

表面電離型質量分析装置による放射性Csの同位体比分析



研究ノート

芝原 雄司*

Isotopic ratio analysis of radioactive Cs by thermal ionization mass spectrometry

Key Words: Isotopic ratio analysis, radioactive Cs, environmental analysis, nuclear data evaluation

はじめに

同一原子番号を持ち中性子数の異なる核種を同位体と言う。同位体には放射能をもつ放射性同位体と安定同位体とがある。ある元素を構成する同位体の組成比(同位体比)は様々な要因で差を示すため、同位体比を分析することによりその起源や同位体比が変化する要因・過程などの様々な情報を引き出すことができる。

同位体比を分析するために開発されたのが同位体比質量分析(IRMS)である。質量分析装置は概ねイオン化部、質量分離部、検出器部で構成されており、分析対象が気体、液体および固体でイオン化部の仕様が異なる。IRMSは原子力分野でも利用されており、核燃料等の製造や燃焼の評価、原子炉等の中性子場評価、さらに核物質管理などで用いられている。IRMSの1種である表面電離型質量分析装置(TIMs)は、耐食性・耐熱性の高い金属フィラメント上に試料の塩を塗布・乾固し、高真空下でそれを数100度以上に加熱することにより試料のイオン化を行うもので、IRMSの中でも高精度な分析が期待される。

2011年3月11日の東日本大震災に伴う東京電力福島第一原子力発電所事故(1F事故)により、広範囲に放射性核種が放出された。京都大学複合原子力科学研究所(当時、京都大学原子炉実験所)は、放出された放射性核種の観測、汚染の起源解明および事故の再検証等に資するデータの取得を課題の1つとしたプロジェクトを立ち上げた。この課題達成のため

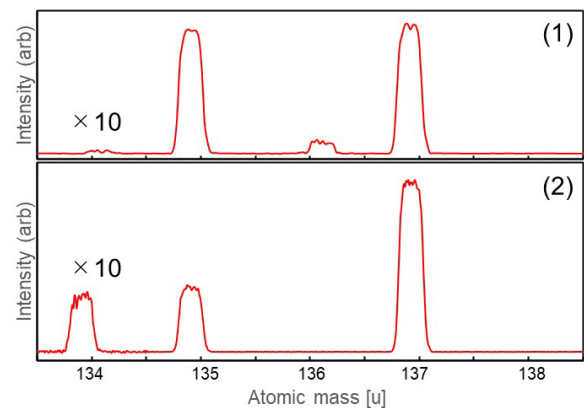


図1 発生条件による放射性Cs生成量の違い。

(1) 研究用原子炉(KUR)で短時間照射したUから回収したCs、(2) 1F事故で放出されたCsを環境試料から回収(2015年当時)。[1]

に、我々のグループではTIMsによるIRMSの放射性核種分析への適用を検討した。TIMsの1F事故分析への適用は、核反応により生成される核種が、その条件により生成量に差が出来ることを利用したものである。1例として ^{235}U の核分裂反応での放射性Csの生成量の違いを示す(図1)。同じ ^{235}U の核分裂反応でも、短時間の中性子照射のUと核燃料として長時間中性子照射がされたUでは、そこから生成される放射性Csの生成量が大きく異なる。

本稿では、TIMsによる放射性Csの同位体比分析による1F事故分析での活動を紹介します、そこから新たに発生した取り組みについて紹介する。

1F事故分析での活動

1F事故で放出された放射性Csは、その生成量の多さと揮発性の高さにより福島県内だけでなく広範囲に拡散した。放射性Csによる被ばく評価及び起源分析に関して、1)放射性Csのうち半減期が2年の ^{134}Cs の減衰が進んで検出されなくなったとき、放射線測定で検出された ^{137}Cs (半減期30年)が1F事故



* Yuji SHIBAHARA

1975年5月生まれ
大阪大学大学院 工学研究科 原子力工学専攻 博士後期課程(2008年)
現在、京都大学 複合原子力科学研究所 原子力基礎工学研究部門 助教
TEL: 072-451-2424
E-mail: shibahara.yuji.7s@kyoto-u.ac.jp

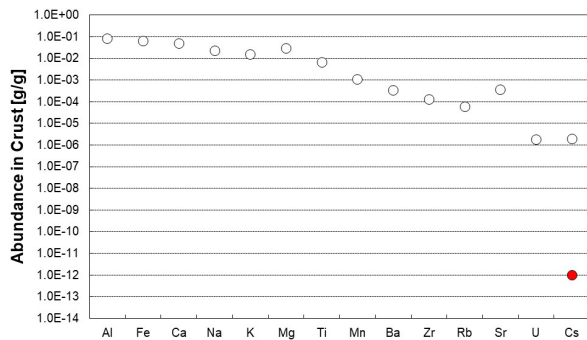


図2 地殻1 gに含まれる金属元素の一般的な量。
赤:放射性Cs。

由来か否かの判別が困難になる、2)放射性Csの放出源が1F事故由来の場合でも、指標が¹³⁴Csおよび¹³⁷Csの2つでは詳細な分析が困難になる、の2項目を検討する課題とした。これらの課題への対応策として、放射性Cs分析へのTIMSによるIRMSの適用を進めた。IRMSであれば、 γ 線を放出しなく且つ半減期が200万年ある¹³⁵Csも分析可能となり、また、¹³⁴Cs/¹³⁷Cs比に加えて¹³⁵Cs/¹³⁷Cs比も加えた放射性Csに関するより詳細な分析が期待できる。TIMSでは、高純度に精製した分析試料をフィラメントに塗布し、高真空下で安定したイオンビームを取り出すことが高い分析精度を出すために必要となる。1F事故で環境に放出された放射性CsをTIMSで分析するために、1)Csの環境試料からの回収方法、および2)Csのイオン化の促進方法の検討を行った。

環境試料として土壌を考える。1m²の土地に対して¹³⁷Csが1MBq含まれているとした場合(20mSv/yの被ばくをする地域に相当)、¹³⁷Csとその土壌に含まれている金属との量的関係は図2の様になり、圧倒的に¹³⁷Csが少ない。20mSv/yの地域はごく限られており、放射性Csの分析を広範囲に適用するには、さらに¹³⁷Csの量が少なくなるために環境試料からのCsの回収が重要となる。Csの回収方法については、初めに福島県内の汚染の程度の高い所で採取した環境試料への適用を行い、その後福島県外の環境試料でも使える様にした。

放射性Csの分析を広範囲の地域にする目的と装置の放射能汚染を防ぐ目的から、分析に使用する試料量(放射性Csの量)は極力少なくしたい。このため、少量でも効率高く安定したCsのイオン化が重要になる。TIMSでは金属フィラメントに分析試料

を塗布するが、同時にイオン化の促進や蒸発による試料損失の低減などを目的とした添加剤を追加することがある。Csのイオン化に関しては、アルカリ土類金属で実績のあるイオン化促進方法の適用を試み、極少量による分析を可能にした。

放射性Csの分析に関する検討で得た結果[2]を図3に示す。これらは福島県内の1Fから半径50km圏内で採取した土壌試料からCsを回収し、ピコグラム(10⁻¹² g)レベルの試料量(¹³⁷Csとして)で分析した結果になる。この時に観測した放射性Csのスペクトルは図1の(2)の様なプロファイルを示した。TIMSによる分析結果は、1)大気圏核実験、チェルノブイリ原発事故で放出された放射性Csと比較すると、数値解析で得られている1Fの放射性Csのそれと良い一致を示した、2)1Fの放射性Csの間でも、1~3号の各炉の間でも比較できる可能性を示した、3)試料の一部は大気圏核実験によるフォールアウト成分との混合であることが示唆された、の3点の知見を示した。1)の結果により、1F事故由来の放出された放射性Csとそれ以外の放射性Csとの分離評価が出来ることが確認できた。また、2)と3)の結果はランダムに出ているのではなく地域性・方角性を示しており、1F事故での放射性Csの放出スキーム等の詳細評価が出来ることが確認できた。

核データ評価での活動

1F事故分析へのIRMSの適用を進めていたところ、¹³⁵Csの核データ評価への協力依頼を受けることとなった。¹³⁵Csは長寿命核分裂生成物(LLFP)であり、マイナーアクチニド(MAs)と同様に放射性廃棄物の管理での検討項目となっている。LLFPやMAsへの対処方法として、中性子照射等による短寿命核種への核変換技術が一つの解決法として期待されている。¹³⁵Csに関しても(n, γ)反応による¹³⁶Cs(半減期16日)への核変換が検討されているが、そのための核データが乏しい状態である。

¹³⁵Csの核データ評価を難しくしている原因に、¹³⁵Csの単体試料の入手の困難さと¹³⁵Csの分析の難しさがある。¹³⁵Csの生成を²³⁵Uの核分裂で行うと、¹³⁷Cs等の他の放射性Csも生成される。図1にある様に、¹³⁵Csの存在割合は、²³⁵Uの短期照射の場合でも¹³⁷Csと同程度しかなく、これ以上にするには¹³⁷Csの減衰を待つかあるいは同位体分離が必要となる。

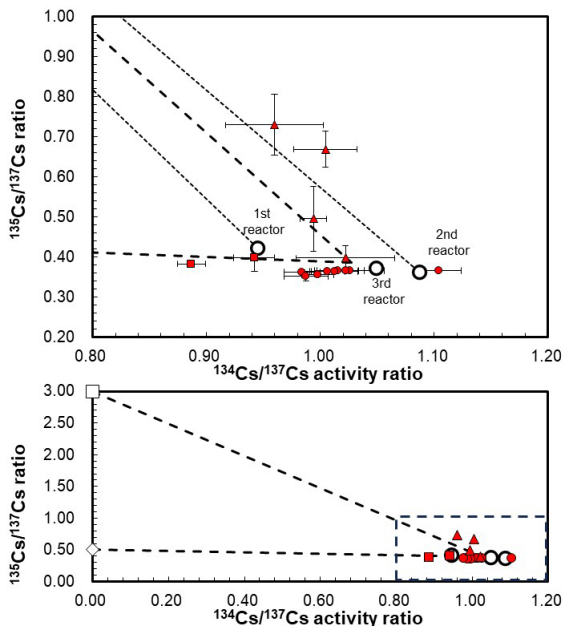


図3 福島県で採取した土壤中の放射性Csの分析結果[2]。
○: 1F1~3号炉心の放射性Cs量の数値解析結果。
□: 大気圏核実験によるフォールアウトの放射性Cs。
◇: チェルノブイリ原発事故で放出された放射性Cs。

一方、¹³⁵Csは長寿命である上に、 γ 線を放出しない β 核種である。このため、放射線計測では高精度な¹³⁵Csの定量が期待できない。

¹³⁵Csの核データ評価では、市販の¹³⁷CsのRI試料を入手し、そこに不純物として含まれる¹³⁵Csを定量することがコストパフォーマンス的には優れている。しかし、上述の通り、その分析方法に課題がある。協力依頼をしてきた研究者も¹³⁵Csの定量装置開発から行ったが、得られた核データでは¹³⁵Csの

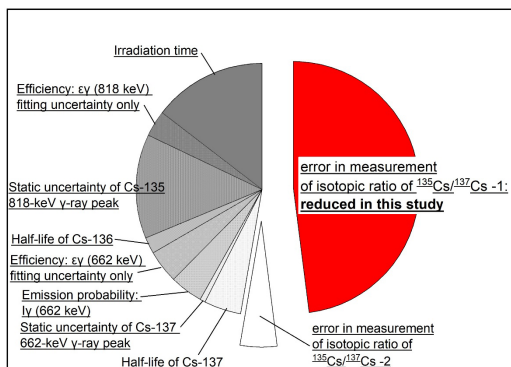


図4 ¹³⁵Csの核データ評価に寄与する誤差要因と相対強度 [3]。赤の箇所の誤差を削減した。

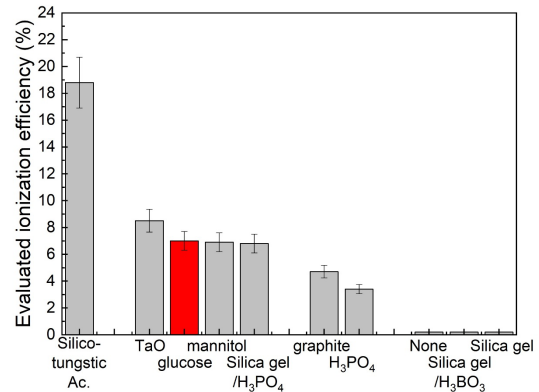


図5 Csのイオン化で検討した添加剤とイオン化効率評価結果 [3]。イオン化効率とノイズ低減の観点から、赤の添加剤を使用した。

定量誤差が一番大きな誤差要因であり誤差全体の半分以上を占めていた(図4) [4]。この課題対応に、1F事故分析で得た知見を基にした、TIMSによる放射性Csの同位体比分析法を¹³⁵Csの核データ評価に適用することとした。

本件では、1F事故分析で検討したCsイオン化促進に加えて、イオン化でのノイズの軽減化を主目的とした添加剤のさらなる検討を行った(図5)。先行研究では¹³⁵Csの分析誤差が3%の精度を得るために¹³⁷Csで1 MBqの試料量が必要であったが、本検討の結果0.3%の分析誤差を1/20万の試料量の5 Bqで達成し、¹³⁵Csの核データ評価での誤差要因を半減することができた(図4) [4]。

おわりに

本稿では、原子力分野での同位体比質量分析の一例として放射性Csに注目し、福島第一原子力発電所事故での検討から核データ評価での適用への展開について紹介した。現在、同様の展開が他の核種でも複数進んでおり、放射性Csと同じように良い結果が得られると期待している。

謝辞

本執筆の期待を与えていただいた大阪大学の藤井敏行教授をはじめ、皆様方には厚く御礼申し上げます。また、この様なことができるのは、放射性核種が取り扱える施設内に高精度な分析装置が設置されているという恵まれた環境があるためであり、この環境を造り維持されてきた当研究所の皆様方にも厚くお

礼申し上げます。

参考文献

- [1] Y. Shibahara et al., Radiological Issues for Fukushima's Revitalized Future, Springer, pp.33-46 (2016).
- [2] Y. Shibahara et al., J Nucl Sci Technol., 54(2), 158-166 (2017).
- [3] Y. Shibahara et al., J. Radioanal. Nucl. Chem., 325, 155-165 (2020).
- [4] S. Nakamura et al., J Nucl Sci Technol., 57(4), 388-400 (2020).

