

報 文

鉛同位体比測定のための誘導結合プラズマイオントラップ質量分析法の評価

西村 康宏¹, 大畑 昌輝¹, 古田 直紀^{®1}, 鍋島 貴之²

Evaluation of inductively coupled plasma-ion trap mass spectrometry for lead isotopic measurements

Yasuhiro NISHIMURA¹, Masaki OHATA¹, Naoki FURUTA¹ and Takayuki NABESHIMA²

¹ Department of Applied Chemistry, Faculty of Science and Engineering, Chuo University, 1-13-27, Kasuga, Bunkyo-ku, Tokyo 112-8551

² Hitati High-Technologies Corporation, 1-24-14, Nishishinbashi, Minato-ku, Tokyo 105-8717

(Received 14 January 2004, Accepted 10 March 2004)

In this paper, an ICP coupled with a three dimensional quadrupole mass spectrometer (ICP-3DQMS) was evaluated for lead isotopic measurements. The 3DQMS is a type of an ion trap mass spectrometer. These days, ICP coupled with a quadrupole mass spectrometer (ICP-QMS) is widely used for its advantages of high sensitivities and capability of isotopic measurements. However, the obtained precision (%RSD) of the isotopic measurements is limited to about 0.3%, because several isotopes are detected sequentially. On the other hand, because 3DQMS can trap several isotopes simultaneously, a precision of less than 0.1% (*ca.* 0.08%) could be achieved for ²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb and ²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb in this study. One drawback of 3DQMS is that there is a limitation on the number of total ions, that can be trapped. It was found that the value of [trapping time (ms) × concentration (ng/ml)] influences the accuracy and precision of isotopic measurements.

Keywords : inductively coupled plasma ; ion trap ; lead isotopic measurements ; ICP-MS ; ICP-3DQMS.

1 緒 言

鉛の4つの同位体²⁰⁴Pb, ²⁰⁶Pb, ²⁰⁷Pb及び²⁰⁸Pbのうち,²⁰⁴Pbだけは鉛鉱石の生成時期の量を維持しているが,²⁰⁶Pbと²⁰⁷Pbは²³⁸Uと²³⁵Uの崩壊により,それぞれ新たに生成され,²⁰⁸Pbは²³²Thの崩壊により新たに生成される。世界中のUとThの分布に偏りがあるため,鉛のとれた場所によって鉛同位体比は20~30%と大きく異なる。現在,このような鉛の同位体比の違いは,地質学的年代測定,トレーサー実験,起源の推定などに用いられている。

従来,このような鉛同位体比の測定には,表面電離型質量分析計(TIMS)が一般に用いられてきた^{1,2)}。非常に安定したイオン源を用いており,複数の検出器を用いて質量の異なるイオンを同時に検出するために,TIMSは極めて高い精度で同位体比を測定できる。しかし,TIMSは共存するマトリックスによる影響が大きいため,測定する前に鉛とマトリックスを分離する必要があり,その分離操作に時間がかかるために1日にこなせるサンプルの量は数個に限られてしまう。

それに対して誘導結合プラズマ四重極質量分析計(ICP-QMS)は,TIMSに比べ試料前処理が簡便で,短い測定時間で多元素の同位体比を測定できるという利点がある。しかしながら,ICP-QMSで得られる同位体比測定精度は,TIMSに比べると大幅に悪い。TIMSの同位体比測定精度が0.005~0.01%であるのに対しICP-QMSの同位体比測

¹ 中央大学理工学部応用化学科: 112-8551 東京都文京区春日 1-13-27

² 株式会社日立ハイテクノロジーズ: 105-8717 東京都港区西新橋 1-24-14

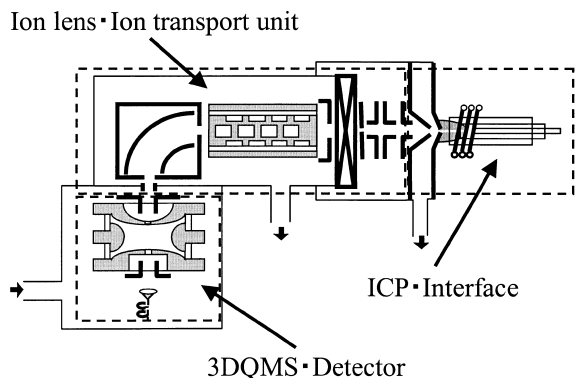


Fig. 1 Schematic diagram of ICP-3DQMS

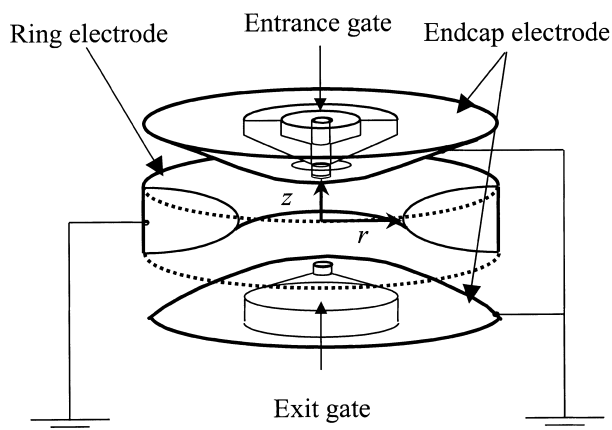


Fig. 2 Schematic diagram of 3DQMS

定精度は0.3~0.5%である³⁾。この原因として主に考えられるのは、イオン源であるICPの変動⁴⁾、ネブライザーの変動及び装置のドリフトなどに由来している⁵⁾。

同位体比測定精度の改善策としては、目的の質量の異なるイオンを同時に検出することが挙げられる。通常のICP-QMSでは逐次的に質量の異なるイオンを測定するため、上記したICP及び検出器等におけるノイズの影響が異なる。しかし、目的の質量の異なるイオンを同時に検出することができれば、すべてのイオンが同じノイズの影響を受けるため、S/N比を上げることができ、同位体比測定精度を改善できる。同位体比測定精度を改善するために、同時測定が可能な複数のファラデーカップを備えた磁場セクター型質量分析計、2つの四重極を持つ装置及び飛行時間型質量分析計などが提案されている^{6)~8)}。特に複数のファラデーカップを備えた磁場セクター型質量分析計の同位体比測定精度が良く、現在実用化されている。これは同時分析効果のほかに、ピークが台形型(フラットピーク)であるため、ピークの中央部だけを計測すればよいので、更に同位体比測定精度が良くなるためである。

今回、使用した装置は日立ハイテクノロジーズとの共同研究で三次元四重極型質量分析計(3DQMS)が用いられている日立P-5000型質量分析計に変更を加えたICP-3DQMSである。このICP-3DQMSはイオントラップ型質量分析計である。イオントラップ型質量分析計は有機物イオン分析用の質量分析計として発展してきたが、最近になって無機イオンの分析への応用も検討されるようになってきている^{9)~13)}。イオントラップ型質量分析計は、その名のとおりイオンを電場により特定の空間に閉じ込め、その質量に応じて選択的に検出することができるため、質量の異なるイオンを同時に検出することと同じ効果がある。このため高精度の鉛同位体比測定が期待できる。本報告では、ICP-3DQMSを鉛同位体比測定に応用した。

2 実験

2.1 実験装置

本研究では日立ハイテクノロジーズとの共同研究で質量分析計に3DQMSが用いられている日立P-5000型質量分析計(Hitachi High-Technologies Co. 製)を基に、ソフトウェア上の一部制限をはずし、3DQMSの測定手順を自由にカスタマイズできるようにした装置を用いた。その構成図をFig. 1に示す。この装置は大きく分けてイオン源・インターフェース部、イオンレンズ・イオン輸送部及び3DQMS・検出器部の3つに分けられる。

ICPイオン源で生成されたイオンはサンプリングコーン及びスキマーコーンを通過し、イオン輸送路に導入される。イオン輸送路には、通常のイオンレンズのほかに輸送効率を向上させるために特徴的な2つのレンズが用いられている。イオン軌道を収束させるための二重円筒型静電イオンガイドと、中性の粒子やフォトンなどとイオンの軌道を分離するための90度偏向電極である。そして、これらのイオン輸送路を通過し、3DQMSにイオンが入射する。

Fig. 2に3DQMSの構成図を示す。3DQMSは2つのエンドキャップ電極と、1つのリング電極から構成される。エンドキャップ電極はおわん型で、凸側を向かい合わせて配置されている。その対抗するエンドキャップ電極の空間を囲むように環状のリング電極が配置される。そして、イオンをこの空間に閉じ込めることにより質量スペクトルを得る方式である。また、3DQMS内部にはバッファーガスとしてHeが導入されている。バッファーガスは入射してきたイオンのエネルギーを奪い、閉じ込め効率を向上させるだけでなく、多原子イオンの衝突解離に重要な役割を果たしている。

Table 1 Typical operating conditions of ICP

RF power	1100 W
Plasma gas flow rate	14 l min ⁻¹
Carrier gas flow rate	1.3 l min ⁻¹
Auxiliary gas flow rate	1.0 l min ⁻¹
Up-take rate	0.4 ml min ⁻¹

2.2 測定試料

試料には Pb 同位体比の保証されている標準物質 (NIST SRM 981) を用いた。これを超純水にて 0.1 M に調整した硝酸 (HNO₃, 70%, 電子工業用, 関東化学製) で 1 ng/ml ~ 1 µg/ml に希釈調製し, 実験に用いた。

2.3 分析条件

鉛同位体比測定を行う際の実験装置の最適化を行った。そのときの典型的な ICP 測定条件を Table 1 に示す。イオンレンズ系の各電極に印加する電圧は $m/z = 210$ 前後の透過率が最大になるように最適化した。今回, 3DQMS における測定条件の最適化の上で重要なパラメーターと考えられる Pb 濃度, 3DQMS の閉じ込め時間 (trapping time) 及び積算回数などを最適化し, ICP-3DQMS における鉛同位体比測定の精度を評価した。

なお, 3DQMS は, CID (collision induced dissociation) と呼ばれる多原子イオンを解離する機能も備えている。これは測定したいイオンの m/z に対応する周波数の高周波電圧をエンドキャップ電極に印加する方法である。また, イオンレベルと呼ばれる, トラップするイオンの下限値を決定するパラメーターが存在する。このパラメーターは閉じ込め効率及び同位体比に影響を与えるが, 予備実験から Pb 同位体比測定においては, イオンレベル 116 が最適であったので, 本実験ではこれを用いた。

なお, 鉛同位体比は $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 及び $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ を測定対象とし, 繰り返し 5 回で測定を行った。

3 結果及び考察

3.1 鉛同位体比と Pb 濃度及び閉じ込め時間の関係

まず, 測定条件を最適化するために, 3DQMS 内部に入るイオン数を決定する重要なパラメーターである閉じ込め時間及び Pb 濃度について検討した。この閉じ込め時間とは輸送されてきたイオンを 3DQMS 内部に入射させる時間である。低濃度のときには閉じ込め時間を長く, 高濃度のときには閉じ込め時間を短くすることにより, 検出するイオンの数を制御することが可能となり, 測定する濃度の幅を拡大することができる。Fig. 3 に 100 ng/ml Pb 標準溶液を用いて, 閉じ込め時間を変化させたときの各鉛同位体の信号強度を示す。 ^{208}Pb の信号強度については, 100 ms までは良い直線性が得られているが, それ以上になると,

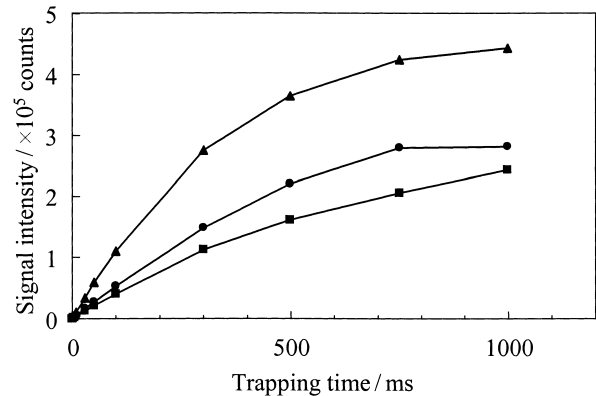


Fig. 3 Pb signal intensities observed by using a 100 ng/ml Pb standard solution as a function of trapping time of ICP-3DQMS

The number of accumulation was 50 times. ●: ^{206}Pb ; ■: ^{207}Pb ; ▲: ^{208}Pb

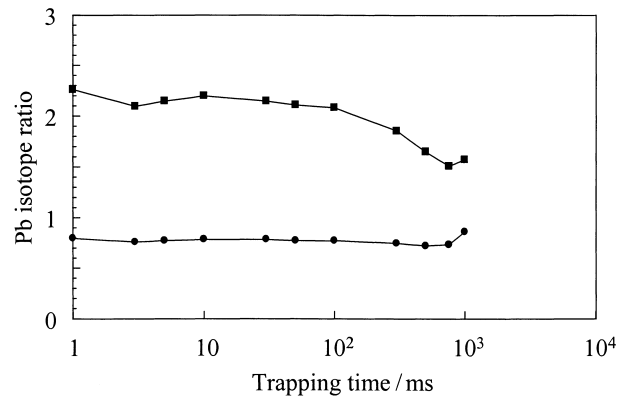


Fig. 4 Pb isotope ratios observed by using a 100 ng/ml Pb standard solution as a function of trapping time of ICP-3DQMS

The number of accumulation was 50 times. ●: $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$; ■: $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$

その傾きが小さくなっているのが見てとれる。一方, ^{206}Pb 及び ^{207}Pb は 300 ms 以上になると, その傾きが小さくなっているのが分かる。この信号強度直線における傾きの変化は 3DQMS 内部でイオンが飽和し始めているためである。また, ^{208}Pb は ^{206}Pb 及び ^{207}Pb に比べ, 同位体存在度が約 2 倍高いために 100 ms で飽和し, ^{206}Pb 及び ^{207}Pb は 300 ms で飽和している。

次に, このときの各鉛同位体比を Fig. 4 に示す。 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ の同位体比が 100 ms を超えると鉛同位体比が変化しているのが分かる。これは ^{208}Pb が 100 ms で飽和しているためである。 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ の同位体比は 750 ms を超えると同位体比が変化していることが分かる。Fig. 3 から ^{206}Pb 及び ^{207}Pb は 300 ms を超えると飽和していることが分かるが, 300 ms 以上でも同位体比が変化しないのは ^{206}Pb 及

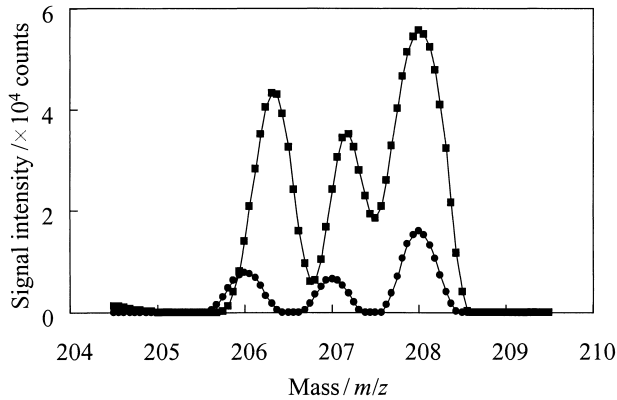


Fig. 5 ICP-3DQMS mass spectra for Pb observed by using a 100 ng/ml Pb standard solution for different trapping times

The number of accumulation was 50 times. ●: trapping time 100 ms; ■: trapping time 1000 ms

び²⁰⁷Pbの元素存在度が近い値であるために、飽和後の変化が似通ったためであると考えられる。また、²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pbの同位体比がNIST SRM 981の保証値(²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb = 0.91464 ± 0.00034)に比べて低い値であることが分かる。この原因については、次のことが考えられる。3DQMSでは²⁰⁶Pb、²⁰⁷Pb及び²⁰⁸Pbを同時に閉じ込めた後、エンドキャップ電極の射出孔を通して低m/z側から順に射出させて測定を行い、このときある時間幅を持って各m/zのイオンは射出される。3つのイオンの中で真ん中のm/zである²⁰⁷Pbは、射出される過程で²⁰⁶Pbの後半及び²⁰⁸Pbの前半に射出されるイオンと近傍に存在するため、クーロン斥力の影響を受け、軌道が乱れて射出孔から射出できないイオンが生じ、減感する。また、²⁰⁶Pb及び²⁰⁸Pbは²⁰⁷Pbからしか影響を受けないため、²⁰⁷Pbに比べ減感が少なくなり、²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pbの同位体比が真値からずれたと考えられる。また、この真値からのずれはNIST SRM 981と測定試料を差し替えて測定することで外部補正できる。

次に、閉じ込め時間を100 msに固定し、Pb濃度を変化させたときの信号強度及び同位体比を測定した。²⁰⁸Pbの信号強度については、100 ng/mlまでは良い直線性が得られたが、それ以上になると、その傾きが小さくなった。一方、²⁰⁶Pb及び²⁰⁷Pbは、300 ng/ml以上になるとその傾きが小さくなった。また、このとき²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pbの同位体比は100 ng/mlを超えると変化し、²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb同位体比は750 ng/mlを超えると同位体比が変化した。

鉛同位体比がPb濃度及び3DQMSの閉じ込め時間によって変化することが分かったので、このときの鉛同位体スペクトルを確認した。Fig. 5に濃度100 ng/mlのPb標準溶液を用いたときの閉じ込め時間100 ms及び1000 msのときの鉛同位体スペクトルを示す。閉じ込め時間100 ms

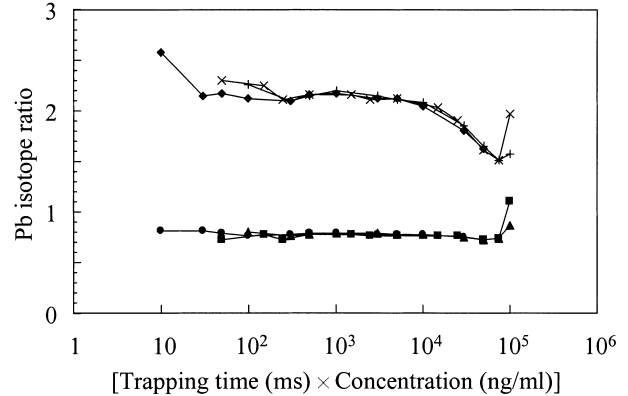


Fig. 6 Pb isotope ratios observed for different concentrations as a function of [trapping time (ms) × concentration (ng/ml)]

The number of accumulation was 50 times. ●: ²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb 10 ng/ml; ■: ²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb 50 ng/ml; ▲: ²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb 100 ng/ml; ◆: ²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb 10 ng/ml; ×: ²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb 50 ng/ml; +: ²⁰⁸Pb/²⁰⁶Pb 100 ng/ml

のときは、各鉛同位体が完全に分離されているきれいなスペクトルが得られているが、閉じ込め時間1000 msのときは、スペクトルが崩れており、これが原因で信号強度の直線性が崩れ、鉛同位体比が変化することが分かった。また、閉じ込め時間1000 msのときのスペクトルはピークトップが高質量側にずれていることが確認された。これはイオンを閉じ込めるときには各鉛同位体を同時に閉じ込めているが、排出する際に質量が小さいほうから排出されているためであると考えられる。すなわち、多量のイオンが3DQMS内部に存在している場合、イオンの排出のされ方が100 msの場合と比べ遅くなるため、鉛同位体が高質量側へずれると考えられる。また、このずれは²⁰⁶Pbが最も大きく、²⁰⁸Pbが最も少なくなっている。これは²⁰⁶Pbを排出する際には3DQMS内部に²⁰⁶Pb、²⁰⁷Pb及び²⁰⁸Pbが混在する中から²⁰⁶Pbを排出するため最も排出しにくく、²⁰⁸Pbを排出する際には3DQMS内部に²⁰⁸Pbしか存在しないため、最も排出しやすい状態になっていることが考えられる。しかしながら、3DQMSではピークトップを自動的に感知し、ピークトップから±0.25 m/zの質量スペクトルの積分値を信号強度として算出しているため、ピークトップのずれが直接信号強度の変化を起こしているわけではない。

Pb濃度、閉じ込め時間共に増加させると信号強度の直線性が変化し、鉛同位体比が変化するという傾向が確認された。これは3DQMS内部に閉じ込められるイオンの総数に関係していると考えられる。そこで、イオンの総数を反映すると考えられる[閉じ込め時間(ms) × 濃度(ng/ml)]で評価した。Fig. 6に10、50及び100 ng/ml Pb溶液により得られた鉛同位体比を用いて、横軸を[閉じ込め時間 ×

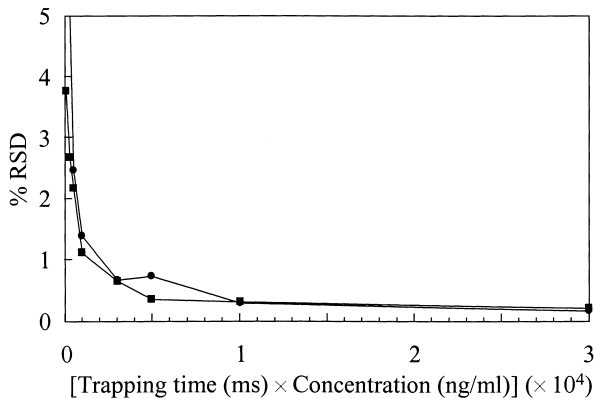


Fig. 7 % RSD of Pb isotope ratio measurements obtained by ICP-3DQMS as a function of [trapping time (ms) × concentration (ng/ml)]

The number of accumulation was 100 times. ●: $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$; ■: $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$

濃度] で評価したものを示す。これは 3DQMS 内部に閉じ込めるイオン数の限界が、各溶液濃度によって同じであるかどうかを評価したもので、溶液濃度によらず、閉じ込めるイオン数が同じであれば、閉じ込められるイオン数の限界が同じであるということが分かった。また、ICP-3DQMS にとっては、[閉じ込め時間 × 濃度] が $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ では 10000, $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ では 75000 を超えなければ各溶液濃度において鉛同位体比の変化がないことが分かった。

3・2 [閉じ込め時間 × 濃度] と精度の関係

[閉じ込め時間 × 濃度] がイオン数の限界を反映していることが分かったので、Fig. 7 に [閉じ込め時間 × 濃度] を変化させたときの鉛同位体比測定精度を示す。[閉じ込め時間 × 濃度] を増加させると精度が小さい値になり、[閉じ込め時間 × 濃度] が 3000 を超えると精度が安定していることが分かる。前述の鉛同位体比が変化してしまうことを考慮すると [閉じ込め時間 × 濃度] が 3000 ~ 10000 の値であると最適なイオン数であることが分かった。

3・3 [閉じ込め時間 × 濃度] と積算回数の関係

鉛同位体比測定精度を改善するもう一つの方法として、積算回数を増やすことが挙げられる。Fig. 8 に濃度 100 ng/ml, 閉じ込め時間 30 ms において積算回数を 5000 回まで変化させたときの精度を示す。このときの [閉じ込め時間 × 濃度] は 3000 となり、最適なイオン数であると考えられる。積算回数を増やすと鉛同位体比測定精度は小さい値になり、1000 回を超えると約 0.2% の精度で測定できることが分かった。しかし、統計誤差を用いて信号強度

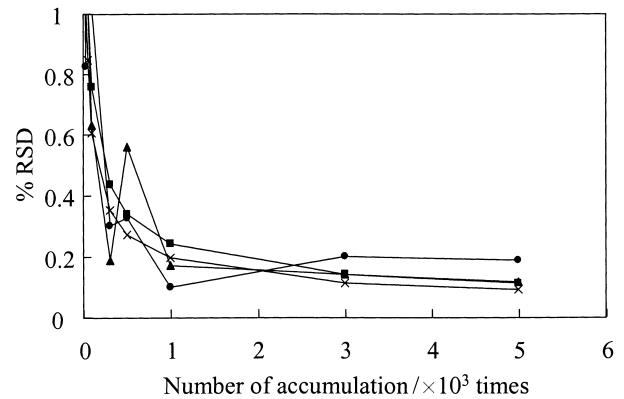


Fig. 8 % RSD of Pb isotope ratio measurements obtained using a 30 ms trapping time and a 100 ng/ml Pb standard solution as a function of number of accumulation

Results were compared to theoretical values which were calculated by assuming random statistics. ●: $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ measurement value; ■: $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ theoretical value; ▲: $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ measurement value; ×: $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ theoretical value

から鉛同位体比測定精度の理論値を算出すると、理論値のほうが実測値よりも精度が良いことが分かった。理論値のほうが実測値よりも精度が良い原因としては、イオンを 3DQMS 内部より射出する際にバッファガスとイオンが衝突を起こすこと等が考えられる。

3・4 鉛同位体比分析

[閉じ込め時間 × 濃度] が 3000 ~ 10000 であり、積算回数が多いほど同位体比精度が良いことが分かったので、[閉じ込め時間 × 濃度] = 3000 及び積算回数は上限値である 20000 回において鉛同位体比測定を行った。そのときの同位体比測定結果を Table 2 に示す。1 回の測定時間は約 50 分で、5 回繰り返すと全部で 4 時間かかる。時間経過につれて信号強度の減感が観測され、各鉛同位体信号強度の測定精度は約 2% であった。しかし、鉛同位体比にすると同時分析の効果があり、その測定精度は $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 及び $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 共に約 0.08% となった。次に、再現性を確認するために、日を変えて同じ測定を数回繰り返した。いずれの測定においても同様の同位体比測定精度が得られた。

本方法を用いて ICP-QMS よりも精度良く同位体比測定ができるようになれば、分析化学の分野では同位体希釈分析、地球化学の分野では地質学的年代測定、医学の分野ではトレーサー実験、環境化学の分野では汚染起源の推定に応用することができる。また、ICP-3DQMS における CID 機能を用いることにより、分光干渉を除きながら正確な同位体比を測定することができる。

Table 2 Signal intensities of Pb isotopes (counts) and Pb isotope ratios obtained by ICP-3DQMS using a 100 ng/ml Pb standard solution (NIST SRM 981)

Measurements	²⁰⁶ Pb	²⁰⁷ Pb	²⁰⁸ Pb	²⁰⁷ Pb/ ²⁰⁶ Pb	²⁰⁸ Pb/ ²⁰⁶ Pb
#1	8484000	6562000	18370000	0.77344	2.1649
#2	8499000	6579000	18430000	0.77402	2.1680
#3	8282000	6404000	17960000	0.77324	2.1690
#4	8106000	6280000	17570000	0.77468	2.1668
#5	8165000	6316000	17680000	0.77345	2.1654
Mean	8307000	6428000	18000000	0.77377	2.1668
SD	179800	137700	390200	0.00058	0.0017
%RSD	2.1	2.1	2.2	0.076	0.080
NIST certified value				0.91464 ± 0.00033	2.1681 ± 0.0008

4 結 論

鉛同位体比測定における鉛同位体比の変化は、測定された鉛同位体スペクトルの形状に大きく影響を受け、これは Pb 濃度だけでなく閉じ込め時間にも依存することが分かった。[閉じ込め時間×濃度]が10000を超えなければ、一定の鉛同位体比が得られ、3000～10000の値で測定すると同位体比測定精度も良いことが分かった。最適なイオン数において、積算回数を増加させることによって鉛同位体比測定精度は向上し、1000回を超えると約0.2%の精度が得られた。濃度100 ng/ml、閉じ込め時間30 ms及び積算回数20000回において約0.08%の鉛同位体比測定精度が得られた。

文 献

- 1) 室住正世, 中村精次, 吉田勝美: 日本化学会誌, 1479 (1982).
- 2) Y. Hirao, H. Mabuchi, E. Fukuda, H. Tanaka, T. Imamura, H. Todoroki, K. Kimura, E. Matsumoto: *Geochemical J.*, **20**, 1 (1986).
- 3) C. R. Quetel, B. Thomas, O. F. X. Donard, F. E.

Grousset: *Spectrochim. Acta, Part B*, **52**, 177 (1997).

- 4) N. Furuta: *J. Anal. At. Spectrom.*, **6**, 199 (1991).
- 5) D. J. Douglas: "Fundamental Aspects of Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry", in *Inductively Coupled Plasmas in Analytical Atomic Spectrometry*, 2nd ed., Edited by A. Montaser, D. W. Golightly, p. 613 (1992), (VCH, New York).
- 6) K. G. Heumann, S. M. Gallus, G. Radlinger, J. Vogl: *J. Anal. At. Spectrom.*, **13**, 1001 (1998).
- 7) A. J. Walder, N. Furuta: *Anal. Sci.*, **9**, 675 (1993).
- 8) A. R. Warren, L. A. Allen, H-M. Pang, R. S. Houk, M. Janghorbani: *Appl. Spectrosc.*, **48**, 1360 (1994).
- 9) D. W. Koppenaal, C. J. Barinaga, M. R. Smith: *J. Anal. Atom. Spectrom.*, **9**, 1053 (1994).
- 10) G. C. Eiden, C. J. Barinaga, D. W. Koppenaal: *J. Am. Soc. Mass Spectrom.*, **7**, 1161 (1996).
- 11) G. C. Eiden, C. J. Barinaga, D. W. Koppenaal: *J. Anal. Atom. Spectrom.*, **11**, 317 (1996).
- 12) C. J. Barinaga, D. W. Koppenaal: *Rapid Comm. Mass Spectrom.*, **8**, 71 (1994).
- 13) N. Furuta, A. Takeda, J. Zheng, T. Nabeshima: "Evaluation of Inductively Coupled Plasma-Ion Trap Mass Spectrometry", in *Plasma Source Mass Spectrometry*, Edited by G. Holland, S. D. Tanner, p. 90 (2001), (Royal Society of Chemistry).

要 旨

イオントラップ型である三次元四重極質量分析計(3DQMS)を有する誘導結合プラズマ(ICP)-3DQMSを用いた鉛同位体比測定について検討した。従来型の四重極質量分析計(QMS)を用いた鉛同位体比精度は約0.3%であり、これ以上精度が良くならない原因として主に考えられるのは、イオン源であるICPによる変動と、質量の異なるイオンを四重極質量分析計で高速に走査して単一の検出器にて逐次的に検出している(同時検出ではない)ことである。本研究で使用したICP-3DQMSは、質量の異なるイオンを特定の空間に同時に閉じ込め、検出することができるため、0.1%以下(約0.08%)の高精度な鉛同位体比測定を行えることが評価された。また、鉛同位体比測定における鉛同位体比の変化は、測定された鉛同位体スペクトルの形状に大きく影響を受け、これは3DQMS内部に閉じ込められるイオンの総数に依存すると評価された。