

環境試料中の $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比測定のための化学分離法開発

Development of Chemical Separation Method for the Measurement of $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ Isotopic Ratio in Environmental Samples

*島田 亜佐子¹, 野村 雅夫², 塚原 剛彦², 武田 聖司¹

¹JAEA, ²東工大

Calix[4]arene-bis(t-octylbenzo-crown-6)(BOBCalixC6)による Cs の抽出は 2 分で平衡に達し、さらに 5 回繰り返し抽出しても Cs の分配比がほぼ一定であった。この結果をもとに既往の分離スキーム[1]を改良することで、分離時間を半分以下に、試薬使用量を約 1/4 にした。

キーワード : $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比, 東京電力福島第一原子力発電所事故, 環境試料, 廃止措置終了確認

1. 緒言 環境試料に対して $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比を用いた起源特定が広く行われているが、 ^{134}Cs の半減期は 2 年であり数十年後には測定が困難であるため、将来的には半減期が 133 万年の ^{135}Cs を利用した $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比による起源特定がより有効になると考えられる。 $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比測定のためには Cs を土壌中から分離・精製する必要があるが、1 Bq の ^{137}Cs は 312.5 fg であり、質量分析において十分定量可能な ^{137}Cs を得るには多量の土壌を処理する必要がある。そこで、これまでに開発してきた BOBCalixC6 による Cs 分離法の抽出時間や使用回数を最適化し、東海村で採取した 1 Bq/g 程度の土壌試料溶解液からの Cs の分離・精製に適用し、 $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比測定を実施した。

2. 実験 ①0.015 M BOBCalixC6 の 1-オクタノール溶液を等量の 3 M 硝酸と振とうして予備平衡とした。予備平衡後の有機相と等量の 1 $\mu\text{g}/\text{ml}$ の Cs を含む 3 M 硝酸を 1、2、5、15、30 分振とうして Cs を抽出した。抽出後の水相と初期の水溶液中の Cs 濃度から分配比(D_{Cs})を求めた。②予備平衡後の有機相に対し、等量の 1 $\mu\text{g}/\text{ml}$ の Cs を含む 3 M 硝酸溶液を 5 回繰り返し振とうした。各回の水相中の Cs 濃度と初期の水相中の Cs 濃度(積算)から D_{Cs} を求めた。③東海村で採取した土壌を灰化した後、硝酸を加えて 200°C で 4 時間加熱し、酸抽出した。ろ過してろ液を乾固した後、3 M 硝酸で溶解した(土壌溶解液)。10 ml の予備平衡後の有機相と 10 ml の土壌溶解液を分液ロートに入れ、2 分間振とうした。静置して相分離し、水相を排出した後、新たに 10 ml の土壌溶解液を加え 2 分間振とうした。この抽出操作を 5 回繰り返した後、有機相を 1 M 硝酸で洗浄し、洗浄液を排出した後、有機相を遠沈管に回収した。3 倍量の 1 mM 硝酸を加え、50°C で 30 分振とうして Cs を逆抽出した。Cs を逆抽出した後の有機相と 1 度 Cs を抽出した水相を用いて同じ抽出操作をもう一度繰り返した。Cs を逆抽出した 1 mM 硝酸を合わせて乾固し、3 M 硝酸に溶解した後、溶媒抽出を再度行って Cs を精製した。精製後の Cs の $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比を表面電離型質量分析計で測定した。

3. 結論 図 1 に D_{Cs} の振とう時間依存性を示す。 D_{Cs} は 2 分でほぼ一定となっており、既報の手法では振とう時間を 30 分としていたが、2 分程度で十分であることが分かった。また、抽出操作を 5 回繰り返し振とうしても D_{Cs} がほぼ一定であったことから、試料が多量の場合には少量の BOBCalixC6 溶液を繰り返し使用することで使用試薬量を低減できることが分かった。ただし、他の試料を分析する場合にはクロスコンタミが有るため使用できない。この分離法を東海村で採取された土壌の溶解液に適用したところ、塩濃度が高いため D_{Cs} の低下がみられたが、抽出操作を繰り返すことで 70% ほど回収でき、0.7 Bq/g の土壌に対する $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比測定を RSD が 2 以下の精度で実施できた。

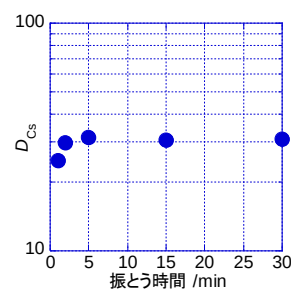


図1 分配比の振とう時間依存性

本研究は、原子力規制庁等との共同研究「長半減期放射性核種等の分析における信頼性確保に関する研究」の成果の一部である。

参考文献 [1] A. Shimada, T. Tsukahara, M. Nomura, et al., J. Nucl. Sci. Technol., 2011, 58(11), 1184-1194.

*Asako Shimada¹, Masao Nomura², Takehiko Tsukahara² and Seiji Takeda¹

¹Japan Atomic Energy Agency, ²Tokyo Institute of Technology