わせて較正を行い,ヒストグラムにしている.







図 5.8: ch1 で取得した ²⁰⁴Pb のヒストグラム



図 5.9: ch2 で取得した ²⁰⁶Pb のヒストグラム



図 5.10: ch3 で取得した ²⁰⁷Pb のヒストグラム



図 5.11: ch4 で取得した ²⁰⁸Pb のヒストグラム

同位体比の計算においてこの結果からピーク面積を求める必要がある.図 5.8~ 図 5.11 を見るとピークが二つある.原点付近にあるピークはイオンが来ていない時 の分布でバックグラウンドである.もう1つのピークは信号による分布であるが, MCP の出力にはばらつきがあるためイオンが何個来たのかを簡単に判別すること は出来ない.またバックグラウンドと信号による分布の一部は重なっている.よっ てどれだけイオンが来たのかを計算によって求めることにした.

まず²⁰⁴Pbの様にイオンがほとんど来ないときを考える.この場合イオンは1つ しか来ていないため分布の形は MCP にイオンが1つ当たったときのピーク面積の 分布に対応する.そこでその分布を ch1 で 100 万点測定したデータを用いて考える. バックグラウンドの形は左右対象であり,原点以下にイオンの信号は来ないのでデー タの処理を行い,左半分をそのまま折り返して右半分からも引くこととする.ヒス トグラムを図 5.12 に示す.



図 5.12: バックグラウンドを取り除いた²⁰⁴Pbのヒストグラム

図 5.12 に示す様にバックグラウンドの影響は完全には取り除けず, 誤差が生じている. そこでバックグラウンドの影響が多い所は直線で近似を行うこととした. また直線で近似したときの誤差を確認するため 2 次曲線での近似も行った. バックグラウンド, バックグラウンドを取り除いたヒストグラム, 直線近似, 2 次曲線での近似を図 5.13 に示す. これを用いてイオン量の計算を行うと, 直線で近似した部分が全体の 8.59 %となった. また直線近似と 2 次曲線の差を取ると全体の 0.85 % となり直線で近似を行った時の誤差は最大でも 1 %未満である.

実際に測定を行う場合は更にイオン量が少なく、ヒストグラムが滑らかにならず 直線での近似も難しい場合が考えられる.そこで積分結果がバックグラウンドの影



図 5.13: 直線近似を行ったヒストグラム

響を受けなくなる 0.32V 以上のイオン量を求めそこから全体のイオン量を計算する こととする.先ほどのデータを用いて計算を行うと 0.32V 以上の部分は全体の 82.84 %であったので 1.207 倍してイオン量を求めることとする.

次に 50 万回測定したデータ 10 回分を用いて同様の計算を行い,直線近似を用いた場合と 0.32V 以上のデータを用いて全体のイオン量を計算した場合の誤差を考える.結果を表 5.2 に示す.最大でも 2 %未満の誤差である.

誤差(%)
-0.4580
0.0353
-0.4649
-0.0999
-1.7737
-0.5911
-0.8906
-0.5495
-0.5929
-0.3730

表 5.2: 1 イオンが来た時の誤差

次に²⁰⁶Pb~²⁰⁸Pbの様にイオンが多く来ている場合を考える.この時は²⁰⁴Pbの 様な場合と比べて相対的にバックグラウンドの誤差は小さくなる.またイオンが同 時にくる数によって分布の形は変わってしまう.そこでバックグラウンドを用いて 原点の較正を行ったあと、全てのデータを足す事とした.バックグラウンドは左右 対称であるので中心を原点にした場合その部分は全て足すと0になりイオン量を求 める事が出来る.

以上の考察を元に 50 万点測定を行った鉛のデータ 10 回分の同位体比を図 5.14~ 図 5.17 に示す.平均値を直線で,標準偏差を点線で示している.平均に対する標準 偏差の大きさはそれぞれ 1.15 %, 0.401 %, 0.159 %, 0.193 %である.



図 5.14: ²⁰⁴Pbの同位体比



図 5.15: ²⁰⁶Pbの同位体比

35



図 5.16: ²⁰⁷Pbの同位体比



図 5.17: ²⁰⁸Pbの同位体比

また年代分析にも用いられる²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pbの比をプロットしたものを図 5.18 に示 す. 平均値を直線で標準偏差を点線で示している. 平均値に対する標準偏差の大き さは 0.522 %である.



図 5.18: ²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb比

ここで、 235 U と 238 U は放射線崩壊により最終的に 207 Pb と 206 Pb になる。また 235 U/ 238 U の現在の値は 1/137.88 である。以上より 207 Pb/ 206 Pb の変化量の比は 238 U の崩壊係数を λ_1 、 235 U の崩壊係数を λ_2 として現在からの時間を t とすると

$$\left(\frac{{}^{207}Pb}{{}^{206}Pb}\right)^{*} = \frac{{}^{235}U}{{}^{238}U}\left(\frac{e^{\lambda_{2}t}-1}{e^{\lambda_{1}t}-1}\right) = \frac{1}{137.88}\left(\frac{e^{\lambda_{2}t}-1}{e^{\lambda_{1}t}-1}\right)$$
(5.1)

となる。年代と²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pbの変化量の比を表にしたものを表 5.3 に示す。

式 5.1 を元に太陽系形成の 45.67 億年前の ²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb の変化量の比を求めると 0.6249 でありここから 0.5 % ずれると 800 万年ずれる。以上より,今回製作した信号 取得システムを用いて同様の条件で太陽系形成時の鉛が含まれた岩石を ²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb 比で年代分析した場合,分析誤差は± 800 万年である。

表 5.3: (²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb)* と年代の関係

年(億年)	$(^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb})^*$
45.70	0.6262
45.69	0.6258
45.68	0.6253
45.67	0.6249
45.66	0.6245
45.65	0.6240
45.64	0.6236
45.63	0.6232
45.62	0.6228
45.61	0.6223
45.60	0.6219
45.59	0.6215
45.58	0.6210
45.57	0.6206

第6章 まとめと課題

高速アナログスイッチとオペアンプを用いた積分回路によってピークの選択と蓄 積が出来ることを確認し、データを取得出来る事を確認した.

また実際に鉛の同位体比の測定を行い,²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb比を誤差 0.5 %で決めた.

今後の課題として

・より多くの物質を同時に分析するために回路を増やす

・増幅度の違うプリアンプを複数用意し、強度が極端に違う場合も対応出来る様に する.

・データ処理システムの完成度を上げ、より容易に実験が出来る様にする. などがあげられる.

謝辞

本研究をすすめるにあたってご協力いただいた皆様に心よりお礼申し上げます.石 原盛男先生には,この研究のテーマを提案していただき,研究全般に対して多くの ご指導を頂きました.豊田岐聡先生には,実験方法や結果の考察など,多くの貴重 なご意見をいただきました.青木順先生には,物理に関する知識をはじめ多くのご 指導をいただきました.松岡久典さんには,回路の製作や実験方法について多くの ご指導を頂きました.宇宙地球科学専攻寺田研究室の寺田健太郎先生には隕石測定 に関して様々な助言を頂きました.同じく寺田研究室の河井洋輔先生には実験を手 伝って頂き,多くのご指導を頂きました.また質量分析グループのスタッフ,学生 の皆様には研究活動全般において多くの助言をいただきました.皆様に感謝いたし ます.

参考文献

- E. Shingo et al., Journal of the American Society for Mass Spectrometry 24, 222-229 (2013)
- [2] 岸原 範明, 修士論文 (2012)
- [3] ANALOG DEVICES.ADG751.CMOS,LowVoltage,RF/Video SPST Switch. Date Sheet
- [4] ANALOG DEVICES. AD8065/AD8066. High Performance,145MHz Fast FETTMOp Amps. Data Sheet
- [5] ANALOG DEVICES. AD8033/AD8034.
Low Cost,80MHz Fast FET $^{TM} \mbox{Op}$ Amps.
Data Sheet
- [6] Okumura, D. et al. Eur. J. Mass. Spectrum. 11,261-266. (2005)

付録

LabVIEW 操作マニュアル

今回 LabVIEW で製作した信号取得用プログラムの操作について説明する. 1, PC と USB-6251 の電源を入れデスクトップにある信号取得用プログラムを起動. (図 6.1)

2, USB-6251の PFI0 にディレイジェネレータからのトリガー出力を繋ぐ.

3, USB-6251の ai0 から順番に信号取得用回路からの出力を繋ぐ.

4, 計測データ内の名前を保存する名前に変更.(毎回必ず変更すること.名前が同じだった場合自動的に上書きされる.)

5,必要な場合はデータ取得点の番号を変える。(デフォルトで10点目に設定。)

6,取得電圧範囲を変えたい場合はウインドウタブ内のブロックダイアグラムをク リック.AI電圧と名前が付いているアイコンをダブルクリック.入力範囲を書き換 える.(図 6.2, 6.3 参照.デフォルトで±5Vに設定.±10,±5,±2,±1,± 0.5,±0.2,±0.1Vの中から選ぶこと.)

7, 左上の矢印ボタンの実行をクリック.

8, データ取得回数に現在何回データが取得されたが表示される. 必要なデータを取得し終わったら, グラフ右下の stop ボタンをクリック.

9, データが3で設定した場所に保存される.

 				検索
データ取得点 取得サンプル つ 10 つ 10 10 11 Tining Parameters Samples per Channel 20 Sample Rate (H2) 21 125000.00 サンプルグロックソース 20 Sample Rate (H2) 21 125000.00 サンプルグロックソース 20 20 20 20 20 20 20 20 20 20	+д-+∞,要 0 Меазигетенен 4.0- 6.0- 4.0- 9 2.0- 9 2.0- 9 2.0- 4.0- -6.0- -7.0-7	I1洲データ C:¥Users¥mass¥Desktop¥data.bx		Dev1/ai0 // Dev1/ai1 // Dev1/ai2 // Dev1/ai3 // Dev1/ai4 // Dev1/ai6 // Dev1/ai7 //
集録するサンプル数		データ取得回数		使わない
20		oton oton	CTOD	STOP

図 6.1: LabVIEW 操作画面



図 6.2: ブロックダイアグラムの一部

🔁 DAQmxチャンネルを作成(AI-書	匪-基本)	-	-		x
ファイル(<u>E</u>) 編集(<u>E</u>) 表示(⊻)	プロジェクト(<u>P</u>)	操作(<u>0</u>)	ツール(<u>T</u>)	ウィンドウ	V(M <mark>DA0∞×</mark>
<u>\$ & @</u>					
タスク入力			タスク出力	b	^
I%			<u>г</u> ⁄0		
物理チャンネル					
■の坐てるてわたさルタ	- 1				
割り目にるチャンホル石	人力端子構成	_			
入力範囲	g zanti.				
最大値					
÷ 5.00					
最小値					
-5.00					
カスタムスケール名					
k -					
エラー入力			エラー出力		
ステータスコード			ステータス	コード	_
Ø €] 40			1	d <mark>0</mark>	-
ソース			ソース		
^				-	
·				-	
•					▼ ►

図 6.3: 電圧操作画面