

加速器質量分析による極微量放射性核種の分析法確立

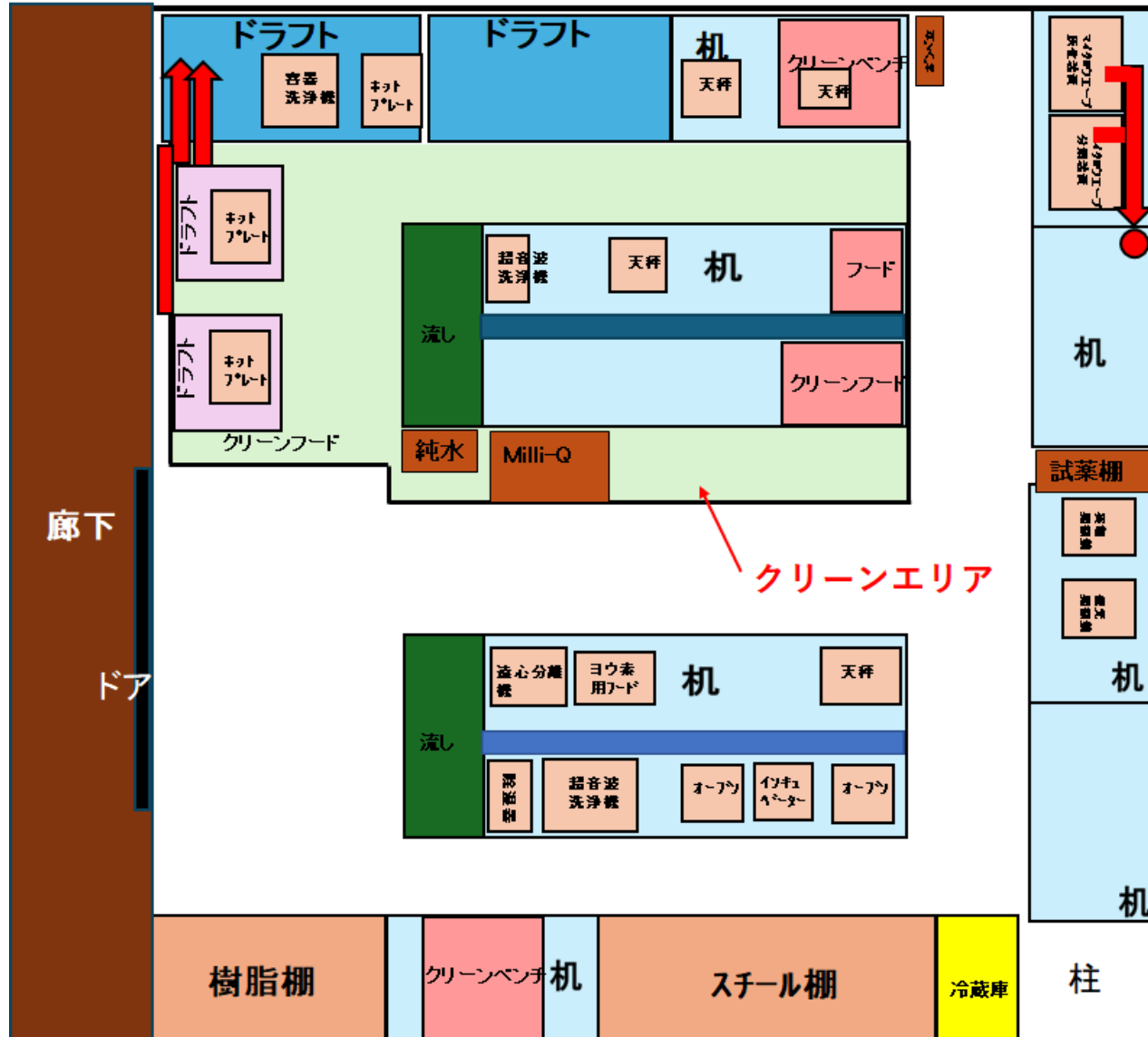
筑波大学

数理物質系/放射線・アイソトープ地球システム研究センター

坂口 綾

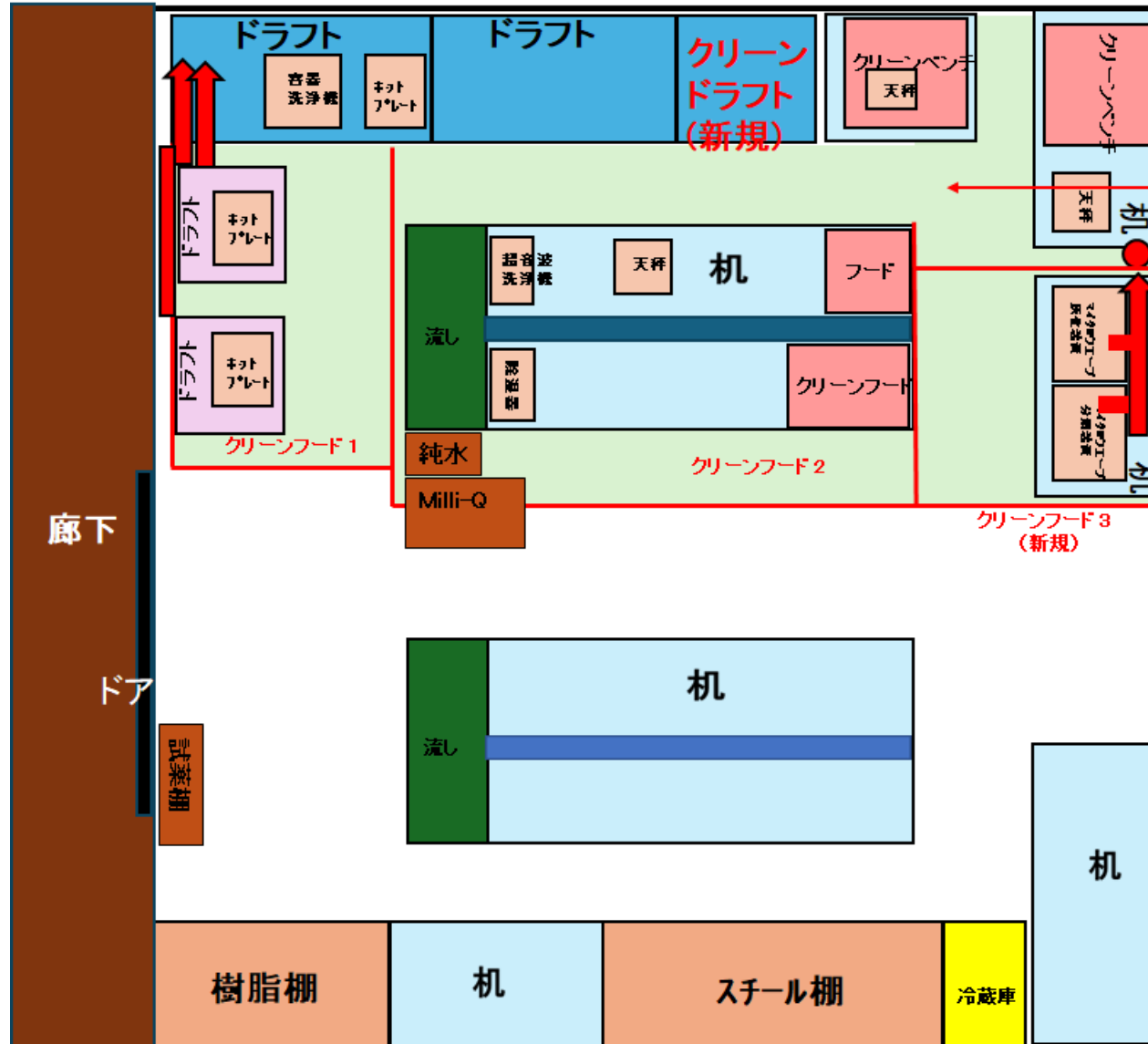
学術変革 横串としての極微量放射性核種分析

クリーン環境整備（改修前）



学術変革 横串としての極微量放射性核種分析

クリーン環境整備（改修後）



クリーンドラフト設置
クリーンフード3月増設

学術変革 横串としての極微量放射性核種分析



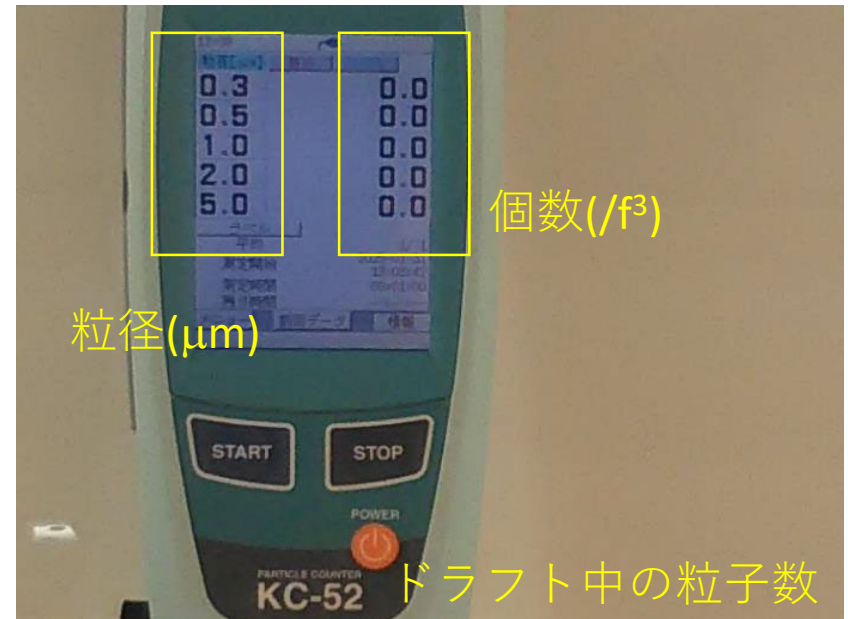
自作純水装置



KEKからの借り物→



クリーンドラフト



粒径(μm)

個数(/f³)

ドラフト中の粒子数

学術変革 横串としての極微量放射性核種分析

今後の施設整備予定

作業日程

- | | |
|------------------|---------|
| 1. クリーンフード 3 の設置 | 3/13 |
| 2. 機器設置・実験室清掃 | 4/2～4/4 |
| 3. 清浄度検査 | 4/7 |



クリーン度目標値

粒子数/f³

- | | |
|----------------|---------------|
| 1. クリーンフード エリア | <1000 ← 10000 |
| 2. クリーンベンチ | <100 |
| 3. クリーンドラフト | <10 |
| 4. ドラフト | <1000 ← 10000 |

学術変革 横串としての極微量放射性核種分析

難溶解性試料、高マトリクス試料中の極微量
放射性核種測定法確立（クリーン技術確立）

- **KamLAND 東北大**

- * PENフィルムやBis-MSBに含まれるU, Th分析

- **CANDLES 阪大・徳島大**

- * CaF_2 の材料や CaF_2 そのものに含まれるU, Th分析

- **暗黒物質検出 横浜国立大**

- * 液体シンチレーターに含まれるU, Th分析

- **暗黒物質検出 名古屋大開始予定**

- * フッ素樹脂（ステンレス）に含まれるU, Th分析

極微量 ^{210}Pb の分析法確立

-人新世紀年代測定法への応用-

新しい地質時代区分—人新世

～5億2400万年	先カンブリア時代		
5億2400万年～ 2億5000万年	古生代		
2億5000万年～ 6600万年	中生代	三畳紀	
		ジュラ紀	
		白亜紀	
6600万年～ 258万年	新生代	第三紀	
258万年～ 1万1700年		第四紀	更新世
1万1700年 ～ ???			完新世
???～			人新世



<https://www.euronews.com/green/2021/09/24/who-air-pollution-is-worse-than-we-thought-but-there-s-hope-we-can-fix-it>



https://jss1.jp/column/column_34/

いつまでナウマンゾウや縄文時代と一緒に時代区分
なんだよう!?

**新たな時代区分の設定が
必要となっている**

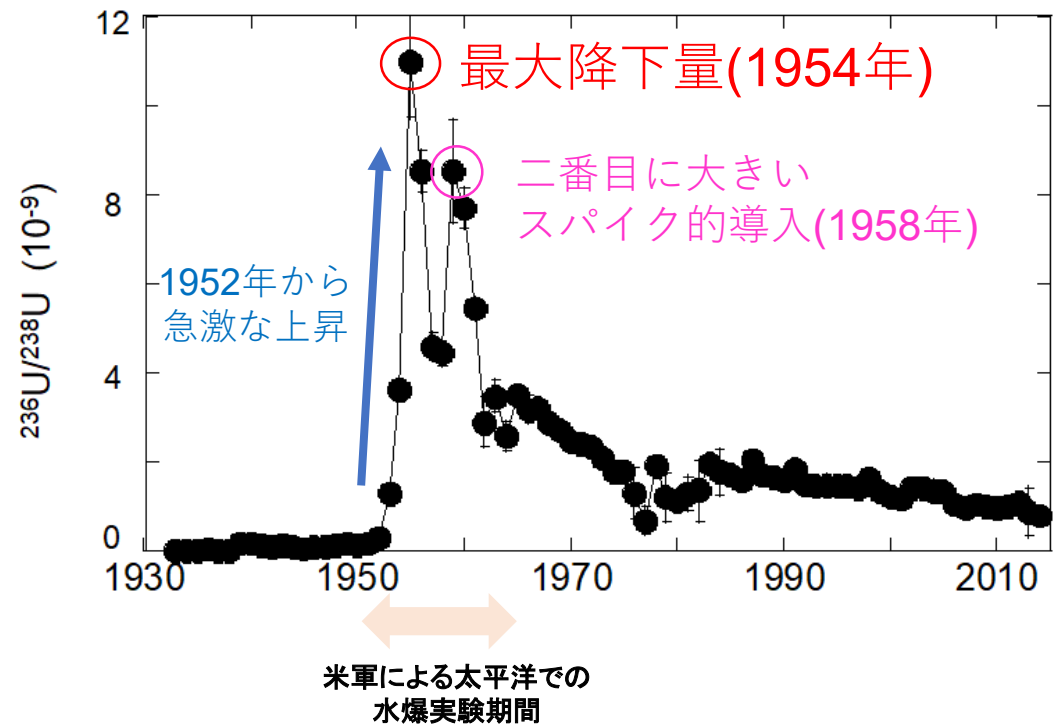
(Steffen et al. 2015; Water et al.,⁸ 2018)

サンゴ骨格や堆積物を用いた人新世の研究



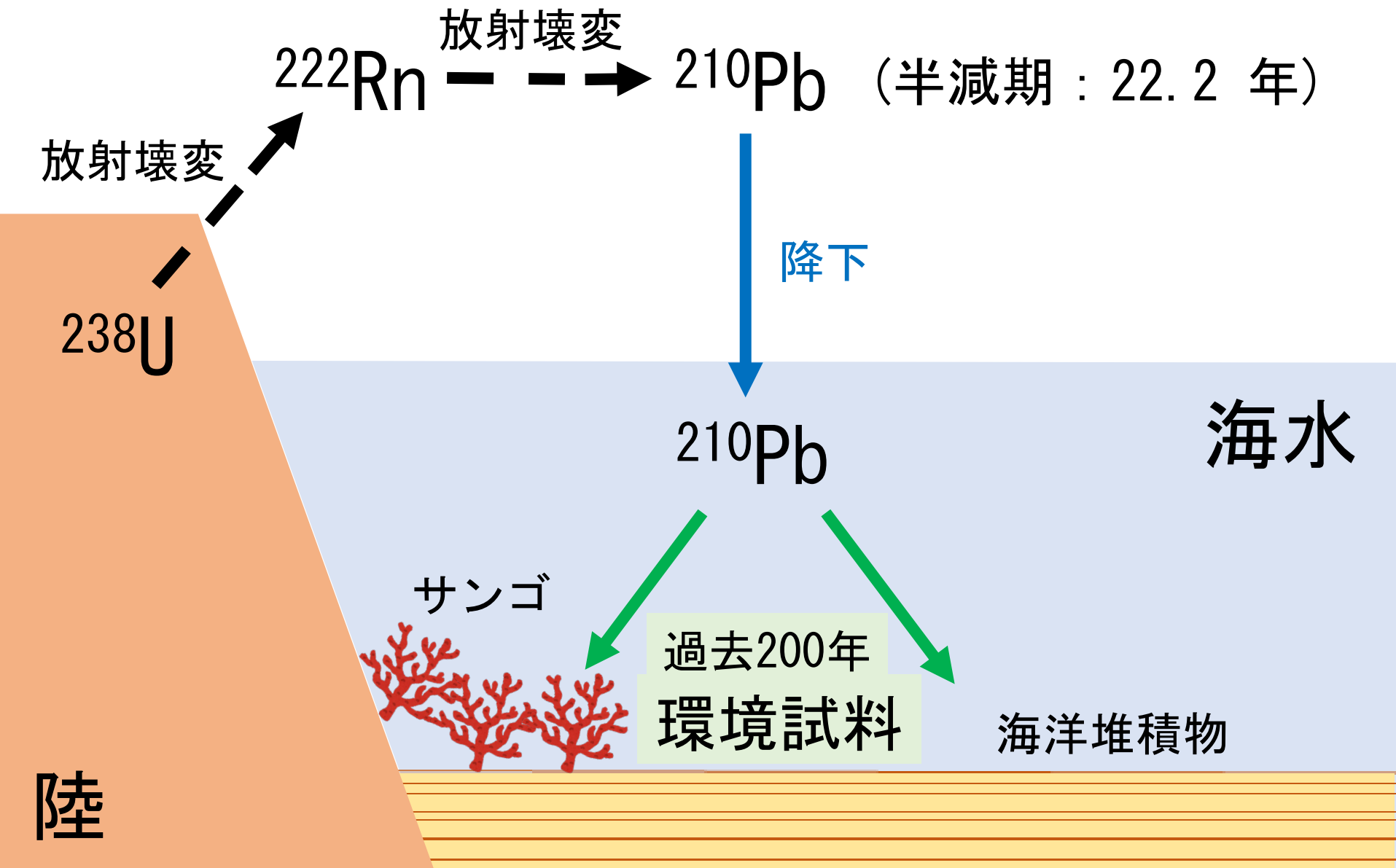
^{236}U 導入履歴をサンゴから復元した例

Nomura et al., *JGR Oceans*, 2016

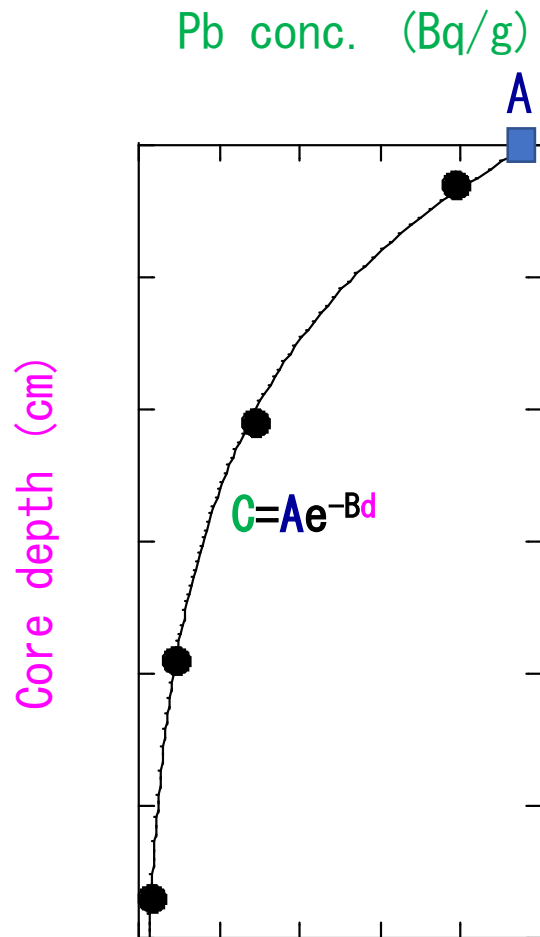


$^{238}\text{U}(n, 2n)^{236}\text{U}$ や $^{235}\text{U}(n, \gamma)^{236}\text{U}$ による核反応でできるUがなぜ？

^{210}Pb 年代測定



^{210}Pb 年代測定



$$C = Ae^{-Bd}$$

$$A = A_0 e^{-\lambda t}$$



$$C = Ae^{-\lambda d/S}$$

$$\lambda t = Bd$$

$$S = d/t = \lambda/B \quad (\text{cm/y})$$

ということは $B = \lambda/S$

A: 表層のPb-210濃度 (Bq/g)

C: Pb-210濃度 (Bq/g)

t: 時間 (y)

l: 壊変定数 (1/y)

d: コア深度 (cm)

S: 成長速度 (cm/y)

* 海洋への年間Pb-210降下量 (Bq/cm²/y)
は一定とする

* Pb-210半減期 22.2年

サンゴ試料中の微量 ^{210}Pb 測定

サンゴ試料中の ^{210}Pb 濃度：数 mBq/g (約 10^{-16}g/g)

測定法

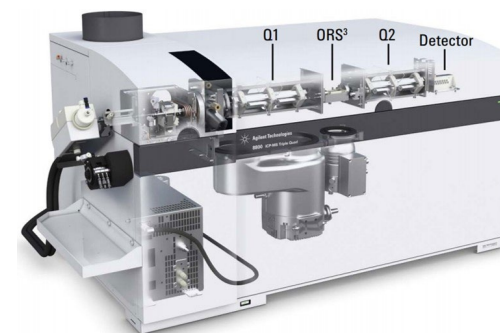
α 線測定



γ 線測定



ICP-MS



アジレント・テクノロジー
株式会社 提供

問題点

子孫核種 ^{210}Po (半減期:138日) を使用
測定まで数か月
～数年
測定に数週間

^{210}Pb の γ 線が46 keV
検出効率が悪い
環境BGが大きい
環境BG
・コンプトン効果
・宇宙放射線

分子イオンの妨害、
安定 ^{208}Pb からのテーリング
検出効率が悪い

加速器質量分析装置 (AMS) による ^{210}Pb 測定

従来の測定法の問題点を解消できる可能性

- ^{210}Pb の原子数を直接測定
子孫核種の成長や放射平衡を待たなくて良い
- 妨害同重体分子イオンや主要安定同位体からの妨害低下
- 数mBq/g (約 10^{-16} g/g) の ^{210}Pb を
試料量数gで高感度で測定可能

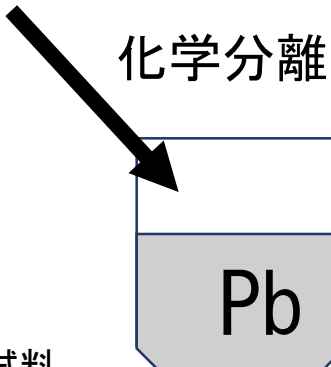
→測定条件の大半が未確立

→サンゴ(環境)試料の処理法が未確立

本研究の目的

人新世の環境試料(特にサンゴ試料)の
年代測定のための ^{210}Pb 測定をAMSにて行う
→ さまざまな試料中の ^{210}Pb に応用

I. サンゴ試料からの鉛の分離法の検討



サンゴコア試料

II. AMSのための鉛化合物作製法の検討



III. AMSの測定条件の検討



I. サンゴ試料からの鉛分離法の検討

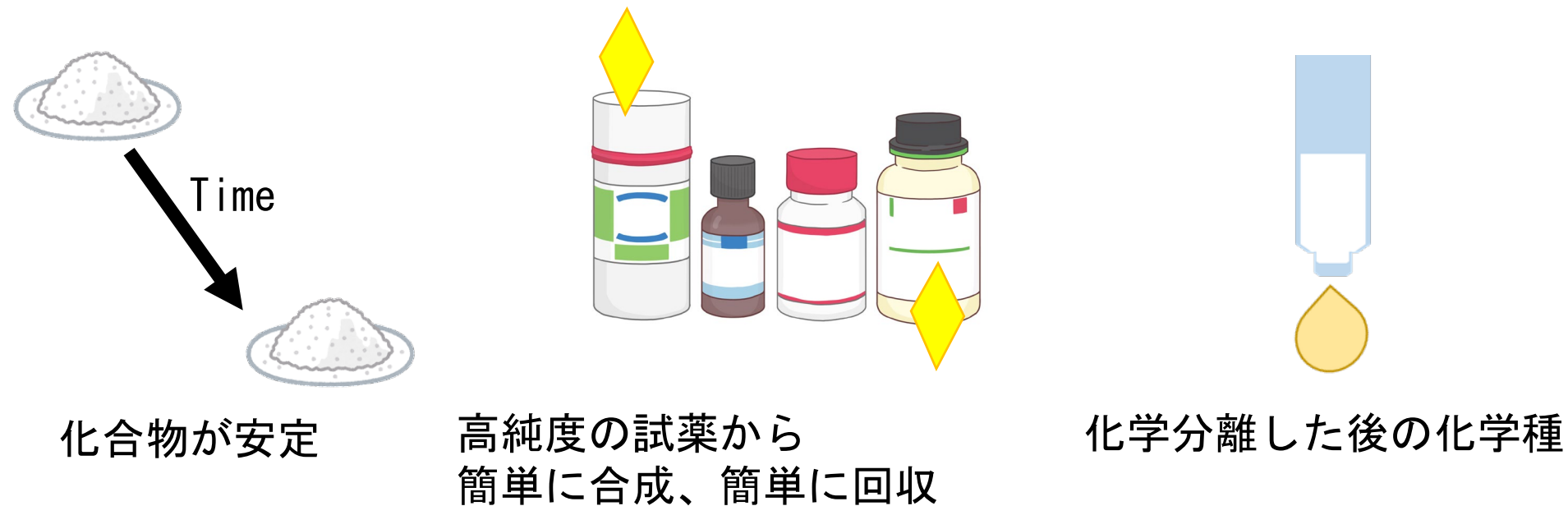
樹脂による鉛の回収・主成分の除去 まとめ

樹脂	溶離溶液	鉛の回収率 [%]	主成分の除去
AG [®] 1-x8	6 M HNO ₃	103 ± 1	○
AG [®] 1-x8	超純水	97.1 ± 1.4	○
Pb-レジン	超純水	61.7 ± 0.7	○

サンゴ試料からの鉛の分離
AG[®] 1-x8 を用いる

II. AMSのための鉛化合物作製法の検討

AMSでの試料のイオン化のメカニズムは
現在詳細に解明されていない



酸化物、フッ化物の鉛化合物を作製

α PbO、 β PbO、 Pb_3O_4 、 $PbCO_3$ 、 $Pb(NO_3)_2$ 、 PbF_2

II. AMSのための鉛化合物作製法の検討

鉛化合物作製の結果 まとめ

作製目的化合物	作製された化合物	本研究中での呼称
α PbO	Pb_3O_4	Pb_3O_4
β PbO	β PbO	β PbO
Pb_3O_4	$\text{Pb}_3\text{O}_4 + \beta$ PbO	$\text{Pb}_3\text{O}_4'$
PbCO_3	PbCO_3	PbCO_3
$\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$	$\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$	$\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$
PbF_2	$\text{PbF}_2 + \text{不純物}$	PbF_2'

まとめ

人新世の環境試料(特にサンゴ試料)の
年代測定のための ^{210}Pb 測定をAMSにて行う
→ さまざまな試料中の ^{210}Pb に応用

I. サンゴ試料からの鉛の分離法の検討

AG[®]1-x8にて鉛の回収および主成分の除去の達成

II. AMSのための鉛化合物合成法の検討

β PbO, Pb_3O_4 , $\text{Pb}_3\text{O}_4'$, PbCO_3 , $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$, PbF_2' が作製

今後の予定

III. AMSの各部における条件の検討

各研究グループの極低核種測定技術確立サポート