



JAEA-Technology

2006-018



JP0650354

加速器質量分析装置ヨウ素ラインの性能

Performance of Iodine Beam Line for Accelerator Mass Spectrometry

鈴木 崇史 北村 敏勝 甲 昭二 外川 織彦 木下 尚喜 天野 光

Takashi SUZUKI, Toshikatsu KITAMURA, Shoji KABUTO
Orihiko TOGAWA, Naoki KINOSHITA and Hikaru AMANO

むつ事業所
施設部

Department of Facilities
Mutsu Establishment

March 2006

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

Kagoujou Technology

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に刊行している研究開発報告書です。
本レポートの全部または一部を複写・複製・転載する場合は下記にお問い合わせ下さい。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4
日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
Tel.029-282-6387, Fax.029-282-5920

This report was issued subject to the copyright of Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about the copyright and reproduction should be addressed to :

Intellectual Resources Section,
Intellectual Resources Department
2-4, Shirakata-shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, JAPAN
Tel.029-282-6387, Fax.029-282-5920

©日本原子力研究開発機構, Japan Atomic Energy Agency, 2006

加速器質量分析装置ヨウ素ラインの性能

日本原子力研究開発機構 むつ事業所 施設部

鈴木 崇史、北村 敏勝、甲 昭二^{*}、外川 織彦⁺、木下 尚喜、天野 光

(2006年1月27日受理)

日本原子力研究開発機構むつ事業所には 1997 年に加速器質量分析装置 (JAEC-AMS) が設置された。この加速器質量分析装置は炭素同位体比測定用とヨウ素同位体比測定用の独立したビームラインを有している。ヨウ素測定について、2000 年 7 月に行われたアクセプタンステストの結果では精度が 2.0~1.5%、再現性が 1.5~0.7% であった。その後、マイクロチャンネルプレート (MCP) の交換や再アライメントを行い、現在では精度 0.6%、再現性 0.26% に達した。様々なヨウ素同位体比 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) を持つ標準物質を測定した結果、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ が 10^{-10} から 10^{-12} の間で理論値と測定値が良く一致したことから、測定値の信頼性が確認された。 ^{129}I をほとんど含まない市販試薬を用いてこのヨウ素ラインの検出限界を見積もった結果、実質的には $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ で 10^{-13} 以下であることが確認された。現在、市販されている低レベルの ^{129}I 標準試料は NIST SRM3230 が AMS 用として利用できるが、高価であり少量しか使用できない。そこで 2 次標準物質を作製し NIST SRM3230 で規格化した。2 次標準物質の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は、Iso Trace Lab. の標準物質で $(1.21 \pm 0.01) \times 10^{-10}$ 、Standard No.3K で $(7.22 \pm 0.03) \times 10^{-11}$ 、Standard No.3i で $(2.77 \pm 0.03) \times 10^{-11}$ であった。

むつ事業所 : 〒035-0064 青森県むつ市港町 4-24

+ 原子力基礎工学研究部門 環境・放射線工学ユニット

* 技術開発協力員

Performance of Iodine Beam Line for Accelerator Mass Spectrometry

Takashi SUZUKI, Toshikatsu KITAMURA, Shoji KABUTO[※], Orihiko TOGAWA[†],
Naoki KINOSHITA and Hikaru AMANO

Department of Facilities
Mutsu Establishment
Japan Atomic Energy Agency
Minato-machi, Mutsu-shi, Aomori-ken

(Received January 27, 2006)

An accelerator mass spectrometry has been set up in 1997 at Mutsu Establishment of Japan Atomic Energy Agency. This AMS has two independent beam lines, optimized for ^{14}C and ^{129}I measurements. For the ^{129}I measurement, precision and reproducibility was 2.0 – 1.5% and 1.5 – 0.7%, respectively at the acceptance test in July 2000, and after that, exchange of Micro-Channel Plate and re-alignment improved precision and reproducibility to 0.6% and 0.26%, respectively. The results of testing standard materials, which have a variety of iodine isotopic ratios ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$), showed that this beam line has excellent measurement accuracy between 10^{-10} and 10^{-12} iodine isotopic ratios, and the detection limit is substantially below the 10^{-13} iodine isotopic ratio. Sub-standard samples were normalized to NIST SRM 3230 standard reference material, and the iodine isotopic ratio was $(1.21\pm 0.01)\times 10^{-10}$ for Iso Trace Lab. Standard, $(7.22\pm 0.03)\times 10^{-11}$ for Standard No.3K and $(2.77\pm 0.03)\times 10^{-11}$ for Standard No. 3i.

Keywords: Iodine-129, Accelerator Mass Spectrometer, Reproducibility, Precision, Accuracy,
Detection Limit, Sub-standard

[†] Division of Environment and Radiation Sciences, Nuclear Science and Engineering Directorate

[※] Cooperative Staff

目 次

1. 緒言	1
2. JAEA-AMS の概要	2
3. 標準物質	7
4. AMS 測定用試料の作製	8
5. ヨウ素同位体比の計算方法	10
6. 実験	12
6.1 再現性と精度	12
6.2 正確さ	23
6.3 検出限界	24
6.3.1 メモリー効果	24
6.3.2 市販試薬中のヨウ素同位体比	25
7. 二次標準物質のヨウ素同位体比	26
8. まとめ	30
謝辞	31
参考文献	32
付録	34

Contents

1. Introduction	1
2. Outline of JAEA-AMS	2
3. Standard material	7
4. Sample loading for AMS measurement	8
5. Calculation for iodine isotopic ratio	10
6. Experimental	12
6.1 Reproducibility and precision	12
6.2 Accuracy	23
6.3 Detection limit	24
6.3.1 Memory effect	24
6.3.2 Iodine isotopic ratio in commercial reagent	25
7. Iodine isotopic ratio in sub standard	26
8. Conclusion	30
Acknowledgement	31
References	32
Appendix	34

1. 緒言

ヨウ素の同位体は数種類の短寿命放射性同位体 (^{125}I , ^{131}I ...) と長寿命放射性同位体(^{129}I) 及び安定同位体 (^{127}I) からなる。長寿命放射性同位体 ^{129}I の半減期は 1570 万年と長く、天然には ^{129}Xe と宇宙線の核反応により、また ^{238}U の自発核分裂によって存在している。人工的にはチエルノブイル事故や、英国のセラフィールドや仏国のラ・アーグ等の核燃料再処理工場から ^{129}I が環境中に放出されている。 ^{129}I は長寿命であり環境中ではほとんど減衰しないため長期にわたり監視する必要がある。

今まで ^{129}I の分析は中性子放射化分析方法 (NAA: Neutron Activation Analysis) を中心に行われてきた。この分析方法は $^{129}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{130}\text{I}$ と $^{127}\text{I}(\text{n}, 2\text{n})^{126}\text{I}$ の核反応を利用し、 ^{130}I の放射線を測定することで ^{129}I を定量するという方法である。この方法による検出限界はヨウ素同位体比で $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 10^{-9} \sim 10^{-10}$ である^(1,2)。この検出限界レベルは原子力施設周辺の環境モニタリングには適しているものの、様々な環境試料を取り扱うことを考えると満足いくものではない。日本原子力研究所（現日本原子力研究開発機構）の物質科学部では、開発した多重ガンマ線検出器 (GEMINI)⁽³⁾を中性子放射化分析に用いることにより低レベルの ^{129}I の定量に成功している⁽⁴⁾。この方法による検出限界は $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 10^{-13}$ であり、十分な感度を示している。しかし半減期 12.3 時間の ^{130}I を測定しているため十分なカウント数を得ることができず、また放射化分析であるため、放射性廃棄物の発生や被曝の問題がある。

近年、誘導プラズマ結合質量分析計 (ICP-MS: Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer) を利用した ^{129}I 測定が報告されている⁽⁵⁾。この方法ではプラズマを作る際必要となるアルゴンガス中に含まれる ^{129}Xe が妨害となり、検出限界が $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}=10^{-6}$ である。そこでアルゴンプラズマを使わず、窒素プラズマを使用したマイクロ波誘導プラズマ質量分析計 (MIP-MS: Microwave Induced Plasma Mass Spectrometer) で ^{129}I を測定方法が報告されているが⁽⁶⁾、検出限界は $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}=10^{-7}$ であった。質量分析法は非常に簡便であり放射性廃棄物や被曝の問題がないため D. Elmore らは、加速器質量分析装置 (AMS: Accelerator Mass Spectrometer)を使用した ^{129}I の測定を試み高感度で ^{129}I を測定することに成功した⁽⁷⁾。これ以降、AMS による ^{129}I 測定が世界各国で行われるようになった。

日本において AMS で ^{129}I の測定に成功しているのは東京大学原子力研究総合センター⁽⁸⁾と日本原子力研究開発機構（原子力機構）むつ事業所の加速器質量分析装置⁽⁹⁾ (JAEA-AMS: Japan Atomic Energy Agency – Accelerator Mass Spectrometer) である。本論文では原子力機構むつ事業所に設置されている加速器質量分析装置のヨウ素ラインの性能についてまとめた。

2. JAEA-AMS の概要

原子力機構むつ事業所の AMS (JAEA-AMS) はオランダ High Voltage Engeneering Europa 製の model-4130 AMS⁽¹⁰⁾で最大加速電圧 3MV の加速器に 2 本の独立したビームラインを設置している。1 本のビームラインを放射性炭素同位体比用として⁽¹¹⁾、もう一つのビームラインを放射性ヨウ素同位体比用のビームラインとして調整している⁽⁹⁾。図 1 に JAEA-AMS の写真を、図 2 に詳細なイラストを示す。ヨウ素用のイオン源は HVEE 製 model 846B の Cs スパッター型負イオン源を装備しており、このイオン源には最大 59 個のサンプルを装着することができる。負イオン質量分析部 (図 3) は 54° の静電アナライザ ($E / \Delta E = 400$) と 90° 入射電磁石 ($M / \Delta M = 400$) を用いて二重収束型の質量分析を行っている。この 90° 入射電磁石はバウンサー機構を有しており、マグネットチャンバーに高电压を掛けることにより ^{129}I と ^{127}I を逐次入射している。通常測定においては ^{129}I を 8ms、 ^{127}I を 2ms、それぞれ同位体を入射する際、待ち時間を 0.1ms おき加速器に入射する。

この AMS で使用しているタンデム型加速器はコッククロフト・ワルトン型昇圧機構を有し、最大加速電圧は 3MV である。ヨウ素同位体比測定時においては 2.5MV に設定している。加速されたヨウ素イオンは加速器中央に設置されているストリッパー カナル中のアルゴンガスに衝突することにより電子を剥ぎ取られ、正のヨウ素イオンとなる。加速器やストリッパーに関する詳細は他の文献⁽¹²⁾に記載されている。加速されたヨウ素イオンは高分解能の 115° 分析電磁石 ($M / \Delta M = 2000$) で ^{127}I と ^{129}I に分離する (図 4)。この電磁石の直後に設置されているファラディカップにより、 $^{127}\text{I}^{5+}$ は電流値として測定される。 ^{129}I はさらに 65° 静電ディフレクター ($E / \Delta E = 400$) によりエネルギー分別が行われる。荷電変換で 5+を選択した場合、 $^{129}\text{I}^{5+}$ ($M/e=25.8$) 付近の妨害イオンは主に $^{103}\text{Rh}^{4+}$ ($M/e=25.75$)、 $^{52}\text{Cr}^{2+}$ ($M/e=26.0$) であるが⁽¹³⁾、高分解能の分析電磁石、静電ディフレクターを採用することによりこれらの妨害イオンを除去するシステムになっている⁽¹⁴⁾。

最終的に ^{129}I の検出と同定は飛行時間型検出器(TOF: Time of flight)で行う。図 5 に TOF 検出器の写真を図 6 に測定原理を示したイラストを示す。TOF に入射して来たイオンは炭素薄膜 ($20\mu\text{g}/\text{cm}^2$) を通過する時、二次電子を発生させる。この 2 次電子は永久磁石によって、マイクロチャンネルプレート(MCP: Comstock 社製 model CP-640C/50F)に向かって飛行し、そこでスタートシグナルが作られる。炭素薄膜を通過したイオンは 1.5m 後方に設置してあるアルミニウム製のトッププレート (直径 400 mm) に到達し、2 次電子を放出する。この 2 次電子は TOF 検出器外側に設置してあるマグネットレンズによって絞られ、Stop 用の MCP に向けられ、そこで Stop 信号が作られる。Start 信号と Stop 信号の時間差を TAC (Time to Amplitude Converter) で出力する。TOF を使い ^{129}I を測定する多くの機関では Start 信号に MCP を使い、Stop 信号には表面障壁型の半導体検出器 (SSD: Solid - state detector) がしばしば使われた^(7, 13, 15, 16)。しかしこの方法では $^{127}\text{I}^{5+}$ の漏れ込みがあった場合、大電流が流れるため大きなダメージを受けるので、Start と Stop 共に MCP を採用することにより、安定な測定を可能とした。

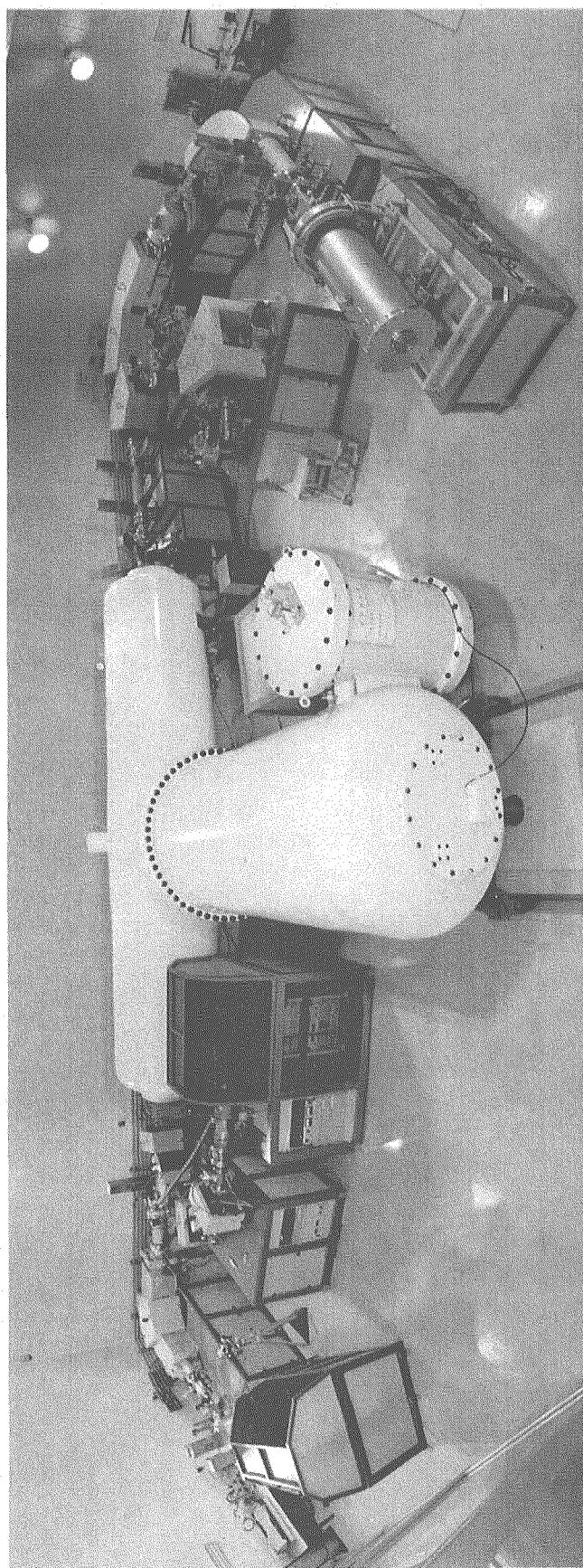


図1 日本原子力研究開発機構むつ事業所に設置してある加速器質量分析装置の全体写真

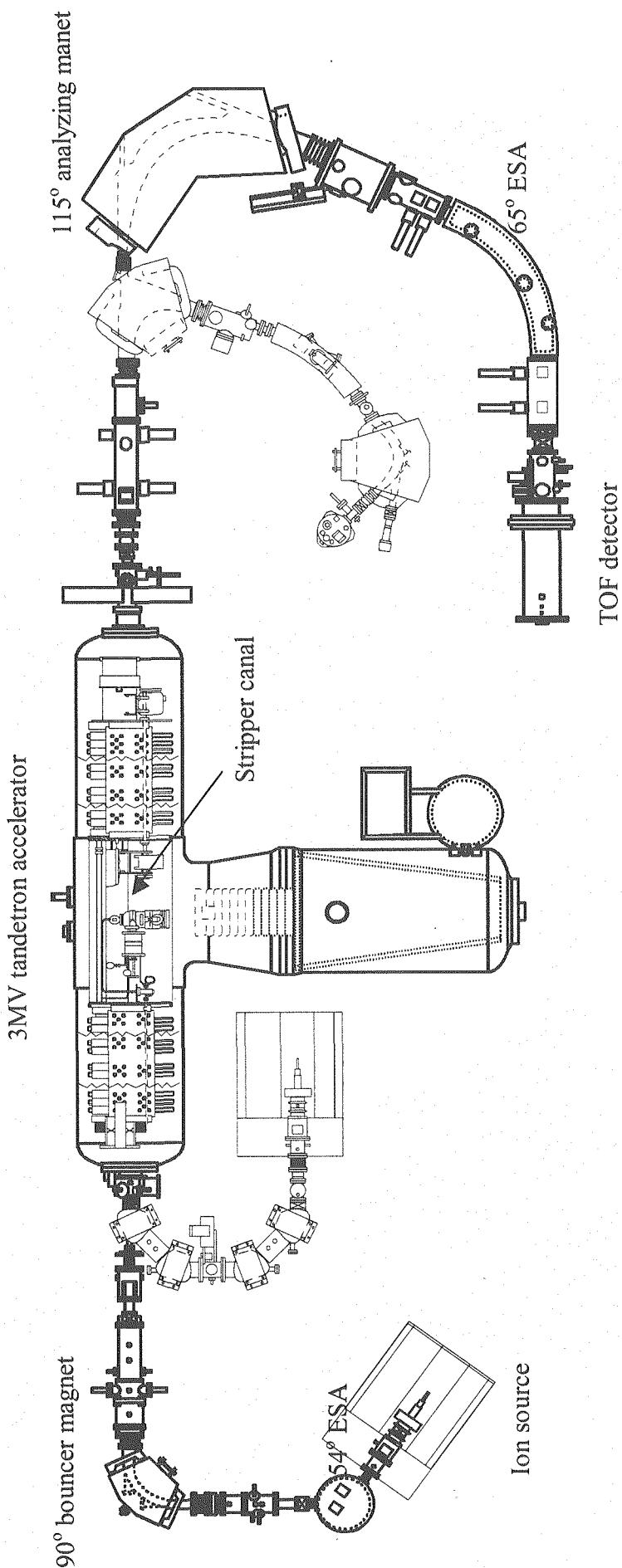


図2 日本原子力研究開発機構むつ事業所に設置してある加速器質量分析装置のイラスト
太線が放射性ヨウ素同位体比測定用のビームラインで細線が放射性炭素同位体比測定用のビームラインである。

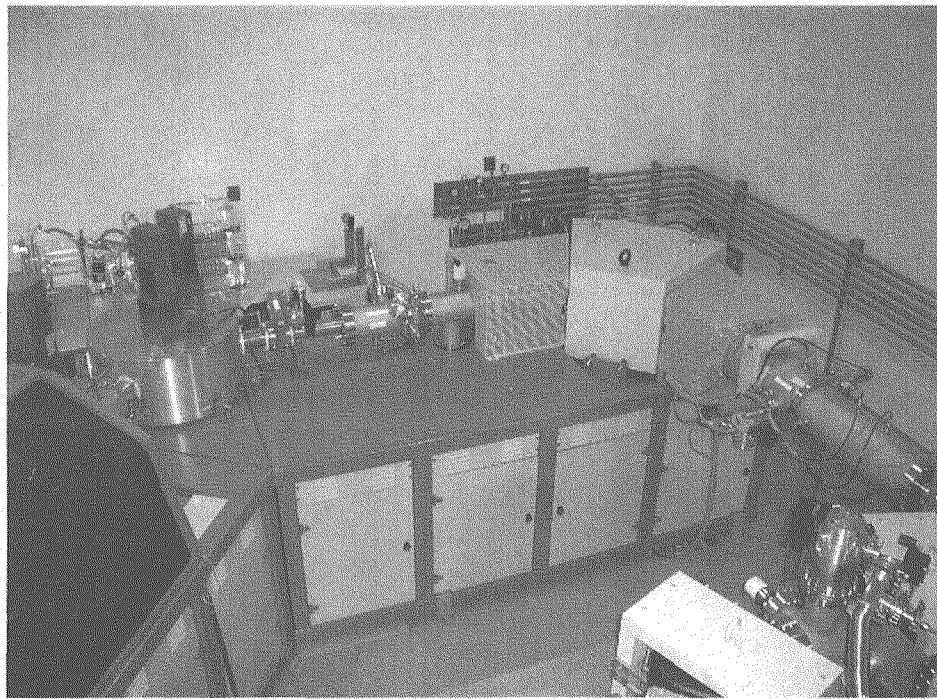


図3 負イオン質量分析部

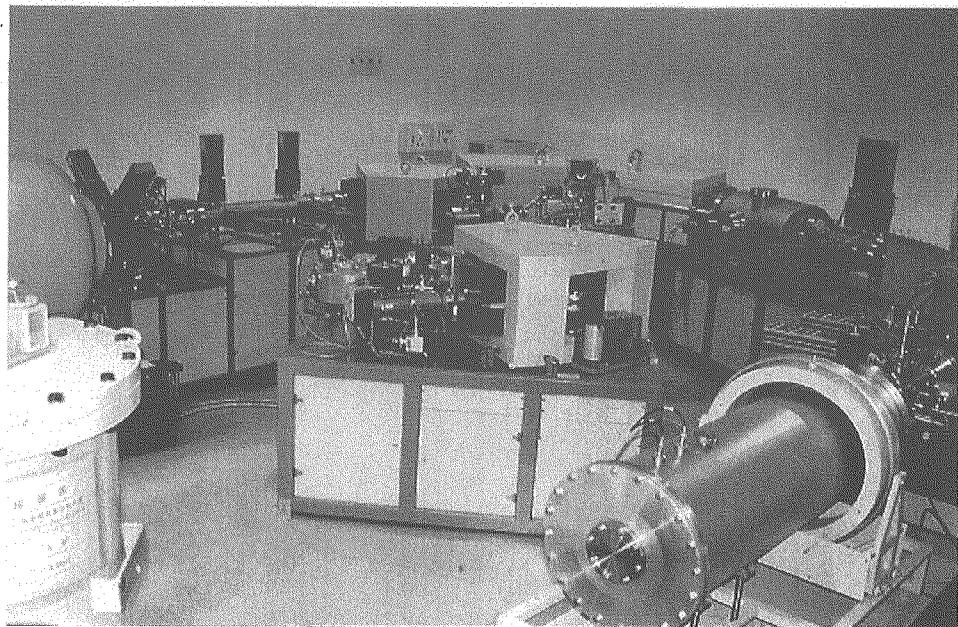


図4 高エネルギー質量分析部

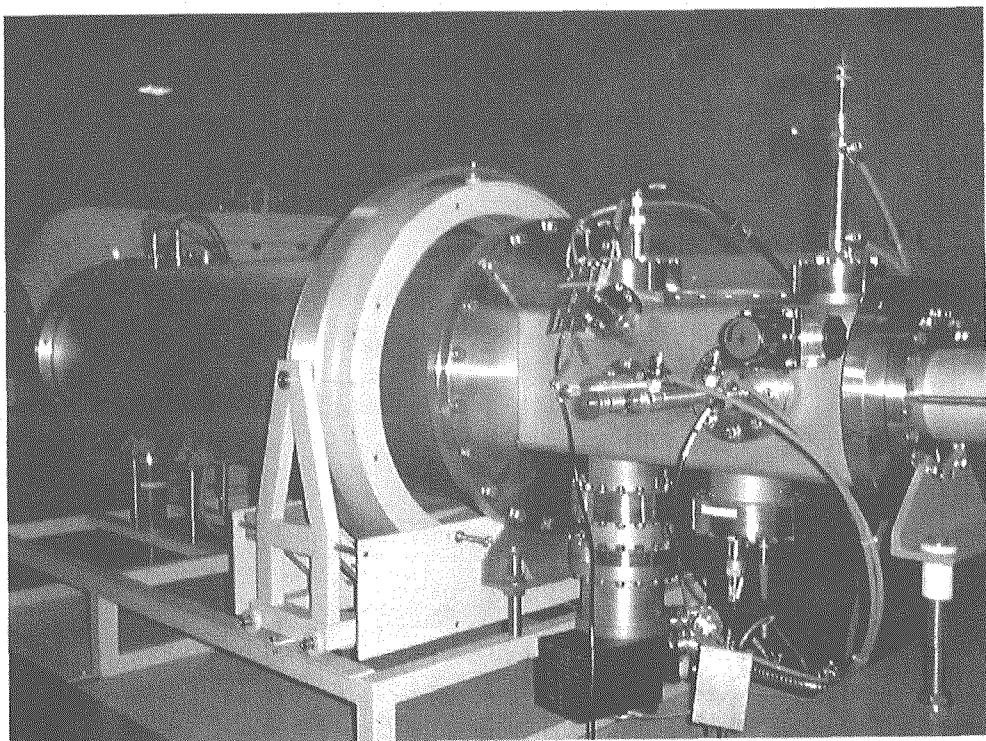


図5 飛行時間型検出器の写真

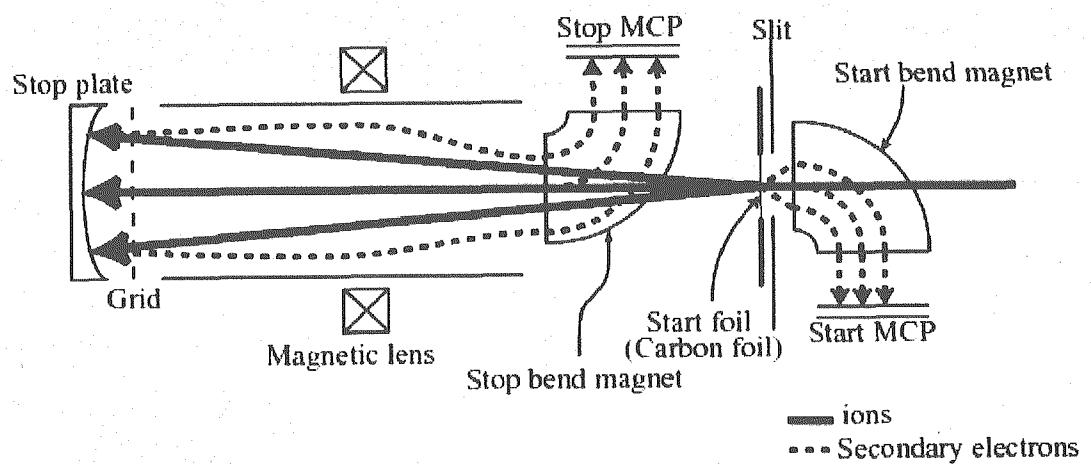


図6 飛行時間型検出器のイラスト

太線は入射してきたイオンを示し、点線は2次電子を示す。

3. 標準物質

ヨウ素ラインの性能評価を行うにあたり、4種類の標準物質を用意した。一つ目は National Institute of Standards & Technology (NIST)から入手した Standard Reference Material[®] (SRM) 4949C 標準溶液で、¹²⁹I濃度は 3451 Bq/g である。二つ目は東京大学の今村峰雄博士（現：国立歴史民族博物館）から譲り受けた標準溶液で、¹²⁹I濃度は 7.70×10^3 dpm/g (128 Bq/g) である。これらの標準溶液は AMS で測定するためには高濃度なので、高純度 KI (和光純薬 Lot #. DWM5991) を用いて、ヨウ素同位体比が 10^{-10} - 10^{-12} までに希釈した。希釈した標準溶液に AgNO₃ を加えることにより AMS 測定用の標準物質 AgI を作製した。三つ目は NIST から入手した SRM3230 で、ヨウ素同位体比が $(4.920 \pm 0.062) \times 10^{-10}$ の Level I と $(0.985 \pm 0.012) \times 10^{-12}$ の Level II の標準溶液である。これらも AgNO₃ とアンモニア溶液を直接加え AgI の標準物質とした。四つ目はトロント大学 IsoTrace 研究所で作製された AgI の標準物質である。

4. AMS 測定用試料の作製

測定用 AgI 試料は熱伝導率と電気伝導率を上げるために⁽¹⁷⁾、重量比で 2.5 倍のニオブ(Nb)粉末と混合する。図 7 に示すように、メノウ乳鉢を使い AgI の黄色と Nb の黒色が均一になるまで十分混合する。

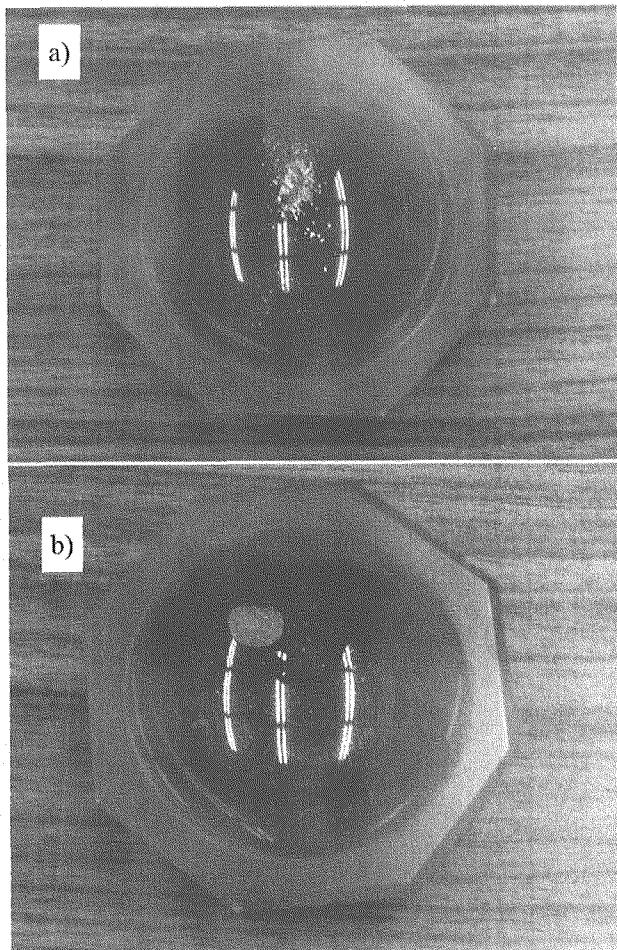


図 7 測定用試料の混合

- a) 混合前。黄色の AgI と黒色の Nb が見える。
- b) 混合後。黄色と黒が十分に混ざっている状態。

AMS でヨウ素同位体比を測定するためには、AgI の試料をターゲットピースに充填しなければならない。図 8 に示すターゲットピース中に測定用試料を詰めバックピンを挿入後、汚染を防ぐためにステンレス製のプレートを敷きターゲットプレス機にセットしプレスすることにより AMS 測定用試料を作成した。

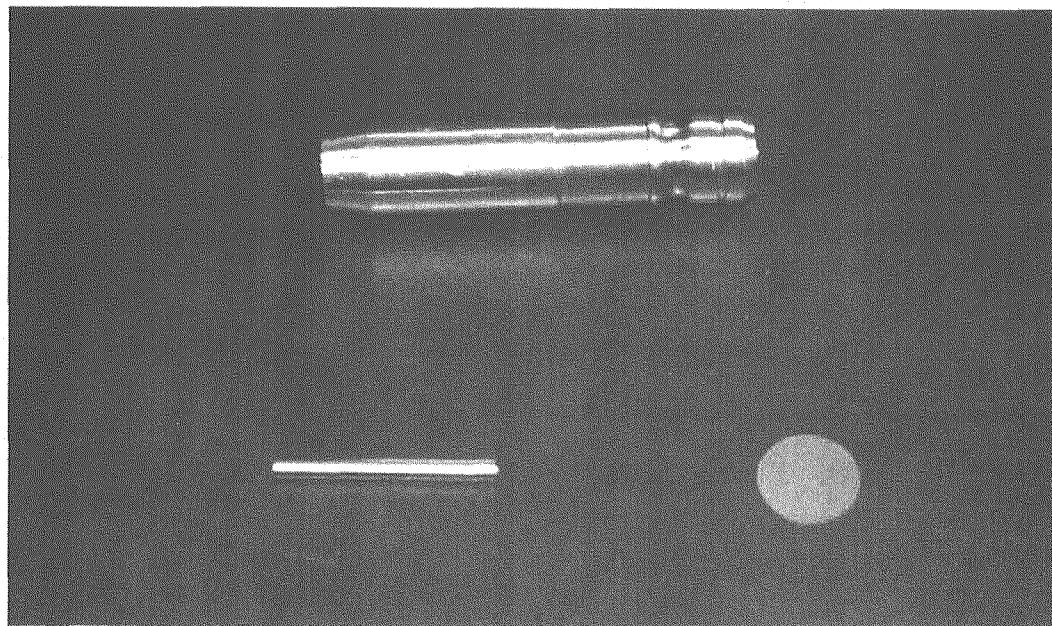


図 8 ターゲットピース

写真上がターゲットピース、左下がバックピン、右下がステンレス製プレート

5. ヨウ素同位体比の計算方法

AMS でヨウ素同位体比 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) を測定する場合は安定同位体(^{127}I)をファラデーカップにより電流値として測定し、放射性同位体(^{129}I)を TOF 検出器により検出する。

ヨウ素同位体比は逐次入射方式により測定されるため、 ^{129}I と ^{127}I の入射時間が異なるため、入射時間の補正を行わなければならない。そこで以下に示す計算式でヨウ素同位体比を求めた。

ヨウ素イオンの入射パラメーターを

T_{127} (^{127}I の入射時間)

T_{129} (^{129}I の入射時間)

T_{wait} (^{129}I 、 ^{127}I 入射前の待ち時間)

とすると

1 回の入射時間(T_{sweep})は

$$T_{sweep} = T_{127} + T_{129} + 2 \times T_{wait} \dots \quad (\text{I})$$

となる。

AMS によって測定された ^{127}I と ^{129}I の時間補正を行うと

$$^{127}\text{I}_{corrected} = I_{cup} \times \frac{T_{sweep}}{T_{127}} \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \quad (\text{II})$$

$$^{129}\text{I}_{corrected} = C_{TOF} \times \frac{T_{sweep}}{T_{129}} \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \quad (\text{III})$$

ここで I_{cup} は分析電磁石後のファラデーカップの電流値、 C_{TOF} は TOF 検出器でのカウント数である。

ヨウ素同位体比は

$$R_{measured} = \frac{^{129}\text{I}_{corrected}}{T_{total} \left(\frac{^{127}\text{I}_{corrected}}{q \times e} \right)} = q \times \frac{^{129}\text{I}_{corrected}}{T_{total} \left(\frac{^{127}\text{I}_{corrected}}{e} \right)} \dots \dots \dots \dots \dots \dots \quad (\text{IV})$$

によって求めることができる。ここで q は荷電変換後の荷電数、 e は電気素量、 T_{total} は全測定時間で、何回 sweep を繰り返したかを示し $T_{total} = N \times T_{sweep}$ で計算できる。我々は 6000 sweep を 1 block と定義し、block 数で測定時間を決めている。すなわち

$$T_{total} = n \times T_{block} = 6000 \times T_{sweep} \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \quad (\text{V})$$

6. 実験

6.1 再現性と精度

再現性と精度を評価するための性能評価試験はキール大学⁽¹⁸⁾や名古屋大学⁽¹⁹⁾で行われたアクセプタンステストと同様の試験を行った。測定用試料は IsoTrace 研究所の標準物質を使用した。この標準物質を 4~5 個のターゲットに取り分けた。各ターゲットにつき 4~5 回測定（1 測定約 10 分）した。今までに行われた性能評価試験の結果を表 1~4 と図 9~13 に示す。この性能評価試験の最初の 2 回（表 1、2 及び図 9、10）はアクセプタンステストを兼ねている。MCP の交換、再アライメント及び TOF 検出器の各種パラメーターを再調整し、2003 年 5 月 2 日（表 3 及び図 11）と 2004 年 5 月 14 日（表 4 及び図 12）に再度、同様の性能試験を行った。2004 年 5 月 14 日の測定結果では、最初に測定した値が高く測定されている。これは長時間の使用により試料表面が汚染したと考えられる。そこで各ターゲットの最初の測定値を棄却し再評価（図 13）を行った。

各ターゲットに対する繰り返し測定の平均値を用いて、各試験における 4~5 個のターゲットの平均値の相対標準偏差を求め、再現性(Reproducibility)と定義した。また、各試験における全ての測定値から得られる相対標準偏差を精度(Precision)と定義した。

全 4 回行った性能評価試験の精度及び再現性を表 5 及び図 14 にまとめた。MCP 交換及び再アライメントを終えた 2003 年以降、精度及び再現性とも良い結果を示した。

表 1 性能評価試験 I First day of acceptance test (July 17, 2000)

Sample ID	Run #	^{127}I current (nA)	^{129}I (counts)	Poisson statistic	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I} (\times 10^{-11})$
#17	1	367.47	15086	0.795	7.179
	2	275.24	12306	0.901	7.461
	3	282.51	12439	0.896	7.348
	4	318.58	17932	0.747	7.368
	5	266.35	11760	0.922	7.369
#13	1	156.56	7156	1.18	7.629
	2	148.23	6660	1.23	7.498
	3	139.27	6228	1.27	7.464
	4	152.67	6740	1.22	7.367
	5	146.69	6658	1.23	7.575
#15	1	109.49	4924	1.43	7.505
	2	127.93	5883	1.30	7.675
	3	165.75	7404	1.16	7.455
	4	164.14	7265	1.17	7.387
	5	190.08	8500	1.08	7.463
#16	1	45.80	2053	2.21	7.482
	2	58.42	2710	1.92	7.741
	3	87.19	4047	1.57	7.747
	4	101.15	4537	1.48	7.486
	5	109.53	5073	1.40	7.730

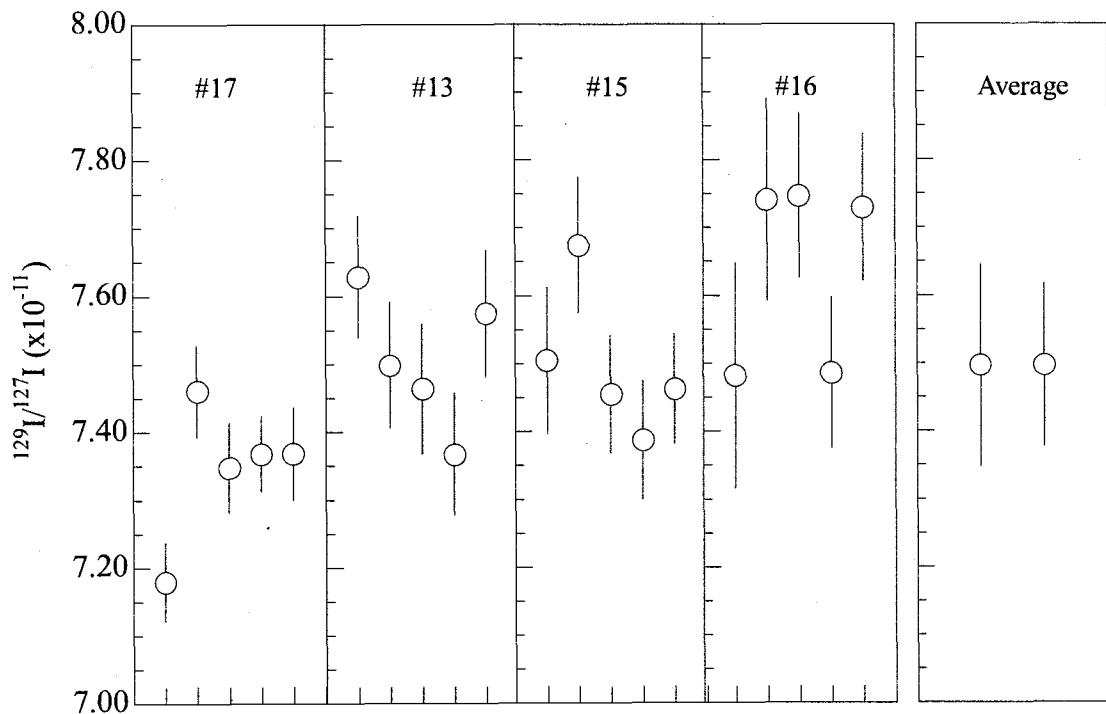


図9 2000年7月17日に行われた性能評価試験（アクセプタンステスト）
IsoTrace 研究所の標準物質を4個のターゲットに取り分け、各ターゲット
に付き5回測定した。Average欄内に示してある、左側の誤差範囲は精度
(Precision) を示し、右側の誤差範囲は再現性 (Reproducibility) を示す。

表2 性能評価試験II Second day of acceptance test (July 18, 2000)

Sample ID	Run #	^{127}I current (nA)	^{129}I (counts)	Poisson statistic	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I} (\times 10^{-11})$
#19	1	137.77	5747	1.32	6.961
	2	114.46	4872	1.43	7.103
	3	135.34	5933	1.30	7.316
	4	148.67	6436	1.25	7.225
#20	1	131.00	5644	1.33	7.190
	2	104.15	4510	1.49	7.226
	3	90.63	3863	1.61	7.112
	4	146.40	4888	1.43	7.220
#21	1	218.75	9274	1.04	7.075
	2	185.94	8136	1.11	7.302
	3	143.57	6338	1.26	7.367
	4	146.40	6422	1.25	7.321
#22	1	143.65	6247	1.27	7.257
	2	186.13	8134	1.11	7.293
	3	188.00	8131	1.11	7.218
	4	178.32	7643	1.14	7.153

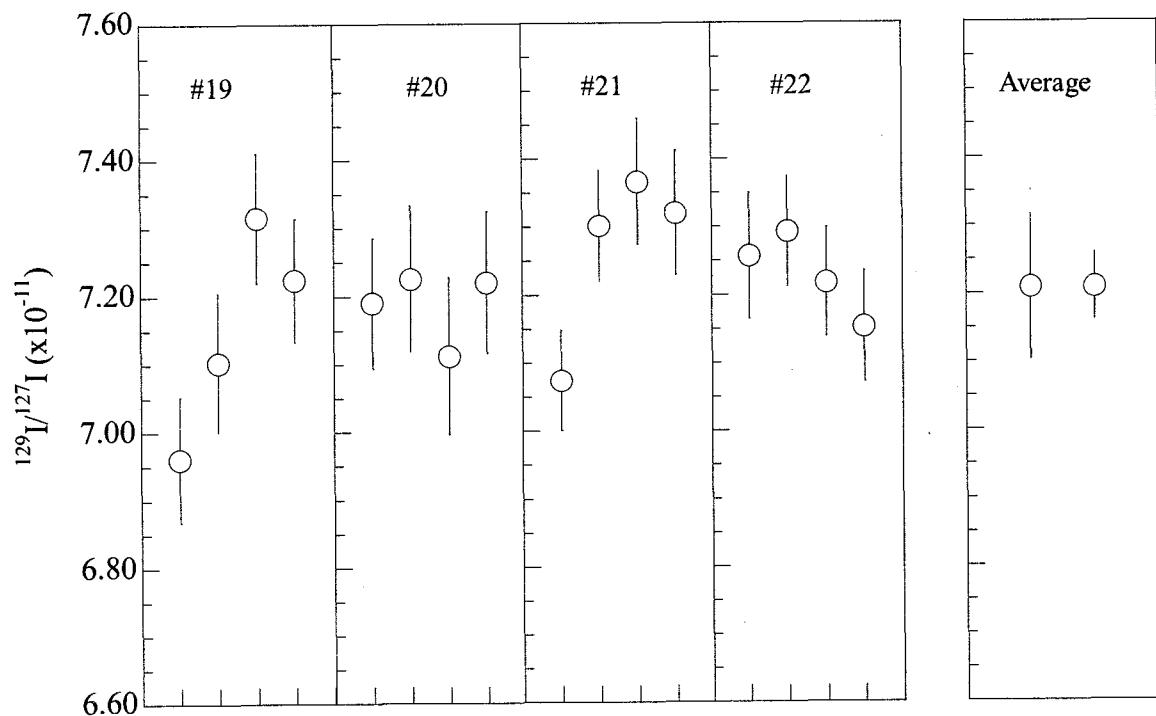


図 10 2000 年 7 月 18 日に行われた性能評価試験(アクセプタンステスト)
IsoTrace 研究所の標準物質を 4 個のターゲットに取り分け、各ターゲット
に付き 4 回測定した。Average 欄内に示してある、左側の誤差範囲は精度
(Precision) を示し、右側の誤差範囲は再現性 (Reproducibility) を示す。

表3 性能評価試験Ⅲ (May 2, 2003)

Sample ID	Run #	^{127}I current (nA)	^{129}I (counts)	Poisson statistic	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I} (\times 10^{-11})$
#1	1	231.09	14048	0.953	7.957
	2	271.93	16372	0.882	7.871
	3	297.87	18175	0.838	7.979
	4	318.42	19372	0.811	7.965
#2	1	273.88	16231	0.886	7.756
	2	284.89	17256	0.860	7.930
	3	287.10	17255	0.860	7.867
	4	310.40	18616	0.828	7.821
#3	1	265.36	15802	0.898	7.793
	2	279.27	16774	0.872	7.862
	3	298.75	18375	0.833	8.048
	4	311.78	18841	0.823	7.910
#4	1	235.72	14402	0.941	7.997
	2	226.78	13618	0.968	7.859
	3	243.39	14795	0.928	7.957
	4	275.98	16372	0.882	7.765
#5	1	254.10	15076	0.920	7.763
	2	261.95	15646	0.903	7.817
	3	306.63	18639	0.827	7.959
	4	331.17	19859	0.801	7.852

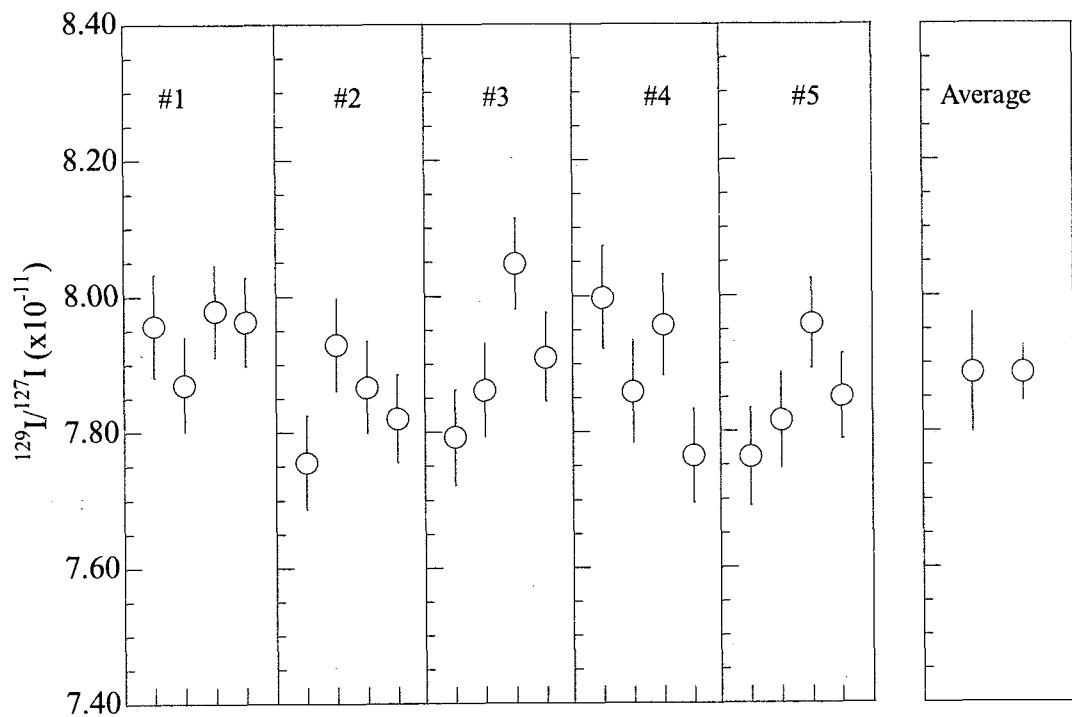


図 11 2003 年 5 月 2 日に行われた性能評価試験

IsoTrace 研究所の標準物質を 5 個のターゲットに取り分け、各ターゲットに付き 4 回測定した。Average 欄内に示してある、左側の誤差範囲は精度 (Precision) を示し、右側の誤差範囲は再現性 (Reproducibility) を示す。

表4 性能評価試験IV (May 14, 2004)

Sample ID	Run #	^{127}I current (nA)	^{129}I (counts)	Poisson statistic	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I} (\times 10^{-11})$
#1	1	187.76	11680	0.925	8.143
	2	190.59	11448	0.935	7.863
	3	214.17	12774	0.885	7.807
	4	227.33	13371	0.865	7.699
#2	1	179.35	10943	0.956	7.987
	2	198.99	11777	0.921	7.747
	3	205.73	12130	0.908	7.718
	4	236.19	14049	0.844	7.786
#3	1	191.18	11502	0.932	7.875
	2	214.28	12680	0.888	7.746
	3	214.76	12708	0.887	7.746
	4	250.09	14762	0.823	7.727
#4	1	181.58	11131	0.948	8.024
	2	209.00	12475	0.895	7.817
	3	217.26	12869	0.882	7.754
	4	247.19	14516	0.830	7.687
#5	1	201.23	12323	0.901	8.016
	2	227.34	13544	0.859	7.798
	3	242.86	14321	0.836	7.719
	4	280.04	16507	0.778	7.716

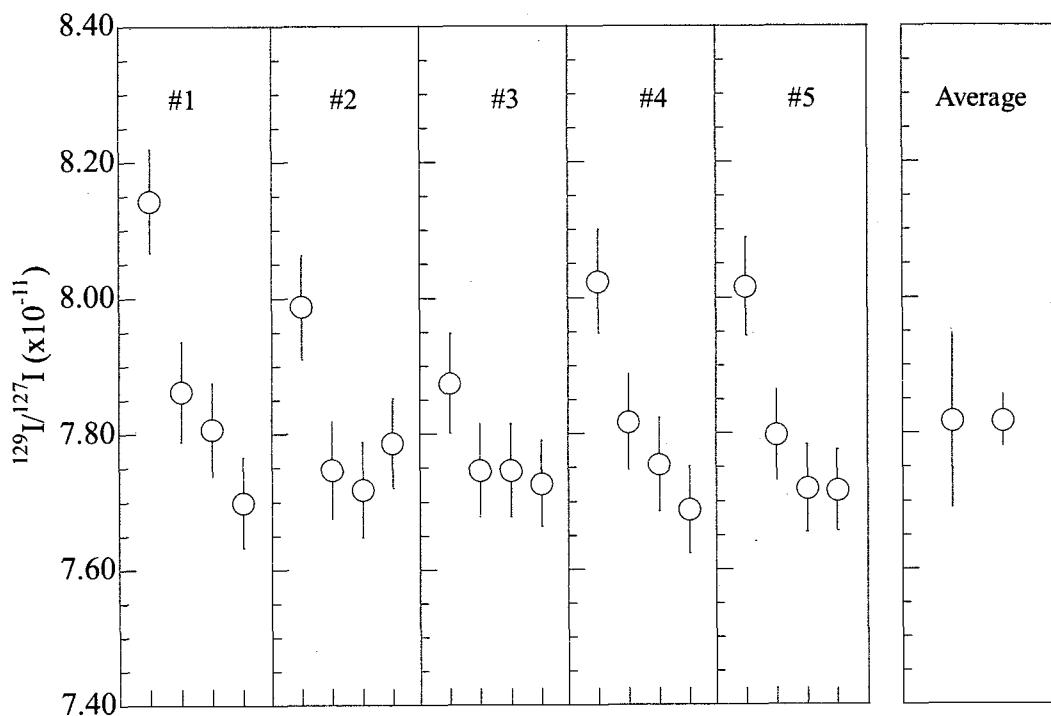


図 12 2004 年 5 月 14 日に行われた性能評価試験

IsoTrace 研究所の標準物質を 5 個のターゲットに取り分け、各ターゲットにつき 4 回測定した。Average 欄内に示してある、左側の誤差範囲は精度 (Precision) を示し、右側の誤差範囲は再現性 (Reproducibility) を示す。

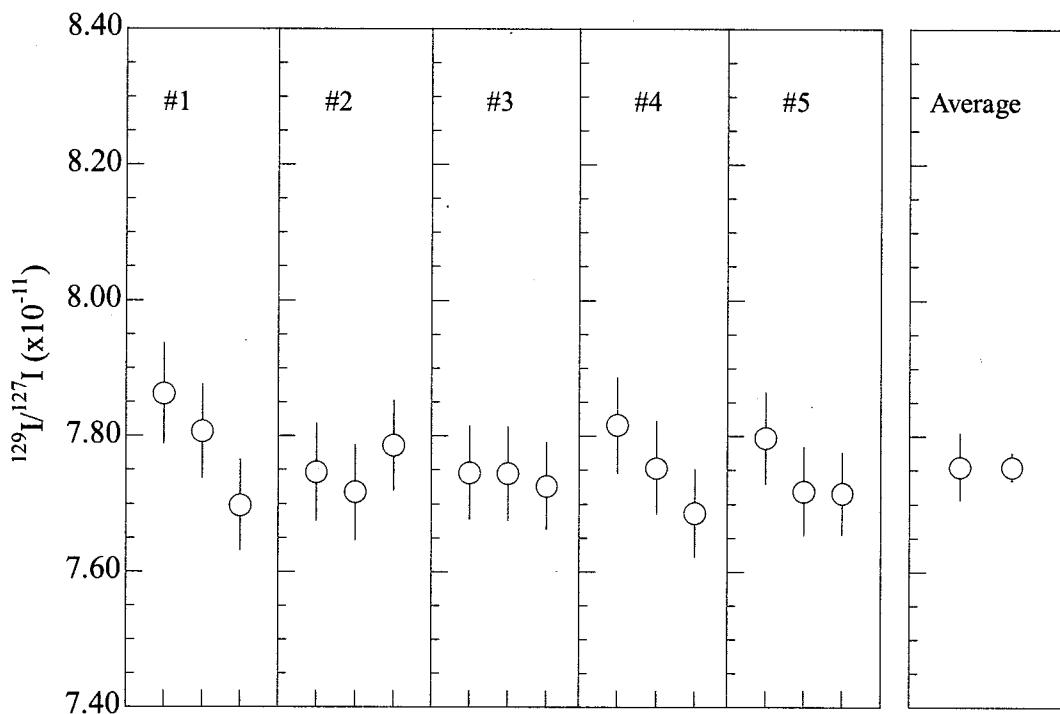


図 13 2004 年 5 月 14 日に行われた性能評価試験(表面汚染を考慮した場合)

IsoTrace 研究所の標準物質を 5 個のターゲットに取り分け、各ターゲットに付き 4 回測定したが表面汚染を考慮し最初の測定を棄却した。Average 欄内に示してある、左側の誤差範囲は精度 (Precision) を示し、右側の誤差範囲は再現性 (Reproducibility) を示す。

表 5 性能評価試験における精度(Precision)と再現性(Reproducibility)

Date	Precision		Reproducibility	Remark
July 17, 2000	7.50±0.15	(2.0%)	7.50±0.12	(1.5%)
July 18, 2000	7.21±0.11	(1.5%)	7.21±0.05	(0.7%)
May 02, 2003	7.89±0.09	(1.1%)	7.89±0.04	(0.53%)
May 14, 2004	7.82±0.13	(1.6%)	7.82±0.04	(0.48%) 表面汚染を無視
	7.76±0.05	(0.6%)	7.76±0.02	(0.26%) 表面汚染を考慮

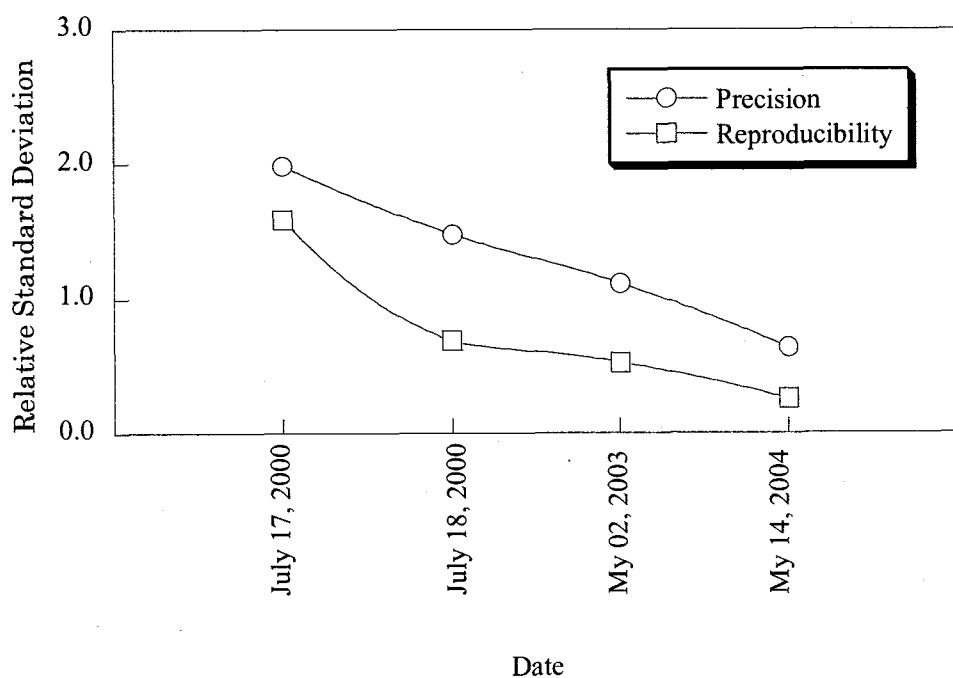


図 14 性能評価試験における精度(Precision)と再現性(Reproducibility)の推移

6.2 正確さ

正確さの確認には、NIST SRM 4949C 及び今村博士から譲り受けた ^{129}I 標準溶液を希釈し、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 10^{-10} - 10^{-12}$ までの様々な濃度を持つ標準試料を作製し測定した。この測定では AgI 試料が Nb との十分混合され、安定したビーム強度及び安定した測定値を得ることができることを検証するため、試料表面を 9 ポイントに分け測定を行った。各ポイントを約 1 分づつ測定し 9 ポイントの測定値を合計した値を 1 測定値とし、これを 6 - 7 回繰り返し測定し平均値と誤差を求めた。測定値はすべて NIST SRM3230 Level 1 を標準物質として用い規格化した。理論値と測定値の関係を図 15 に示す。 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 10^{-10} - 10^{-12}$ 範囲で 45° の直線に乗っており $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 10^{-10} - 10^{-12}$ 範囲で良い正確さを持っていることが確認された。

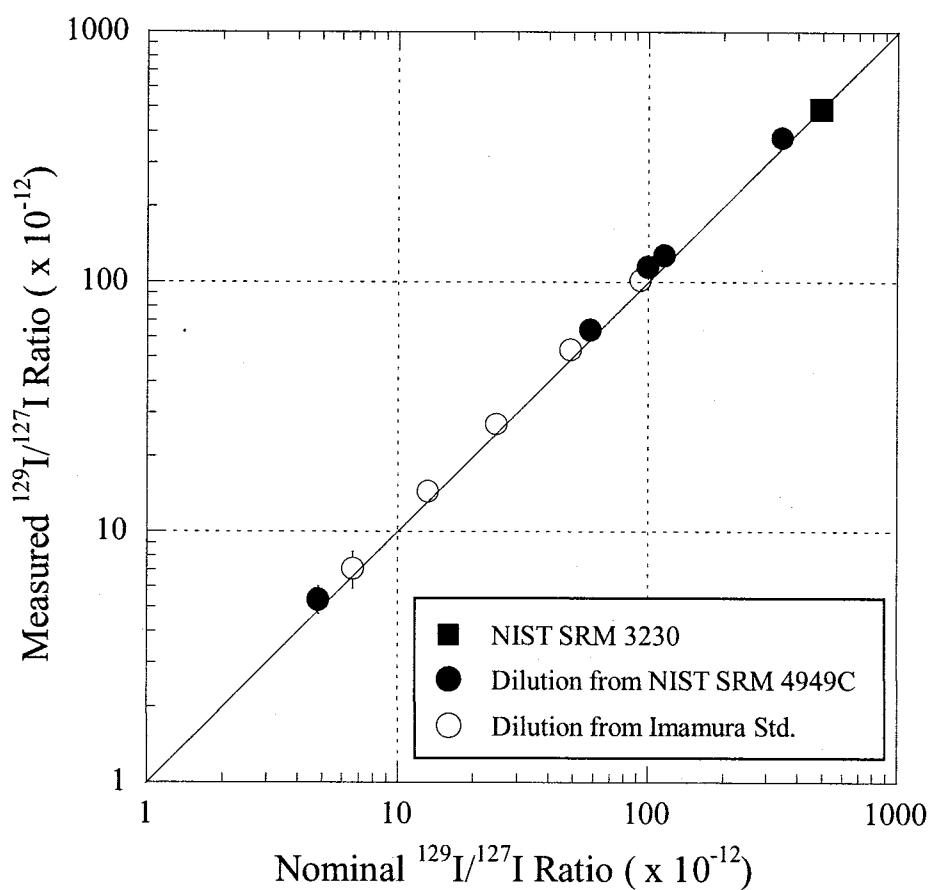


図 15 標準試料測定結果

6.3 検出限界

6.3.1 メモリー効果

^{129}I 濃度の低い($^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = \sim 10^{-13}$) 市販試薬の AgI 中のヨウ素同位体比を 2 回測定した時の測定値の時間変動を図 16 に示す。測定開始時に高いヨウ素同位体比が観測され時間とともに減少し、測定開始から 40 分以降に安定した測定値を示した。これはイオン源内で試料表面が汚染されたためと考えられる。この原因としては 2 つの可能性がある。一つは高レベルの ^{129}I を測定する際、イオン源でセシウムによりイオン化したヨウ素イオンがすべてビームラインへ引き出されず、イオン源内に飛散したものが他の試料表面に付着したこと、もう一つはヨウ素自身が持つ揮発性により、同時にイオン源内にセットした高レベルの同位体比を持つサンプルから揮発し他の試料表面に付着した可能性である。そこで測定結果からヨウ素同位体比を計算する際は測定開始から 30 分までのデータを削除し、40 分以降のデータからヨウ素同位体比を計算することにした。

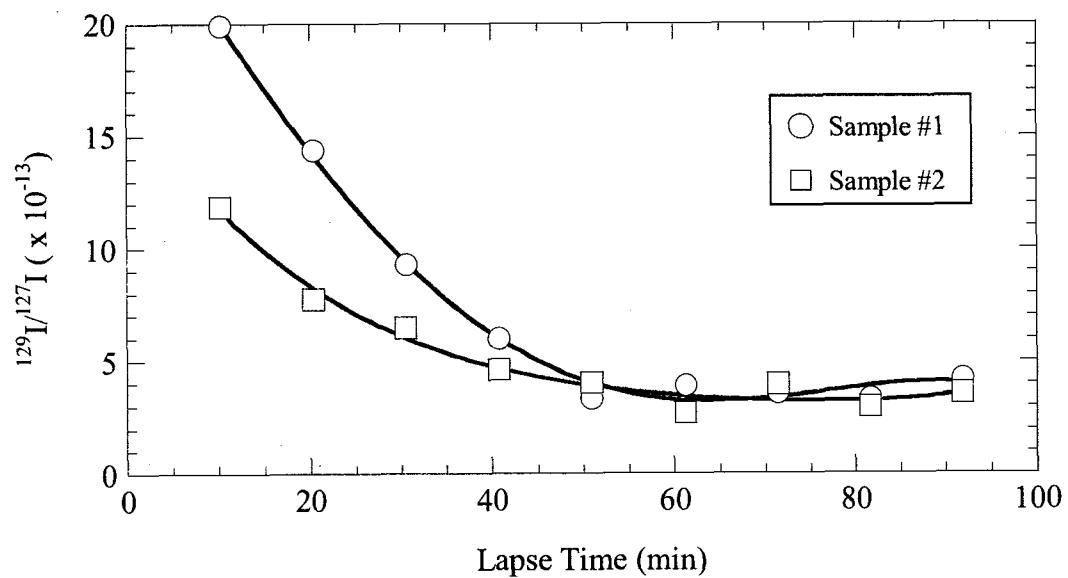


図 16 測定時におけるヨウ素同位体比の変動

6.3.2 市販試薬中のヨウ素同位体比

$^{129}\text{I-free}$ の試料は存在しないため⁽²⁰⁾、市販試薬を使い検出限界を推測した。使用したサンプルは関東化学社製の AgI (Lot. #104D2C42) である。6 回測定した結果は $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = (4.4 \pm 0.2) \times 10^{-13}$ であった。またこの時得られた TOF スペクトルを図 17 に示す。このスペクトルは 90 分測定し、測定開始からの 30 分までのデータを削除したものである。実質 60 分の測定で、約 150 counts 得られた。またこの ^{129}I ピーク周辺に妨害となるピークが見られないことからこのことから JAEA-AMS ヨウ素ラインの検出限界はこの値より 1 桁以上下げることが可能であると考えられる。

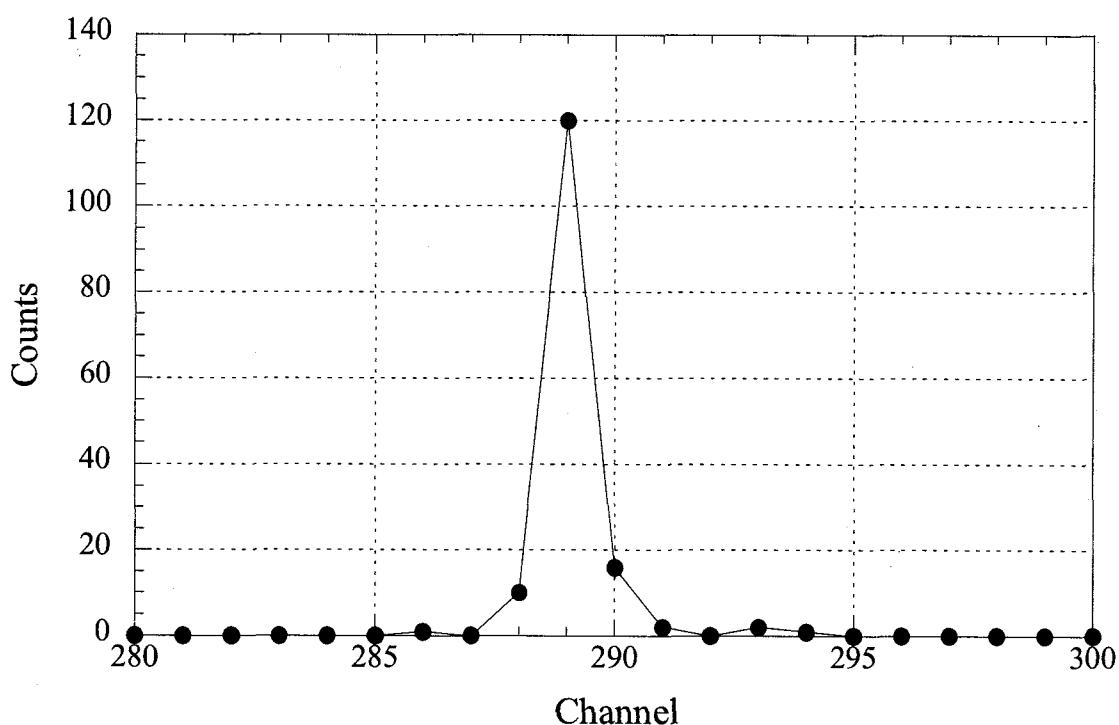


図 17 市販試薬測定時の TOF スペクトル

7. 二次標準物質のヨウ素同位体比

2003 年低レベル用 ^{129}I 標準物質が NIST から発売された。今まで ^{129}I 標準物質は NIST SRM 4949C や Amersham A2255 等が使用されてきたが、これらの標準物質は AMS で測定するためには高濃度のため希釈する必要があり、今後は利便性を考慮すると NIST SRM3230 が国際的な標準物質になると考えられる。しかしこの NIST SRM3230 は高額で AgI を合成しても 10mg 程度しか作製できないため、数回しか測定できない。そこで今までに原子力機構むつ事業所で使用してきた 3 つの標準物質について、NIST SRM3230 Level 1 (nominal ratio: $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = (4.920 \pm 0.062) \times 10^{-10}$) で比較測定し規格化した。

一つ目の標準物質は Iso Trace Lab. の標準物質で 2004 年 11 月から 2005 年 2 月にかけて 5 回測定した。測定結果を図 18 及び表 6 に示す。5 回測定の結果は誤差範囲内で一致していたので、加重平均を取りこの標準物質の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は $(1.21 \pm 0.01) \times 10^{-10}$ と値付けられた。二つ目の標準物質 Standard No.3K は NIST SRM 4949C から希釈したものである。この標準物質は NIST SRM 3230 で値付けされた Iso Trace Lab. の標準物質と比較測定した。2003 年 5 月から 2005 年 2 月までの 12 回の測定結果を図 19 及び表 7 に示す。12 回測定の結果は誤差範囲内で一致したので、加重平均を取りこの標準物質の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は $(7.22 \pm 0.03) \times 10^{-11}$ と値付けられた。三つ目の標準物質は東京大学の今村峰雄博士から譲り受けた標準溶液を希釈したもので、Standard No. 3K と同様に Iso Trace Lab. の標準物質と比較測定した。2003 年 5 月から 2005 年 1 月までの 7 回の測定結果を図 20 及び表 8 に示す。7 回測定の結果は誤差範囲内で一致した、加重平均を取りこの標準物質の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は $(2.77 \pm 0.03) \times 10^{-11}$ と値付けした。

これらの NIST SRM 3230 で規格化した標準物質を今後ヨウ素同位体比測定時における二次標準物質とし使用する予定である。

表 6 Iso Trace Lab. 標準物質の測定結果

Run #	測定日	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I} (\times 10^{-10})$	相対標準偏差 (%)
1	2004/11/25	1.22 ± 0.02	1.5
2	2004/11/30	1.20 ± 0.02	2.0
3	2005/01/25	1.22 ± 0.02	2.0
4	2005/02/01	1.23 ± 0.03	2.5
5	2005/02/07	1.21 ± 0.02	2.0
Weighted Average		1.21 ± 0.01	0.85

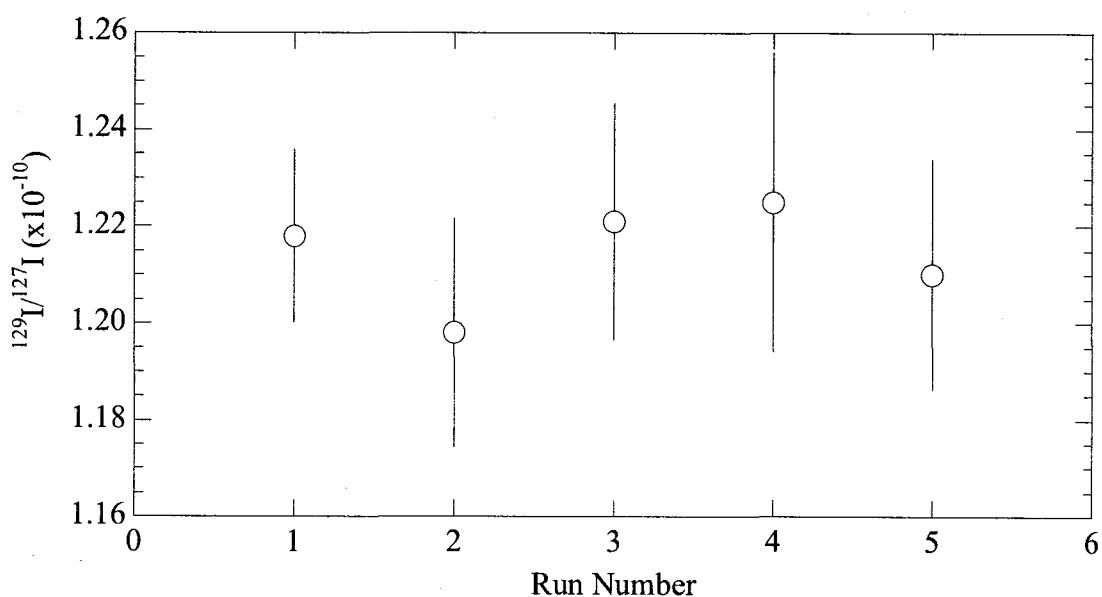


図 18 Iso Trace Lab. 標準物質の測定結果

表 7 Standard No.3K 標準物質の測定結果

Run #	測定日	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I} (\times 10^{-11})$	相対標準偏差 (%)
1	2003/05/13	7.30 ± 0.19	2.62
2	2003/05/13	7.23 ± 0.15	2.10
3	2003/05/13	7.33 ± 0.16	2.12
4	2003/05/13	7.25 ± 0.12	1.59
5	2003/05/13	7.20 ± 0.10	1.42
6	2003/05/21	7.24 ± 0.14	1.89
7	2003/05/21	7.16 ± 0.12	1.64
8	2003/05/21	7.24 ± 0.09	1.18
9	2003/05/21	7.16 ± 0.13	1.86
10	2003/05/21	7.22 ± 0.12	1.57
11	2003/05/21	7.23 ± 0.11	1.46
12	2005/02/07	7.10 ± 0.20	2.76
Weighted Average		7.22 ± 0.03	0.49

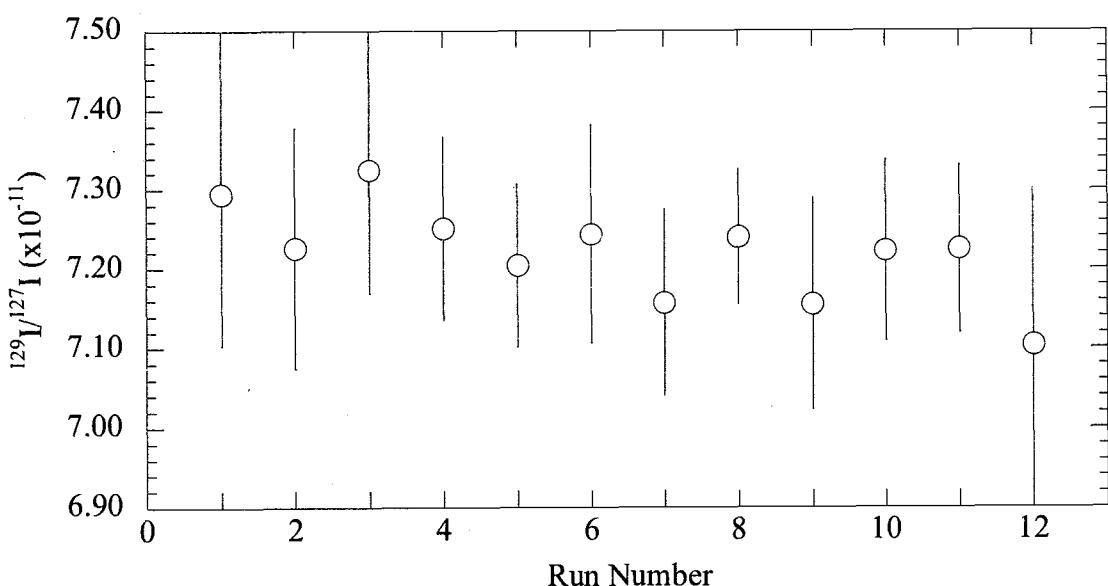


図 19 Standard No.3K 標準物質の測定結果

表 8 Standard No.3i 標準物質の測定結果

Run #	測定日	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I} (\times 10^{-11})$	相対標準偏差(%)
1	2003/05/13	2.69 ± 0.05	1.91
2	2003/05/27	2.82 ± 0.08	2.68
3	2003/05/28	2.84 ± 0.08	2.93
4	2003/06/10	2.76 ± 0.08	2.79
5	2003/06/11	2.78 ± 0.06	2.31
6	2004/11/25	2.74 ± 0.07	2.51
7	2005/01/25	2.85 ± 0.07	2.44
Weighted Average		2.77 ± 0.03	0.9

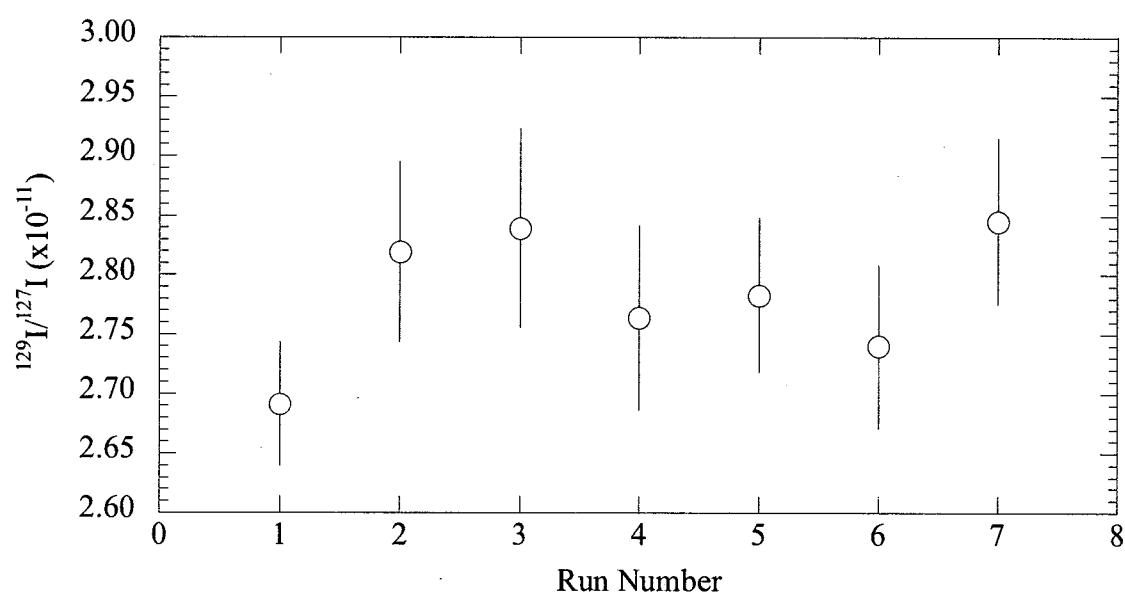


図 20 Standard No.3i 標準物質の測定結果

8. まとめ

日本原子力研究開発機構むつ事業所に設置されている加速器質量分析装置は平成9年4月に導入された。ヨウ素同位体比測定用ビームラインは平成12年7月にアクセプタンステストを終了した後、真空時におけるスリットの閉鎖や MCP のひび割れによるシグナルの未検出等のトラブルに見舞われたが再調整及び再アライメント後、平成15年5月から定常測定を開始した。

アクセプタンステスト時に 2.0~1.5% であった精度は再調整後及び再アライメント後 0.6%まで良くなり、再現性もアクセプタンステスト時に 1.5%~0.7% であったが、現在は 0.26% まで向上した。様々なヨウ素同位体比を持つ標準試料を測定した結果、ヨウ素同位体比が 10^{-10} から 10^{-12} の間において理論値と測定値が良く一致し、測定値の信頼性が確認された。市販試薬を用いてヨウ素ラインの検出限界を見積もったところ実質的には 10^{-13} 以下だった。二次標準物質を作製及び入手し NIST SRM3230 でヨウ素同位体比を決定した。Iso Trace Lab. の標準物質は 5 回測定し $(1.21 \pm 0.01) \times 10^{-10}$ 、Standard No.3K は 12 回測定し $(7.22 \pm 0.03) \times 10^{-11}$ 、Standard No3i は 7 回測定し $(2.77 \pm 0.03) \times 10^{-11}$ であった。今後、ヨウ素の測定にはこれらの 2 次標準物質を使用し測定する予定である。

この AMS ヨウ素ラインを整備することにより ^{129}I が高感度、高精度、短時間で測定可能になった。中性子放射化分析法による ^{129}I 測定では原子力施設周辺の環境モニタリングといった比較的高レベルの試料を対象としていたが、AMS を用いることで極低レベルの ^{129}I が測定可能となり、海水循環のトレーサー、ヨウ素自身の循環、 Chernobyl 事故における ^{131}I による被曝の再評価や放射性廃棄物中の濃度評価といった研究分野が拓けて来るであろう。

謝辞

本研究開発を実施するにあたり、加速器質量分析装置の運転及び保守に多大なご尽力を頂いた旧日本原子力研究所むつ事業所の水谷義彦氏、財団法人日本海洋科学振興財団の須藤一彦氏、北田慶信氏及び渡部幸也氏に、また貴重な助言を頂いた国立環境研究所の荒巻能史博士、日本原子力研究開発機構環境動態研究グループの伊藤集通博士、乙坂重嘉博士及び田中孝幸博士に深く感謝の意を表します。

測定用試料作製に多大なご協力を頂いた東洋建物管理株式会社の坂本信也氏、財団法人日本海洋科学振興財団の馬場正美氏に深く感謝の意を表します。また ^{129}I 標準溶液を提供して頂いた東京大学の今村峰雄博士（現：国立歴史民族博物館）に深く感謝の意を表します。

本研究の実施に多大なるご協力を頂いた旧日本原子力研究所海洋調査研究室の皆様及び日本原子力研究開発機構 AMS 管理課の皆様に感謝します。

参考文献

- (1) Muramatsu Y., S. Uchida, M. Sumiya and Y. Ohmomo: J. Radioanal. Nucl. Chem., 94, 329 (1985).
- (2) Oliver L. L., R. V. Ballad and O. K. Manuel: Health Phys., 42, 425 (1982).
- (3) Furuno K., M. Ooshima, T. Komatsubara, K. Furutaka, T. Hayakawa, M. Kidera, Y. Hatsukawa, M. Matsuda, S. Mitarai, T. Shizuma, T. Saitoh, N. Hashimoto, H. Kusakari, M. Sugawara and T. Morikawa: Nucl. Instr. and Meth., A421, 211 (1999).
- (4) Toh Y., Y. Hatsukawa, M. Oshima, N. Shinohara, T. Hayakawa, K. Kushita and T. Ueno: Health Phys., 83, 110 (2002).
- (5) Muramatsu Y. and S. Yoshida: J. Radioanal. Nucl. Chem., 197, 149 (1995).
- (6) 吉田美香, 渡辺均, 片桐裕実 and 赤津康夫: 動燃技報, 102, 53 (1997).
- (7) Elmore D., H. E. Gove, R. Ferraro, L. R. Kilius, H. W. Lee, K. H. Chang, R. P. Beukens, A. E. Litherland, C. J. Russo, K. H. Purser, M. T. Murrell and R. C. Finkel: Nature, 286, 138 (1980).
- (8) Matsuzaki H., C. Nakano, H. Yamashita, Y. Maejima, Y. Miyairi, S. Wakasa and K. Horiuchi: Nucl. Instr. and Meth., B223-224, 92 (2004).
- (9) Suzuki T., T. Aramaki, T. Kitamura and O. Togawa: Nucl. Instr. and Meth., B223-224, 87 (2004).
- (10) Gottdang A. and D. J. W. Mous: Nucl. Instr. and Meth., B123, 163 (1997).
- (11) Aramaki T., T. Mizushima, Y. Mizutani, T. Yamamoto, O. Togawa, S. Kabuto, T. Kuji, A. Gottdang, M. Klein and D. J. W. Mous: Nucl. Instr. and Meth., B172, 18 (2000).
- (12) Mous D. J. W., R. Koudijs, P. Koudijs, P. Dubbelman and H. A. P. v. Oosterhout: Nucl. Instr. and Meth., B62, 421 (1992).
- (13) Hatori S., M. Ohseki, H. Nawata, H. Matsuzaki, T. Misawa and K. Kobayashi: Nucl. Instr. and Meth., B172, 299 (2000).
- (14) Kilius L. R., X.-L. Zhao, A. E. Litherland and K. H. Purser: Nucl. Instr. and Meth., B123, 10 (1997).
- (15) Proctor I. D., J. R. Southon and M. L. Roberts: Nucl. Instr. and Meth., B92, 92 (1994).
- (16) Koslowsky V. T., H. R. Andrews, W. G. Davies and K. Murunaghan: Nucl. Instr. and Meth., B123, 144 (1997).
- (17) Sharma P., M. Bourgeois, D. Elmore, D. Granger, M. E. Lipschutz, X. Ma, T. Miller, K. Mueller, F. Rickey, P. Simms and S. Vogt: Nucl. Instr. and Meth., B172, 112 (2000).

- (18) Nadeau M.-J., M. Schleicher, P. M. Grootes, H. Erlenkeuser, A. Gottdang, D. J. W. Mous and H. Willkomm: Nucl. Instr. and Meth., B123, 22 (1997).
- (19) Nakamura T., E. Niu, H. Oda, A. Ikeda, M. Minami, H. Takahashi, M. Adachi, L. Pals, A. Gottdang and N. Suya: Nucl. Instr. and Meth., B172, 52 (2000).
- (20) Fehn U., S. Tullai, R. T. D. Teng, D. Elmore and P. W. Kubik: Nucl. Instr. and Meth., B29, 380 (1987).

付録

実試料におけるヨウ素同位体比計算方法

ここでは具体的に計算方法を示す。

AMS で測定されたデータは 1 試料につき以下に示すような ASCII データとして取得される。

ASCII File created by HEL Analysis utility

```

Measuring date, time          : Thu Jan 27 09:11:47 2005
Files allocation             : c:\helbatch\050125s2\std08
Sample name                  : std08
Sample position               : 25
Sample description             : isotrace
Operator
Reference sample
Source mov. disabled         : N
Queue number                 : 25

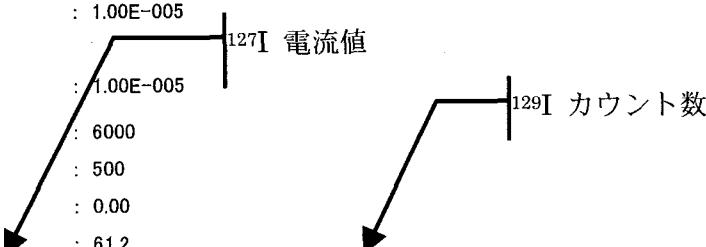
TOF window                   : 680 - 695
Number of channels           : 1024
Isotope 1                     : I129 TOF
Isotope 2                     : I127 Inner

Measurement time 1           : 8.00E-03
Measurement time 2           : 2.00E-03

Wait time                     : 1.00E-004
Delay 1                       : 1.00E-005
Delay 2                       : 1.00E-005
Gate delay                    : 1.00E-005
Number of sweeps              : 6000
Keithley readings             : 500
Tail time                     : 0.00
Block time                    : 61.2

      0   0    3.02164E-08    0.00000E+00    629    637    0.042    0
      1   0    3.41723E-08    0.00000E+00    766    772    0.039    0
      2   0    3.35499E-08    0.00000E+00    684    688    0.039    0
      3   0    3.26560E-08    8.26446E-13    683    690    0.042    0
      4   0    3.22323E-08    3.38844E-12    714    717    0.042    0
      5   0    3.19643E-08    0.00000E+00    654    656    0.039    0
      6   0    3.17471E-08    3.05787E-12    670    673    0.037    0
      7   0    3.17100E-08    0.00000E+00    674    676    0.034    0
      8   0    3.17265E-08    1.73555E-12    657    659    0.039    0
      9   0    3.16531E-08    0.00000E+00    686    692    0.037    0
     10   0    3.16386E-08    1.32232E-12    689    695    0.039    0

```



11	0	3.16631E-08	0.00000E+00	642	647	0.039	0
12	0	3.15955E-08	0.00000E+00	685	695	0.034	0
13	0	3.15924E-08	6.61165E-13	672	674	0.042	0
14	0	3.15771E-08	0.00000E+00	638	643	0.037	0
15	0	3.15443E-08	1.15703E-12	671	676	0.039	0
16	0	3.15632E-08	0.00000E+00	673	679	0.034	0
17	0	3.15716E-08	-4.95868E-13	658	668	0.037	0
18	0	3.16323E-08	2.14878E-12	655	659	0.037	0
19	0	3.17704E-08	2.80994E-12	682	690	0.034	0
20	0	3.18557E-08	0.00000E+00	685	688	0.039	0
21	0	3.20587E-08	2.47934E-13	678	685	0.037	0
22	0	3.23521E-08	0.00000E+00	738	744	0.039	0
23	0	3.26657E-08	1.32232E-12	717	722	0.034	0
24	0	3.28703E-08	8.09923E-12	718	728	0.034	0
25	0	3.30765E-08	2.97523E-12	697	699	0.039	0
26	0	3.32832E-08	0.00000E+00	710	713	0.034	0
27	0	3.35121E-08	0.00000E+00	737	745	0.037	0
28	0	3.38354E-08	7.43806E-13	714	717	0.039	0
29	0	3.39805E-08	8.09922E-12	711	717	0.034	0
30	0	3.42036E-08	1.23968E-12	702	709	0.037	0
31	0	3.44363E-08	0.00000E+00	691	703	0.037	0
32	0	3.47223E-08	6.03309E-12	747	753	0.037	0
33	0	3.48567E-08	0.00000E+00	739	742	0.034	0
34	0	3.49559E-08	7.35542E-12	693	726	0.037	0
35	0	3.49891E-08	5.20663E-12	720	727	0.034	0
36	0	3.50588E-08	7.68601E-12	718	722	0.039	0
37	0	3.50516E-08	3.88432E-12	715	718	0.039	0
38	0	3.49938E-08	1.00001E-11	716	721	0.039	0
39	0	3.49522E-08	3.22316E-12	755	758	0.039	0
40	0	3.49122E-08	5.53723E-12	767	776	0.032	0
41	0	3.50888E-08	7.43808E-13	746	751	0.039	0
42	0	3.52324E-08	-1.65292E-13	801	805	0.039	0
43	0	3.52989E-08	0.00000E+00	719	726	0.039	0
44	0	3.53250E-08	0.00000E+00	741	744	0.039	0
45	0	3.53856E-08	2.47937E-13	780	792	0.039	0
46	0	3.54418E-08	2.47934E-13	791	798	0.039	0
47	0	3.56343E-08	3.30581E-13	737	741	0.032	0
48	0	3.57453E-08	3.88432E-12	736	740	0.034	0
49	0	3.59121E-08	1.23968E-12	771	779	0.034	0
50	0	3.61566E-08	3.30580E-13	801	811	0.037	0
51	0	3.63650E-08	1.15703E-12	812	814	0.034	0
52	0	3.64922E-08	1.73555E-12	722	729	0.037	0
53	0	3.65992E-08	2.39672E-12	750	755	0.039	0
54	0	3.70498E-08	0.00000E+00	829	834	0.037	0
55	0	3.70473E-08	2.97523E-12	762	770	0.039	0
56	0	3.70483E-08	0.00000E+00	758	763	0.034	0

57	0	3.70816E-08	5.78514E-13	829	832	0.042	0
58	0	3.70834E-08	0.00000E+00	751	754	0.039	0
59	0	3.71952E-08	4.62812E-12	778	786	0.039	0
60	0	3.72912E-08	6.77690E-12	805	806	0.039	0
61	0	3.73822E-08	3.55374E-12	787	792	0.032	0
62	0	3.75428E-08	3.55374E-12	794	807	0.034	0
63	0	3.76324E-08	4.04961E-12	802	806	0.039	0
64	0	3.78070E-08	1.00001E-11	812	820	0.037	0
65	0	3.81221E-08	3.22315E-12	857	867	0.037	0
66	0	3.81394E-08	1.00001E-11	802	809	0.034	0
67	0	3.82775E-08	1.00000E-11	843	850	0.039	0
68	0	3.83257E-08	8.26454E-13	795	799	0.039	0
69	0	3.85636E-08	0.00000E+00	815	818	0.037	0
70	0	3.86031E-08	0.00000E+00	821	826	0.034	0
71	0	3.86508E-08	0.00000E+00	795	797	0.039	0
72	0	3.87812E-08	2.23141E-12	862	870	0.039	0
73	0	3.88864E-08	6.03310E-12	827	832	0.037	0
74	0	3.87596E-08	7.76865E-12	847	855	0.039	0
75	0	3.87148E-08	0.00000E+00	796	797	0.034	0
76	0	3.85357E-08	9.91750E-13	793	798	0.037	0
77	0	3.85147E-08	1.73554E-12	836	849	0.039	0
78	0	3.85256E-08	8.09921E-12	770	849	0.037	0
79	0	3.86933E-08	4.87608E-12	803	811	0.039	0
80	0	3.88375E-08	0.00000E+00	808	814	0.034	0
81	0	3.88728E-08	3.14053E-12	832	837	0.039	0
82	0	3.87392E-08	1.98348E-12	820	824	0.037	0
83	0	3.87935E-08	6.61160E-13	832	839	0.039	0
84	0	3.88511E-08	6.61166E-13	812	819	0.039	0
85	0	3.89891E-08	3.80168E-12	845	852	0.034	0
86	0	3.90237E-08	6.77690E-12	785	788	0.034	0
87	0	3.91529E-08	7.19013E-12	816	827	0.034	0
88	0	3.91995E-08	5.61986E-12	829	835	0.039	0
89	0	3.91617E-08	0.00000E+00	779	786	0.034	0
Live time		:	5508.00				
Real time		:	6017				
Inner av. dc current		:	1.085604e-003				
Inner std deviation		:	1.085568e-003				
Outer av. dc current		:	1.510621e-008				
Outer std variation		:	1.510371e-008				
Window counts dc		:	517017614				
Total counts dc		:	521745314				
Counts/sec.		:	12.27				
Statistical error		:	0.38				
TOF/Inner ratio (el)		:	4.34489e-014				
TOF/Outer ratio (el)		:	3.1224e-009				

HVEE のプログラムの不具合により、正しい値が表示されない。

このデータから 10block づつまとめたものが以下の表になる。以下に 2 次標準試料として IsoTrace Lab. 標準物質”Standard”と測定試料”Sample”を測定した時に計算方法を示す。

Standatd

		Raw data* ¹		Time Correction* ²		Condition* ³		Ratio* ⁴		
Run	Block	¹²⁷ I current	¹²⁹ I count	¹²⁷ I	¹²⁹ I	Sweep	Block	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I	error	Rel
1	0-9	3.216E-08	6817	1.640E-07	8691	6000	10	6.927E-11		
2	10-19	3.161E-08	6665	1.612E-07	8497	6000	10	6.889E-11 ± 2.621E-13 (0.4 %)		
3	20-29	3.294E-08	7105	1.680E-07	9058	6000	10	7.047E-11 ± 8.231E-13 (1.2 %)		
4	30-39	3.482E-08	7196	1.776E-07	9174	6000	10	6.753E-11 ± 1.209E-12 (1.8 %)		
5	40-49	3.539E-08	7589	1.805E-07	9675	6000	10	7.006E-11 ± 1.143E-12 (1.6 %)		
6	50-59	3.681E-08	7792	1.877E-07	9934	6000	10	6.917E-11 ± 1.022E-12 (1.5 %)		
7	60-69	3.790E-08	8112	1.933E-07	10342	6000	10	6.993E-11 ± 9.699E-13 (1.4 %)		
8	70-79	3.866E-08	8150	1.972E-07	10391	6000	10	6.888E-11 ± 9.120E-13 (1.3 %)		
9	80-89	3.896E-08	8158	1.987E-07	10401	6000	10	6.843E-11 ± 8.990E-13 (1.3 %)		
6.918E-11 ± 8.990E-13 (1.3 %)										

Sample

		raw data		Time Correction		Condition		Ratio		
Run	Block	¹²⁷ I current	¹²⁹ I count	¹²⁷ I	¹²⁹ I	Sweep	Block	¹²⁹ I/ ¹²⁷ I	error	Rel
1	0-9	3.084E-08	1076	1.573E-07	1371	6000	10	1.140E-11		
2	10-19	3.111E-08	1134	1.587E-07	1445	6000	10	1.191E-11 ± 3.611E-13 (3.0 %)		
3	20-29	3.182E-08	1030	1.623E-07	1313	6000	10	1.058E-11 ± 6.732E-13 (6.4 %)		
4	30-39	3.315E-08	1089	1.691E-07	1388	6000	10	1.073E-11 ± 6.171E-13 (5.7 %)		
5	40-49	3.409E-08	1119	1.739E-07	1426	6000	10	1.073E-11 ± 5.678E-13 (5.3 %)		
6	50-59	3.419E-08	1047	1.744E-07	1334	6000	10	1.001E-11 ± 6.680E-13 (6.7 %)		
7	60-69	3.522E-08	1099	1.796E-07	1401	6000	10	1.020E-11 ± 6.640E-13 (6.5 %)		
8	70-79	3.674E-08	1150	1.874E-07	1466	6000	10	1.023E-11 ± 6.465E-13 (6.3 %)		
9	80-89	3.773E-08	1251	1.925E-07	1595	6000	10	1.083E-11 ± 6.059E-13 (5.6 %)		
1.073E-11 ± 6.059E-13 (5.6 %)										

- *1 ASCII のデータから ^{127}I は 10block の平均値、 ^{129}I count は 10block の合計値を計算している。
- *2 式(Ⅱ)、(Ⅲ)を利用して時間補正を行った値である。
- *3 測定条件のうち、sweep 数 (ASCII データに記載されている) と block 数 (ここでは 10block 毎にまとめて 1 測定としている) の値
- *4 式(Ⅳ)を利用し計算した値である。

しかし、多くの場合メモリー効果 (6.3.1 参照) により測定開始からしばらくの間は測定が安定しない。そこで、測定開始から約 30 分 (30block) のデータは棄却し、再計算する。

Standard

		raw data		Time Correction		Condition		Ratio		
Run	Block	^{127}I current	^{129}I count	^{127}I	^{129}I	Sweep	Block	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	error	Rel
1	0-9	3.216E-08	6817	1.640E-07	8691	6000	10			
2	10-19	3.161E-08	6665	1.612E-07	8497	6000	10			
3	20-29	3.294E-08	7105	1.680E-07	9058	6000	10			
4	30-39	3.482E-08	7196	1.776E-07	9174	6000	10	6.753E-11		
5	40-49	3.539E-08	7589	1.805E-07	9675	6000	10	7.006E-11 ± 1.789E-12 (2.6%)		
6	50-59	3.681E-08	7792	1.877E-07	9934	6000	10	6.917E-11 ± 1.283E-12 (1.9%)		
7	60-69	3.790E-08	8112	1.933E-07	10342	6000	10	6.993E-11 ± 1.163E-12 (1.7%)		
8	70-79	3.866E-08	8150	1.972E-07	10391	6000	10	6.888E-11 ± 1.016E-12 (1.5%)		
9	80-89	3.896E-08	8158	1.987E-07	10401	6000	10	6.843E-11 ± 9.511E-13 (1.4%)		
6.900E-11 ± 9.511E-13 (1.4%)										

Sample A

		raw data		Time Correction		Condition		Ratio		
Run	Block	^{127}I current	^{129}I count	^{127}I	^{129}I	Sweep	Block	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	error	Rel
1	0-9	3.084E-08	1076	1.573E-07	1371	6000	10			
2	10-19	3.111E-08	1134	1.587E-07	1445	6000	10			
3	20-29	3.182E-08	1030	1.623E-07	1313	6000	10			
4	30-39	3.315E-08	1089	1.691E-07	1388	6000	10	1.073E-11		
5	40-49	3.409E-08	1119	1.739E-07	1426	6000	10	1.073E-11 ± 5.775E-13 (0.1 %)		
6	50-59	3.419E-08	1047	1.744E-07	1334	6000	10	1.001E-11 ± 4.180E-13 (4.2 %)		
7	60-69	3.522E-08	1099	1.796E-07	1401	6000	10	1.020E-11 ± 3.712E-13 (3.6 %)		
8	70-79	3.674E-08	1150	1.874E-07	1466	6000	10	1.023E-11 ± 3.324E-13 (3.3 %)		
9	80-89	3.773E-08	1251	1.925E-07	1595	6000	10	1.083E-11 ± 3.506E-13 (3.2 %)		
1.045E-11 ± 3.506E-13 (3.4 %)										

Sample ID	Measured Ratio	Normalized factor ^{*5}	Sample Ratio ^{*6}
Standard (IsoTrace)	$(6.900 \pm 0.095) \times 10^{-11}$	0.568 ± 0.092	$(1.214 \pm 0.038) \times 10^{-10}$
Sample A	$(1.045 \pm 0.035) \times 10^{-11}$	0.568 ± 0.092	$(1.84 \pm 0.030) \times 10^{-11}$

*5 式(V)を使って計算した。

*6 式(VI)を使って計算した。