

水中の放射性不純物分析

井上睦夫

金沢大学

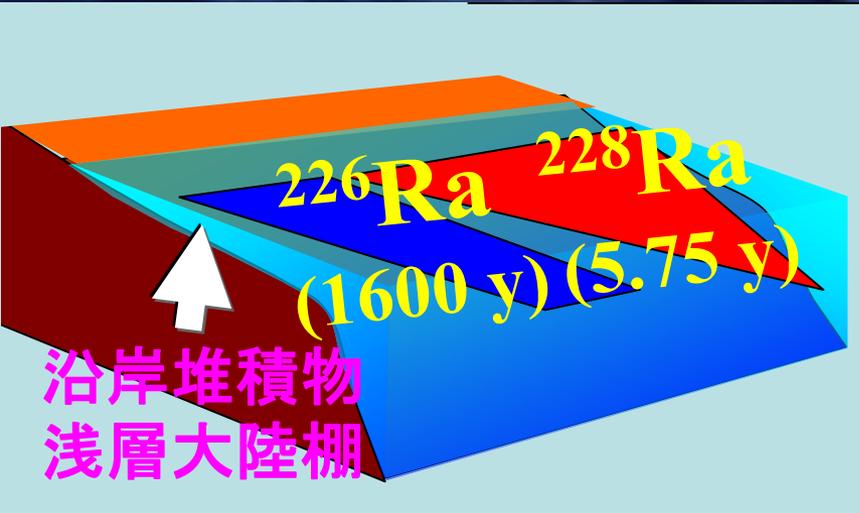
環日本海域環境センター
低レベル放射能実験施設

海水・地下水試料への低バックグラウンド γ 線測定法の適用

- ③ 化学試薬
- ② 化学処理法
- ④ γ 線測定法 (Ge検出器・遮蔽・地下測定室)
- ① 応用例

①応用例-1

^{228}Ra , ^{226}Ra , ^{228}Th からみた表層海水の物質循環



- ・ラジウムは天然の溶存放射性核種で、海水とともに循環
- ・供給源は沿岸堆積物、浅層大陸棚
- ・ ^{228}Ra は ^{226}Ra に比べ著しく短寿命



沿岸・大陸棚近辺で ^{228}Ra 濃度 ($^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比) が高い

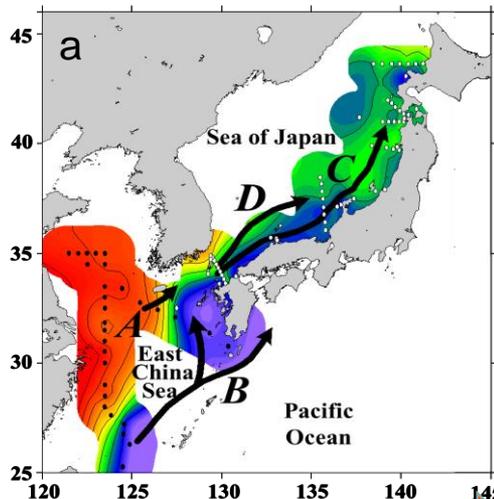
^{228}Th は ^{228}Ra の娘核種で、海洋では**粒子吸着性**

$^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比→**低** 粒子除去→**大**

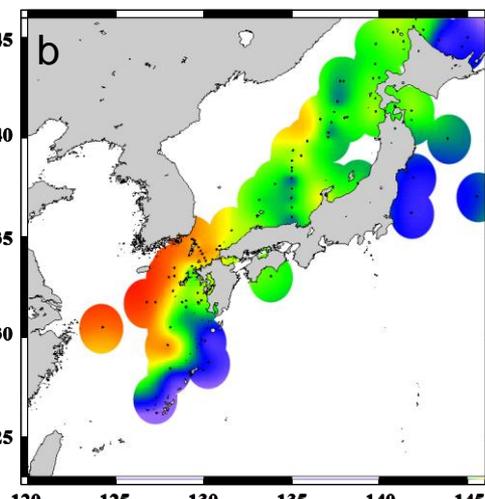
→ Reactive元素 (成分) の挙動、粒子の除去

$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比分布の季節変動

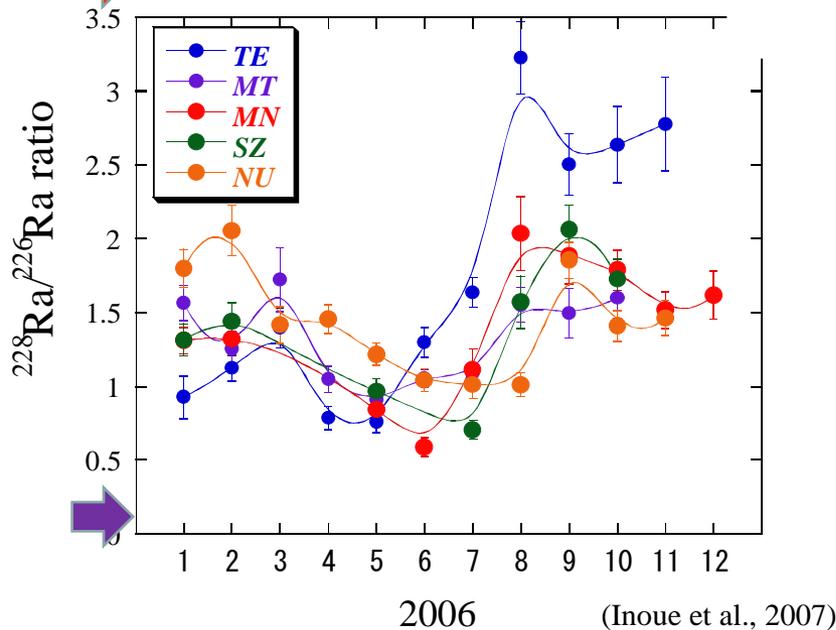
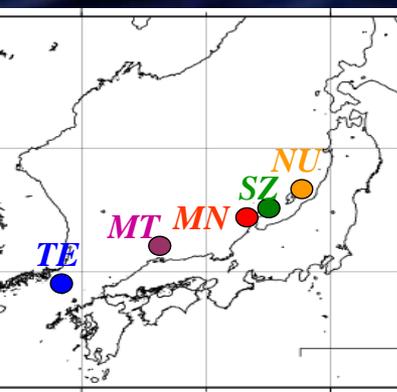
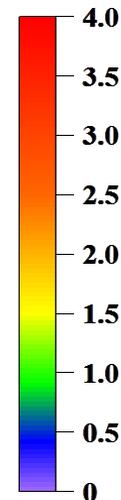
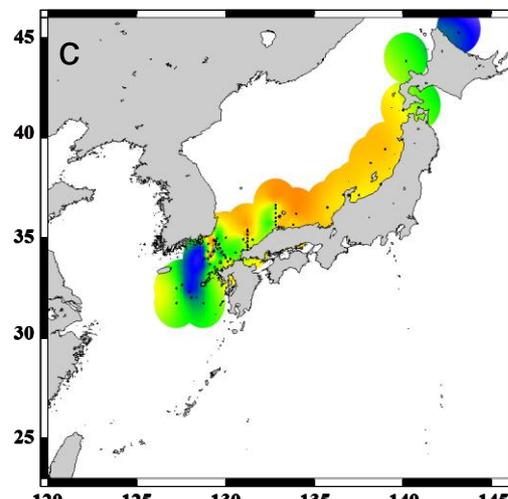
5-6月



7-8月



9-10月



福島原発事故由来の
 ^{134}Cs , ^{137}Cs の移行を説明

$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比
 $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比

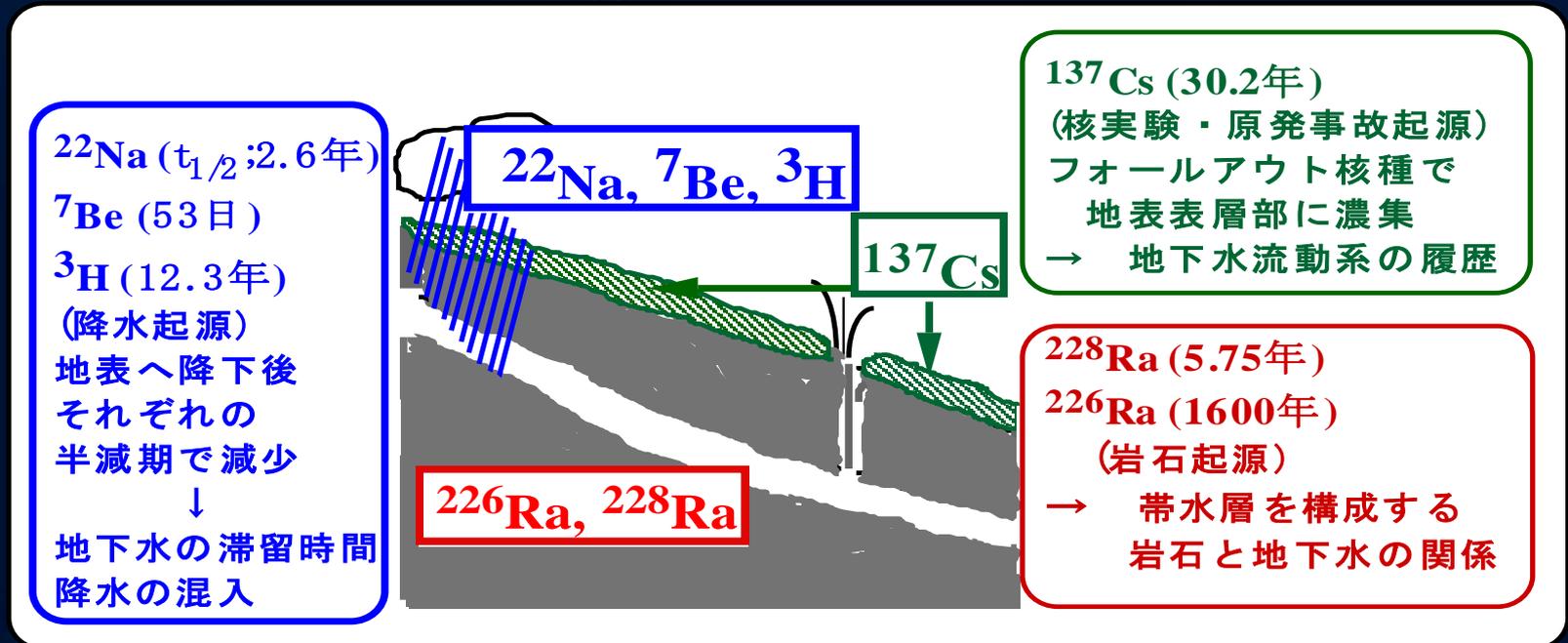
物質循環の指標
(有事の際含む)

(Inoue et al., 2007)

①応用例-2

低バックグラウンド γ 線測定法の地下水への適用

地下水循環研究の指標核種とその起源、およびそれらがもたらす知見

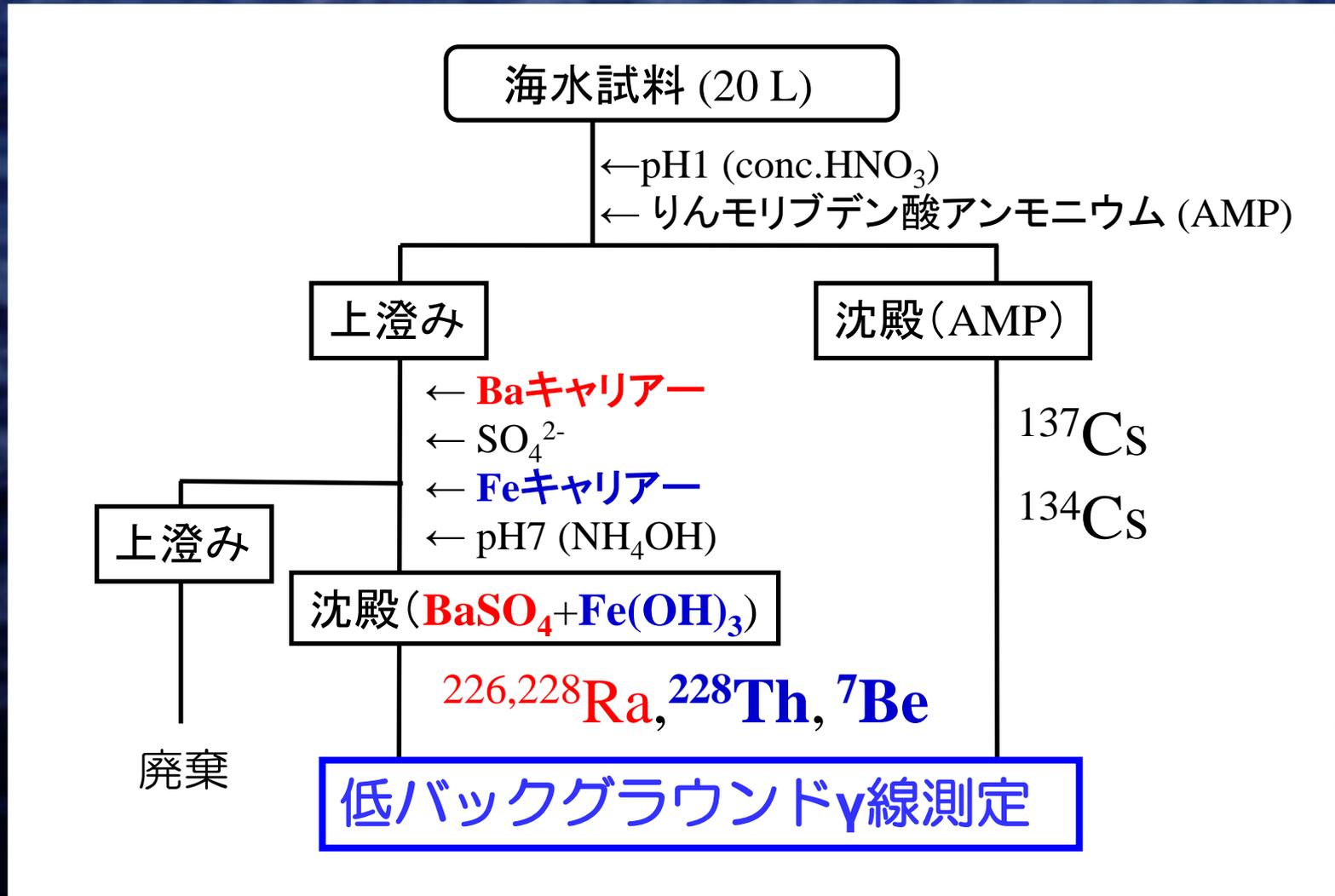


^3H のみ β 線測定

→ 浅層地下水の履歴

②化学処理法

実験スキーム (共沈法)

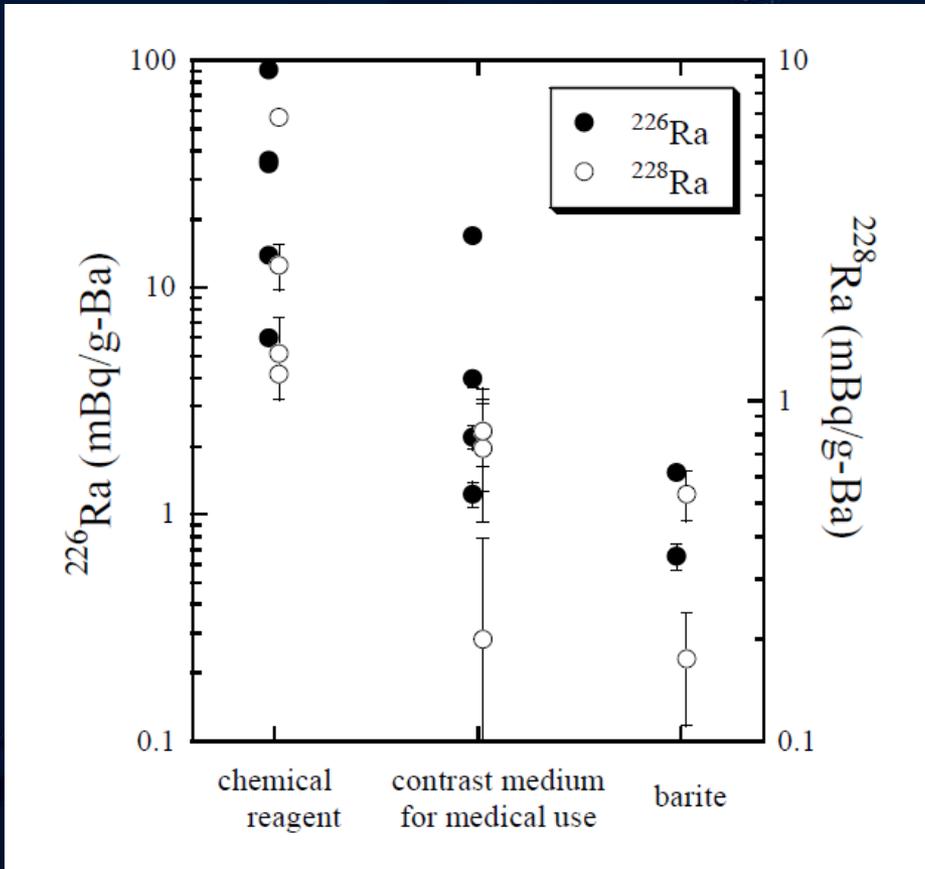


③化学試薬

微弱ラジウム化学処理用のバリウム試薬

Ba試薬には顕著なRa汚染がみられる

BaとRaの分離には、複雑な化学分離が必要 (e.g., Yamamoto *et al.*, 1989)



重晶石 (BaSO_4 , barite)



重晶石からBaを分離、
Baキャリアとして使用

その他の試薬

FeCl₃·6H₂O
 conc.HNO₃ (5 kg)
 conc.HCl (4 kg) (蒸留残渣を回収)



目的核種は
 検出限界以下

試薬における原発由来の放射性セシウム汚染

Table 1 Blank levels of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs in chemical reagents purchased from Japanese company and

Lot No.*	Weight	¹³⁴ Cs (mBq/g)	¹³⁷ Cs (mBq/g)
AMP e1 **	First grade 50 g	n.d.	n.d.
e2 **	First grade 50 g	n.d.	n.d.
e3	First grade 50 g	n.d.	n.d.
e4	First grade 50 g	n.d.	n.d.
e5	First grade 50 g	0.07 ± 0.01	0.07 ± 0.01
CsCl f1 **	Special grade 25 g	n.d.	n.d.
f2	Special grade 25 g	0.05 ± 0.02	0.05 ± 0.01
f3	Special grade 25 g	0.04 ± 0.01	0.03 ± 0.01
Blank DW-1204		n.d.	n.d.
DW-1206		n.d.	n.d.

震災以前に製造
 または
 外国製

ブランク実験

*Lot numbers were checked in our laboratory.

**AMP-e1, -e2, and CsCl-f1 were purchased before the FDNPP accident.

Concentration data were taken from IAEA (2011).

"n.d." denotes not detected.

20-L蒸留水を使用した
 共沈法のブランク実験



目的核種は
 バックグラウンドレベル

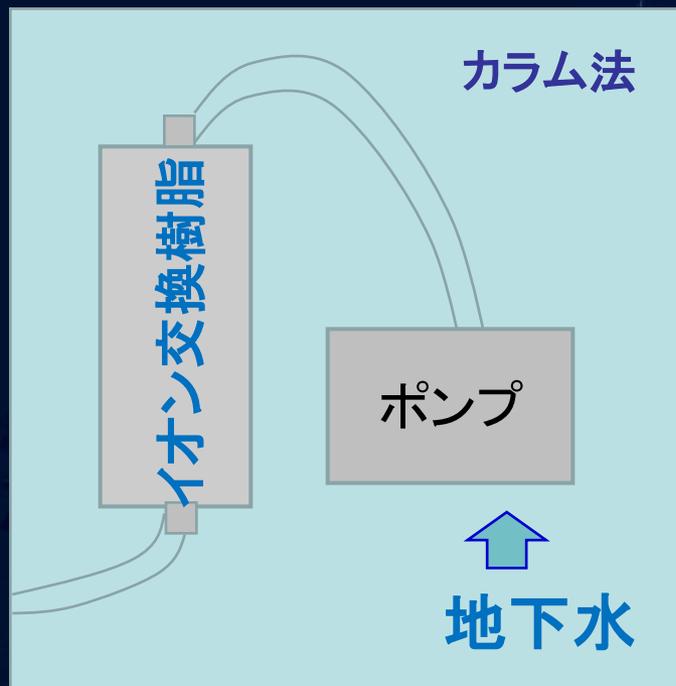
他の処理法 (地下水)

フィールドでの

- ・カラム法 (イオン交換樹脂など)
- ・バッチ法

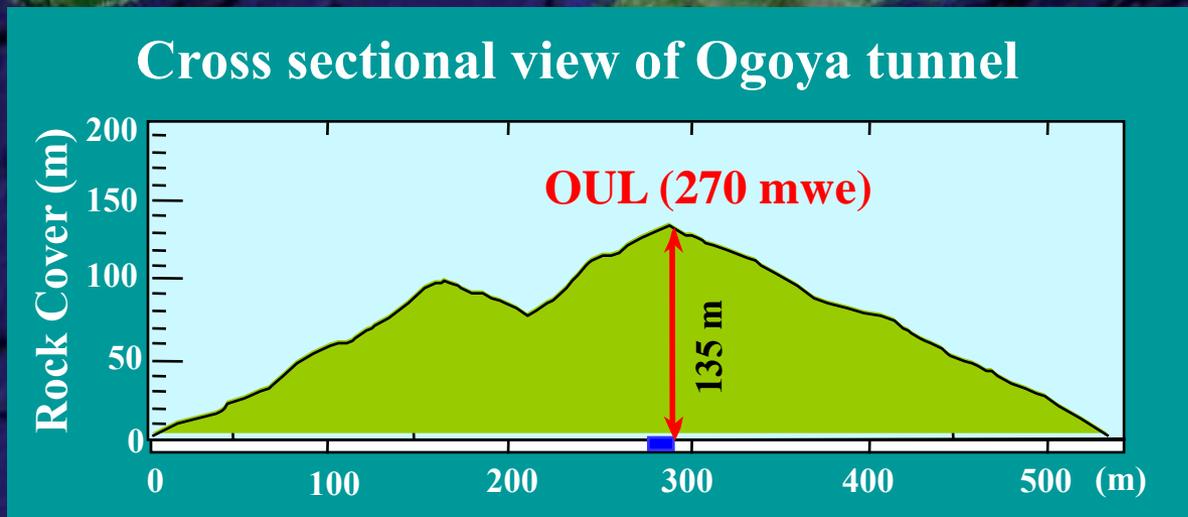
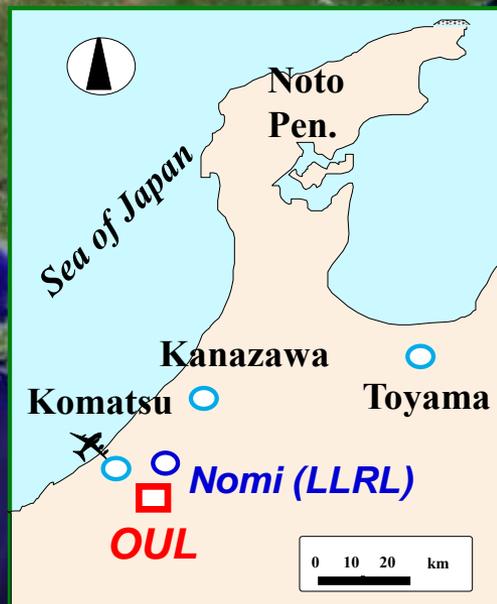
場合によっては

- ・イオン交換樹脂による ^{40}K (妨害核種) の分離

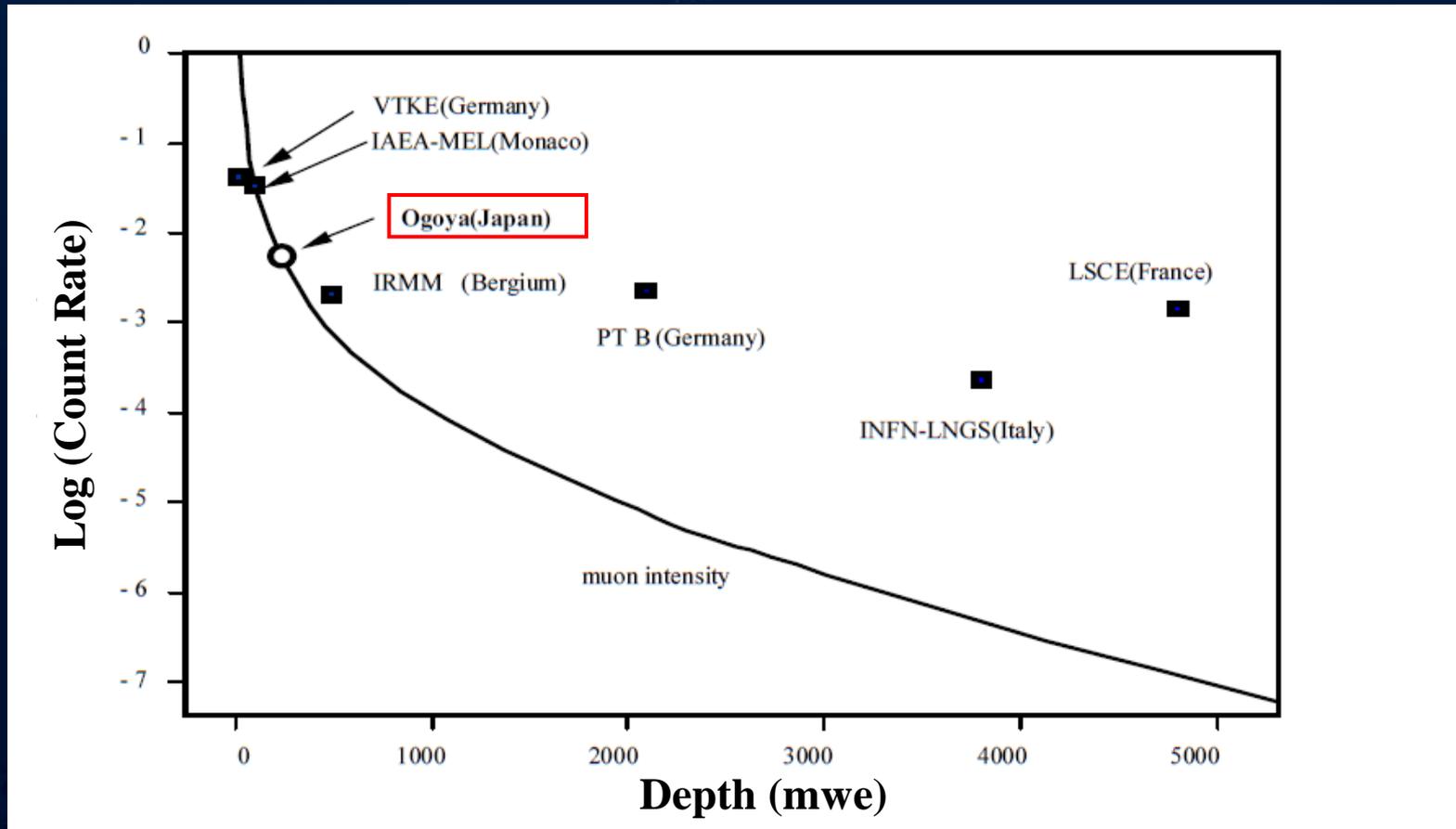


④ γ 線測定法

尾小屋地下測定室 (OUL)



ヨーロッパの地下測定室低レベル γ 線測定用Ge検出器とのバックグラウンド 地上 (0 mwe) との比較



>500 mweで大差なし

検出器構成材中の放射性核種の汚染や岩盤のウランの寄与の違いを反映

➡ 270 mweで十分

Ge検出器の遮蔽 (OUL)

陸奥鉄

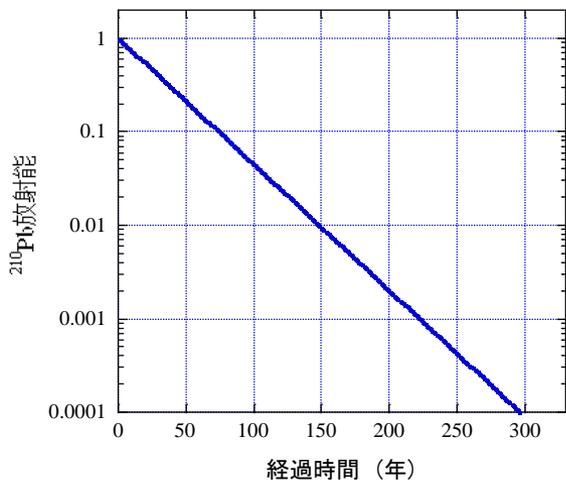
金沢城鉛

窒素

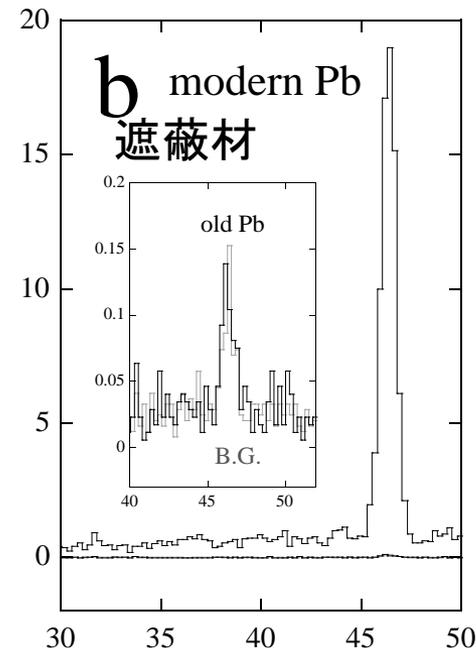
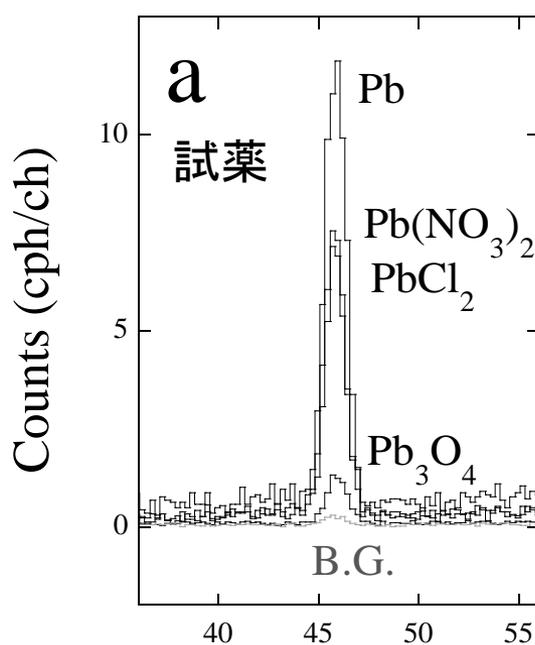


遮蔽材、化学試薬としての鉛

^{210}Pb ($t_{1/2}$, 22 y) \rightarrow ^{206}Pb



1 時間経過にともなう ^{210}Pb 放射能の減少



Energy (keV)

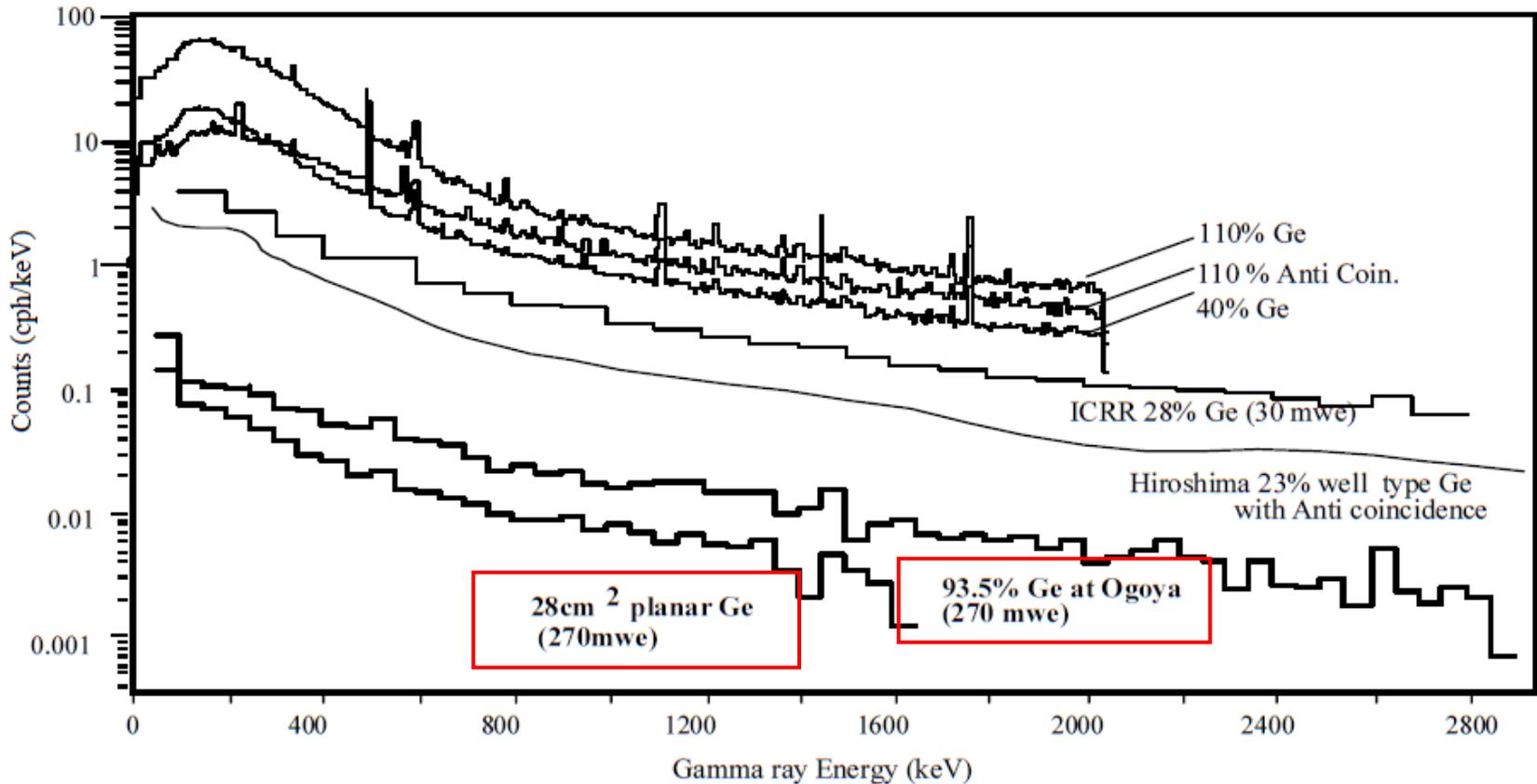
^{210}Pb γ 線スペクトル



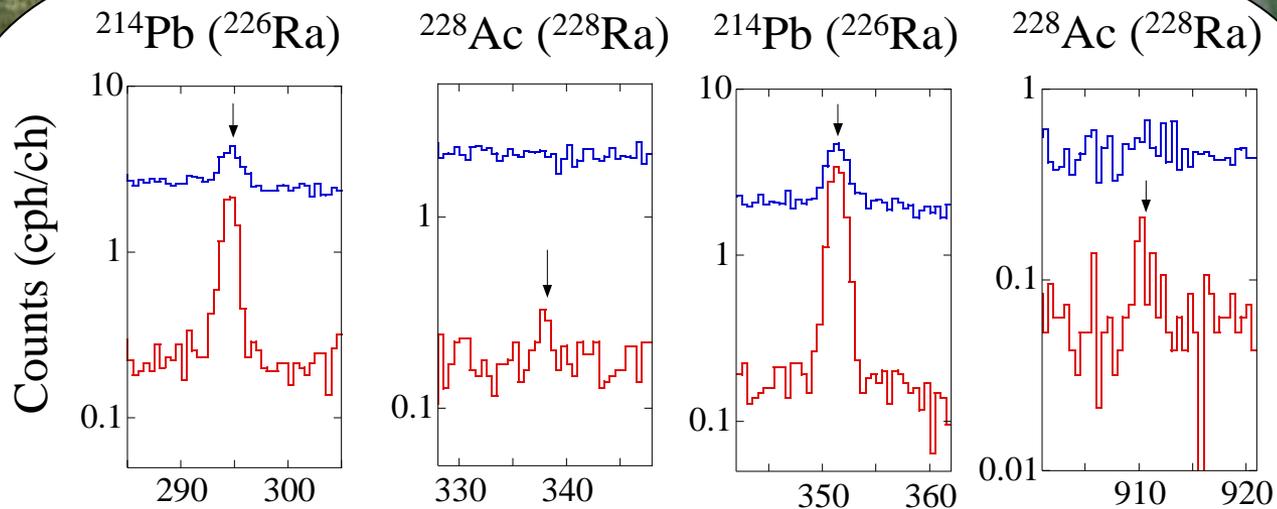
Ge検出器の遮蔽材



他のGe検出器とのバックグラウンドの比較

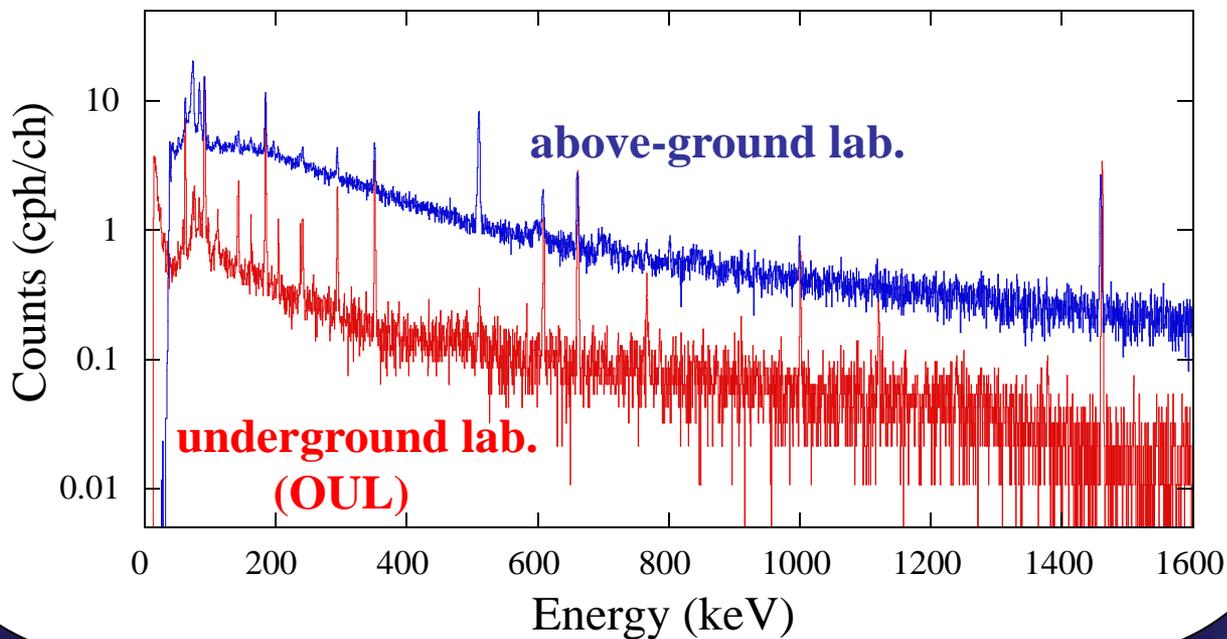


ガンマ線スペクトル (深層海水試料)



20 L deep-water
sample

Sampling
site : *YR-1*
depth : 1000 m
date : May 22, 2004



γ 線測定 of 検出限界濃度

Figure of Merit

$$= S^2/B$$

(S, signal; B, background)

検出限界値を下げるためには、

1. バックグラウンドを下げる
(地下測定室、遮蔽の他、 ^{40}K 除去)
2. 検出効率の高いGe検出器を使用
3. 比放射能の高い線源を作製

海水試料 ($\text{BaSO}_4 + \text{Fe}(\text{OH})_3$ 共沈法)、
平板型Ge検出器、2-3日測定 の条件では

検出限界下限値

^{226}Ra , ^{228}Th $\sim 1 \text{ mBq}$ ($\sim 0.05 \text{ mBq/L}$)

^{228}Ra $\sim 2 \text{ mBq}$ ($\sim 0.1 \text{ mBq/L}$)

20 Lの場合

検出限界改善のためには、

- ① 使用海水量の増加
- ② 測定時間の増加

まとめ：微弱放射能測定の特異性

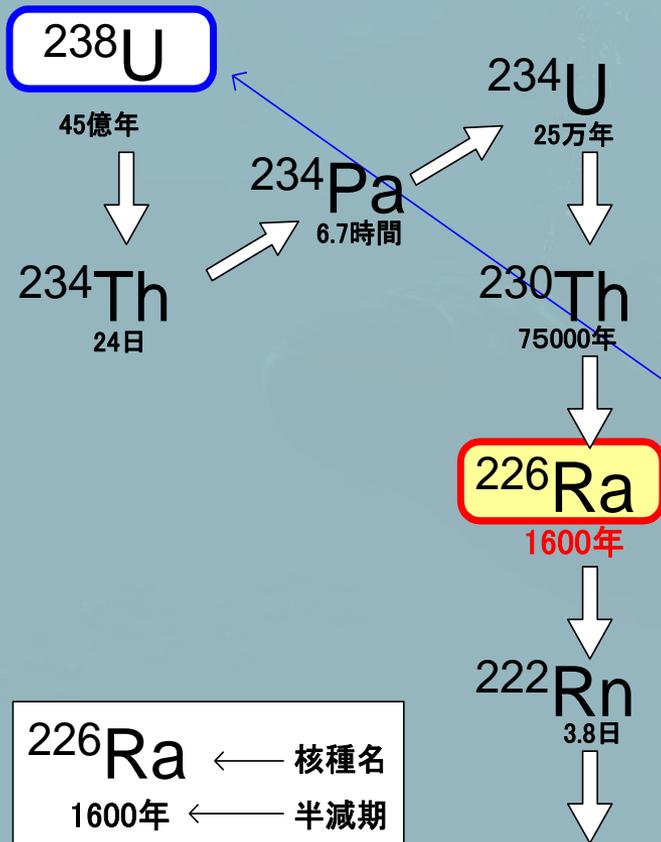
	微弱放射能測定	極微量元素の濃度・同位体比の精密測定
試薬	<ul style="list-style-type: none">・すでに放射能が壊変したものを利用 (化学的純度は関係なし) Ba試薬・・・重晶石 (BaSO_4) Pb試薬・・・金沢城の屋根瓦・未汚染の試薬 CsCl, AMP (福島原発事故前)	超高純度試薬の使用 化学的高純度 (特級試薬など)
処理 測定	<p>多量の水試料が必要 ^{40}K (妨害核種) の除去</p> <p>地下測定屋の利用 遮蔽材……………金沢城の屋根瓦、 戦艦陸奥の鉄材</p>	化学分離必要 化学的汚染の防止 クリーンルームの利用



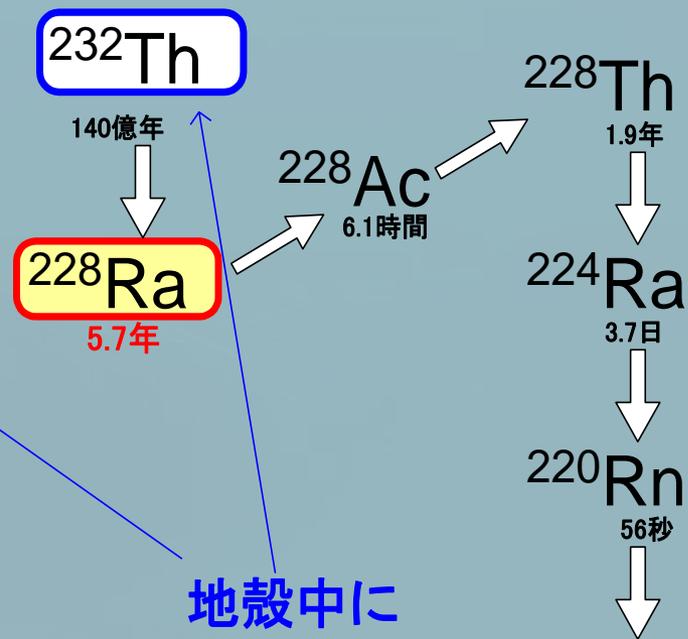
微弱放射性核種のガンマ線測定

^{226}Ra , ^{228}Ra

ウラン系列



トリウム系列



地殻中に
数ppm存在

^{226}Ra ← 核種名
1600年 ← 半減期