

自治体支援と 原発事故由来アルファ線放出核種の分析 技術

東京大学アイソトープ総合センター

桧垣 正吾

はじめに

- ・ 東京大学では、平成28年1月より広野町と協定を結んだ
- ・ 環境試料の測定を業務として引き受けている
- ・ 単純に、ゲルマニウム半導体検出器によるCs-134, 137の定量だけでなく、Sr-90や α 線放出核種の測定も要望されている
- ・ 本日は、 α 線放出核種の測定について解説する

東京大学と学術協定を締結

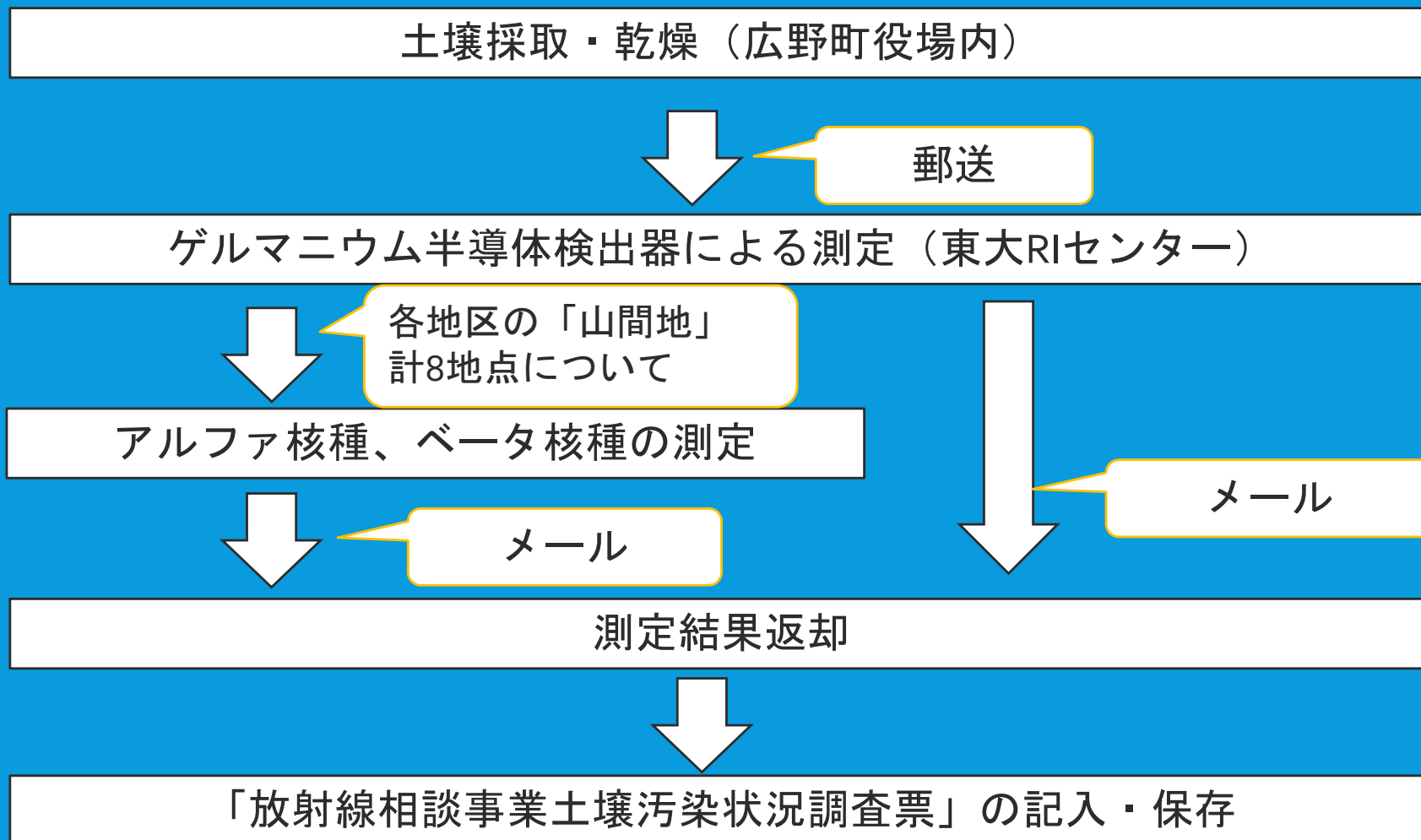
1月7日(木)、広野町は、東京大学安田講堂で、国立大学法人東京大学と広野町内の放射性物質による汚染の測定および除染の連携・協力を目的とした協定を締結し、遠藤町長と大和裕幸理事・副学長が協定書を取り交わしました。連携・協力の内容は、「放射性物質による汚染の測定および除染に係る計画の立案および推進」「東京大学アクトープ総合センター職員の派遣と、放射線測定や除染に関する指導および助言」などです。



出典：広野町HP まちの話題（平成28年1月）
<http://www.town.hirono.fukushima.jp/soumu/matnowadai28nen1gatsu.html>



土壌採取から測定までの流れ

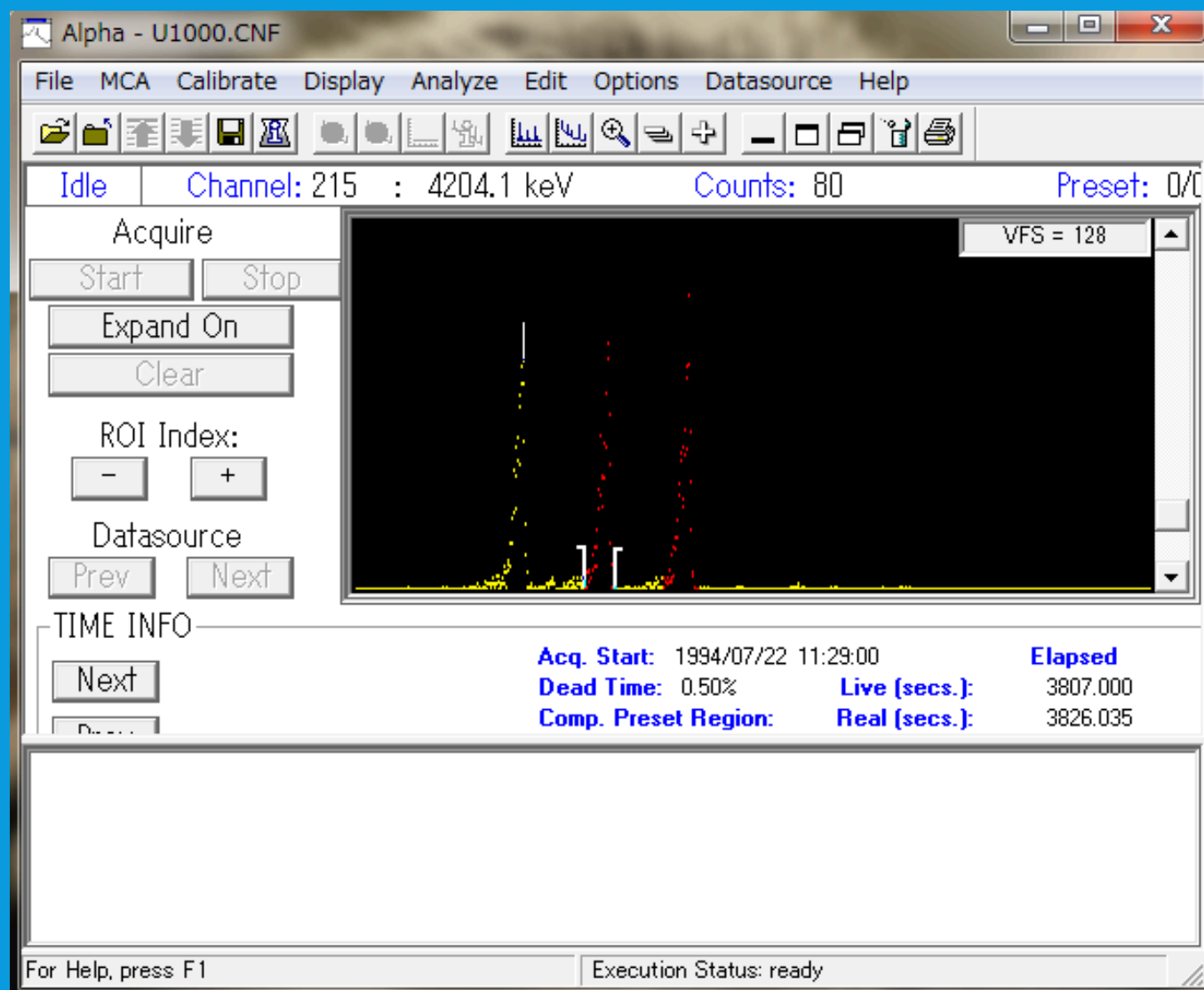


アルファ線

- ・ アルファ線スペクトロメータ（シリコン半導体検出器）で測定
- ・ 基本的な原理はゲルマニウム半導体検出器で測定でのガンマ線測定と同じ

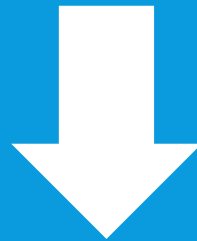


ウラン



ただし、問題がある

- ・ α 線は空気中でも飛程が短いため、均一な薄膜状測定試料を作成しなければならない
- ・ そもそも、放射能が小さい環境試料を測定するのは時間がかかりすぎる



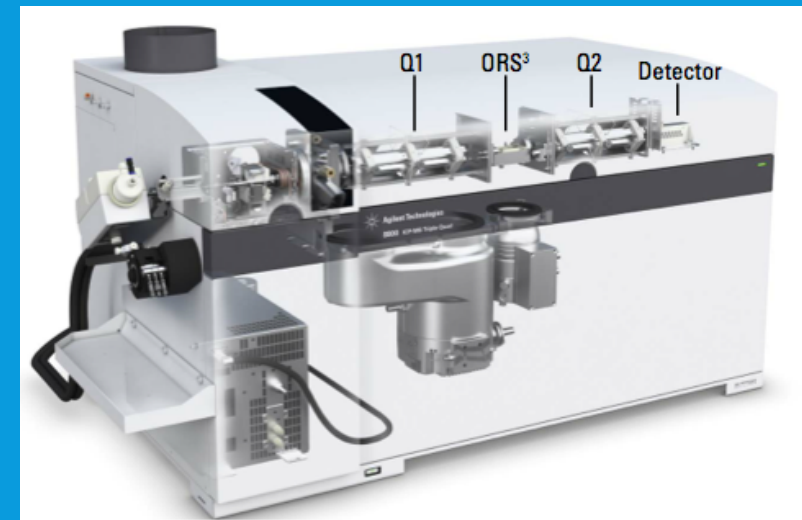
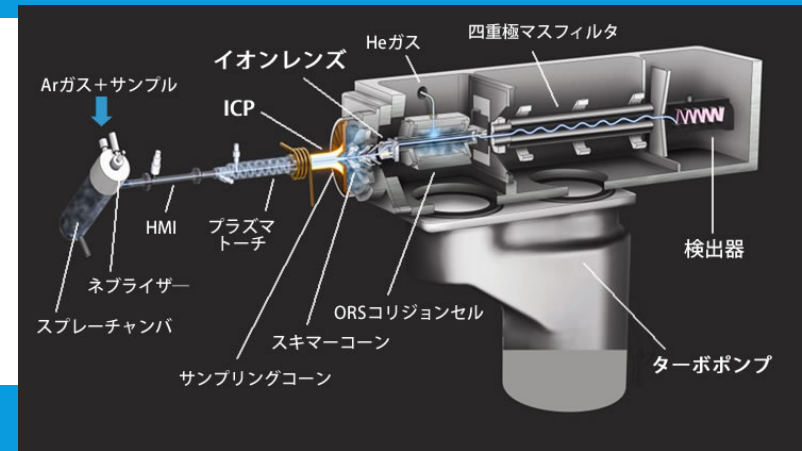
近年、放射線による測定が困難あるいは煩雑な核種の定量は、元素の重量数に基づいて分析を行う誘導結合プラズマ質量分析計(以下、ICP-MS)によって行われることがある

ICP-MS の原理

1. 誘導結合プラズマ (ICP) 中に液状試料を噴霧
2. プラズマ中で加熱分解されイオン化した原子を質量分析計 (MS) に導入
3. 特定の質量数 (m/Z) からイオンカウントを測定し、個々の元素を定量

特長：

- 多くの元素に対して検出限界が極めて低く、pptレベルの高感度分析も可能
- 共存元素の影響を受けにくいいため、多元素を同時に定量分析することが可能
- 同位体分析が可能
- 試料を溶液化すれば、分析可能



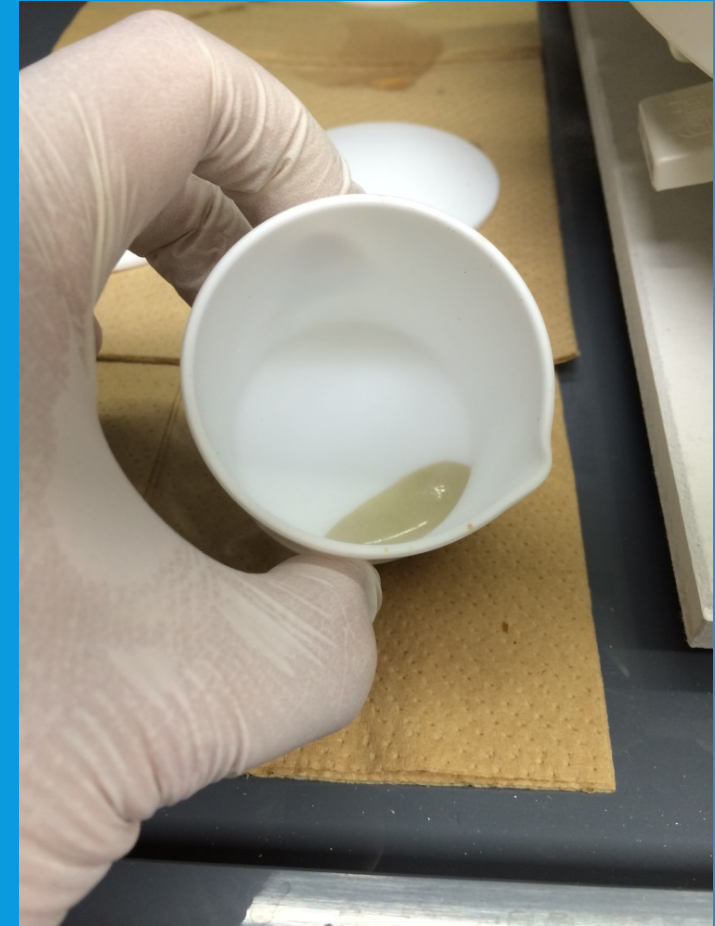
元素の周期表

原子番号		元素記号		元素名		原子量	
1	H	2	He	ヘリウム	4.003	1	1
3	Li	4	Be	リチウム	6.941	2	2
11	Na	12	Mg	ナトリウム	22.990	3	3
19	K	20	Ca	カリウム	39.098	4	4
27	Co	28	Ni	コバルト	58.933	5	5
35	Br	36	Kr	臭素	79.904	6	6
53	I	54	Xe	ヨウ素	126.905	7	7
87	Rb	88	Sr	ルビジウム	85.468	8	8
137	Ba	138	La	バリウム	137.327	9	9
178	Hf	179	Ta	タングステン	180.948	10	10
222	Rn	223	Ac	ラジウム	226.025	11	11
288	Cn	289	Bh	ボヘリウム	288.106	12	12
348	Lv	349	Ts	テネシウム	348.078	13	13
118	Xe	119	Uuo	ウンウンオクト	118.906	14	14
116	Pb	117	Uuh	ウンウンヘプタ	116.903	15	15
114	Po	115	Uuq	ウンウンクワ	114.904	16	16
112	Cn	113	Uup	ウンウンペンタ	112.903	17	17
110	Ds	111	Uuq	ウンウンクワ	110.906	18	18
108	Hg	109	Uuo	水銀	200.59	19	19
106	Pt	107	Uuh	白金	195.084	20	20
104	Ni	105	Uup	ニッケル	58.693	21	21
102	Pd	103	Uuh	パラジウム	106.42	22	22
100	Ni	101	Uup	ニッケル	58.693	23	23
98	Pd	99	Uuh	パラジウム	106.42	24	24
96	Ni	97	Uup	ニッケル	58.693	25	25
94	Zr	95	Uub	ジルコニウム	90.905	26	26
92	Hf	93	Uub	タングステン	180.948	27	27
90	Zr	91	Uub	ジルコニウム	90.905	28	28
88	Sr	89	Uub	ストロンチウム	87.62	29	29
86	Kr	87	Uub	クリプトン	83.80	30	30
84	Kr	85	Uub	クリプトン	83.80	31	31
82	Xe	83	Uub	キセノン	131.29	32	32
80	Xe	81	Uub	キセノン	131.29	33	33
78	Xe	79	Uub	キセノン	131.29	34	34
76	Xe	77	Uub	キセノン	131.29	35	35
74	Xe	75	Uub	キセノン	131.29	36	36
72	Xe	73	Uub	キセノン	131.29	37	37
70	Xe	71	Uub	キセノン	131.29	38	38
68	Xe	69	Uub	キセノン	131.29	39	39
66	Xe	67	Uub	キセノン	131.29	40	40
64	Xe	65	Uub	キセノン	131.29	41	41
62	Xe	63	Uub	キセノン	131.29	42	42
60	Xe	61	Uub	キセノン	131.29	43	43
58	Xe	59	Uub	キセノン	131.29	44	44
56	Xe	57	Uub	キセノン	131.29	45	45
54	Xe	55	Uub	キセノン	131.29	46	46
52	Xe	53	Uub	キセノン	131.29	47	47
50	Xe	51	Uub	キセノン	131.29	48	48
48	Xe	49	Uub	キセノン	131.29	49	49
46	Xe	47	Uub	キセノン	131.29	50	50
44	Xe	45	Uub	キセノン	131.29	51	51
42	Xe	43	Uub	キセノン	131.29	52	52
40	Xe	41	Uub	キセノン	131.29	53	53
38	Xe	39	Uub	キセノン	131.29	54	54
36	Xe	37	Uub	キセノン	131.29	55	55
34	Xe	35	Uub	キセノン	131.29	56	56
32	Xe	33	Uub	キセノン	131.29	57	57
30	Xe	31	Uub	キセノン	131.29	58	58
28	Xe	29	Uub	キセノン	131.29	59	59
26	Xe	27	Uub	キセノン	131.29	60	60
24	Xe	25	Uub	キセノン	131.29	61	61
22	Xe	23	Uub	キセノン	131.29	62	62
20	Xe	21	Uub	キセノン	131.29	63	63
18	Xe	19	Uub	キセノン	131.29	64	64
16	Xe	17	Uub	キセノン	131.29	65	65
14	Xe	15	Uub	キセノン	131.29	66	66
12	Xe	13	Uub	キセノン	131.29	67	67
10	Xe	11	Uub	キセノン	131.29	68	68
8	Xe	9	Uub	キセノン	131.29	69	69
6	Xe	7	Uub	キセノン	131.29	70	70
4	Xe	5	Uub	キセノン	131.29	71	71
2	Xe	3	Uub	キセノン	131.29	72	72
1	Xe	2	Uub	キセノン	131.29	73	73

注：*をつけた元素は人工的につくられたもので、天然には存在しない
 ()をつけた数字は、その元素の代表的な放射性同位体の質量数である(SIAPC)

土壌の試料前処理

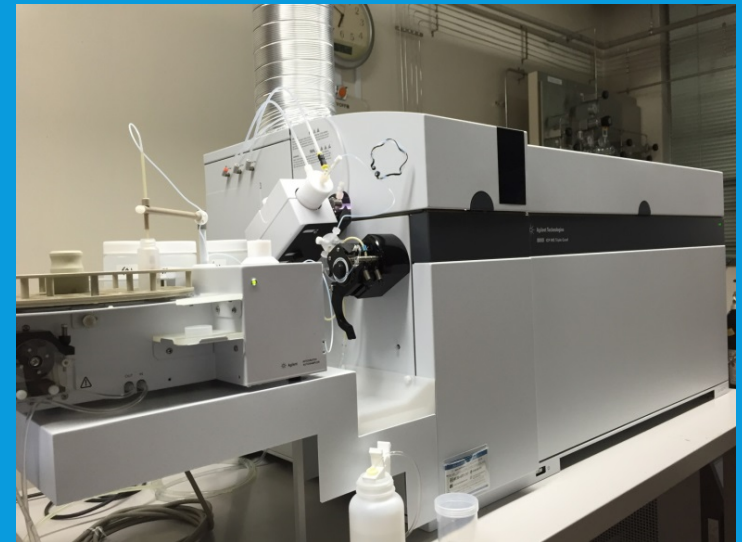
- 土壌試料をICP-MSに導入するために全分解溶液化
- 手順
 1. 土壌0.5gに濃硝酸5mLを加えて、120°Cで2時間加熱環流（残存有機物の分解）
 2. 放冷後、濃硝酸5mL + 過塩素酸5mLを加えて、180°Cで6時間加熱環流後、高温で酸を揮発（難分解性物質の酸化分解）
 3. 放冷後、濃硝酸5mL + 過塩素酸5mL + フッ酸2.5mLを加えて、180°Cで6時間加熱環流後、高温で酸を揮発（ケイ酸塩を分解蒸発・フッ酸とともに除去）
 4. 放冷後、5M硝酸5mLを加えて、100°Cで1時間加熱環流後、超純水30mLを加えて100°Cで1時間加熱環流（沈殿物の溶解）
 5. 超純水で50mLにメスアップして測定試料とする



ICP-MSによる測定

測定手法

- ・ O_2 リアクションモードにより、 α 線放出核種が存在する質量数210から260までの範囲（重い元素）を測定
- ・コリジョン・リアクションセルにより O_2 と反応すると、酸素と反応した元素は検出器1での質量数に16重い質量数に移行するので、元素特定の手がかりとなる



測定結果の例

測定質量数	O2反応なし	試料No54 [cps]	試料No55 [cps]	元素	備考
	O2反応あり				
232	232	0.0	0.0	Th-232	天然土壌に存在
	248	868273.7	697858.4		
235	235	0.0	0.0	U-235	天然土壌に存在
	251	83.4	87.5		
238	238	133.4	95.9	U-238	天然土壌に存在
	254	14632.0	16652.6		
248	248	49467.4	56153.3	Th-232(ThO)	天然土壌に存在
	装置の測定範囲外	-	-		
	U-235/U-238比	0.0057	0.0053		

ウランの同位体比 ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$) に注目

- ・ そもそも、土壌中には多量の天然ウラン ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比0.007) が存在
- ・ ここに、事故由来 (核燃料) のウラン ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比0.05) が降っていたとして、土壌を全分解して事故由来のものを判断できるのか？