

令和元年5月20日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K12593

研究課題名(和文) 環境汚染動態調査に向けた133/135/137CsのICP-MS同時測定技術確立

研究課題名(英文) Measurement of 133/135/137Cs by ICP-MS for the research of contaminant movement in the environment

研究代表者

田野井 慶太郎 (Tanoi, Keitaro)

東京大学・大学院農学生命科学研究科(農学部)・教授

研究者番号：90361576

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は東京電力福島第一原子力発電所事故により広域に飛散した放射性物質環境汚染について放射性セシウムに着目し、今後の農地、森林環境における放射性セシウム(135Cs, 137Cs)の挙動を、天然に存在する安定同位体セシウム(133Cs)と比較解析するために、放射性Csおよび安定同位体Csを単一装置で簡便かつ短時間に同時測定・解析する手法を確立するものである。

研究成果の学術的意義や社会的意義

放射性物質の環境動態の把握は、放射性セシウム(135Cs, 137Cs)のみならず安定同位体(133Cs)と合わせて評価することで多くの情報が得られる。それには複数装置によって測定を行う必要があり煩雑であったが、本法の確立により単一装置で簡単にデータ収集ができるようになる。

研究成果の概要(英文)：The present study established the measurement technique of cesium isotopes (radioactive cesium: Cs-135 and Cs-137, stable cesium: Cs-133) using ICPMS. The technique can contribute to the research of radioactive material movement in the environment of agricultural fields, forest, etc, after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident.

研究分野：環境放射線

キーワード：放射性セシウム

様式 C - 19 , F - 19 - 1 , Z - 19 , CK - 19 (共通)

1 . 研究開始当初の背景

本研究課題では、 $^{133}\text{Cs}/^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の ICP-MS を中核としたフローインジェクションシステムを、多段階の異なる分離濃縮機構のシームレス融合 (固相抽出 - 高効率試料導入法 - リアクション同重体分離 - 四重極質量分離) により、高感度な $^{133}\text{Cs}/^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の同時定量を新規実現させ、全元素データとの統計解析法と組み合わせ包括的汚染評価および挙動予測のための分析システムデザインを構築し実展開する。

2 . 研究の目的

本研究は東京電力福島第一原子力発電所事故により広域に飛散した放射性物質環境汚染について放射性セシウムに着目し、今後の農地、森林環境における放射性セシウム (^{135}Cs , ^{137}Cs) の挙動を、天然に存在する安定同位体セシウム (^{133}Cs) と比較解析するために、放射性 Cs および安定同位体 Cs を簡便かつ短時間で同時測定・解析する手法を確立するものである。

3 . 研究の方法

ICP-MS を中核としフローインジェクションシステムを併用し $^{133}\text{Cs}/^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ の同時定量法を新規実現する。フローインジェクション部においては固相抽出を自動化させ、Cs の濃縮・溶出を行い、ICP-MS 部においては共存元素との分離測定を行う。この際、Cs 以外の元素も同時定量し統計解析を行う。

キレート樹脂にて濃縮できる元素の調査

本研究は濃縮に利用する樹脂をキレート樹脂 MetaSEP IC-ME-1 および-2 (ジーエルサイエンス) , Cs 選択樹脂 (Eichrom) を調査対象とした。それぞれ濃縮および溶出によってどれだけ回収されるかを調査し、また ICP-MS 測定に適しているかを評価することとした。

Cs 測定における同重体干渉の除去検討

セシウムの ICP-MS 測定においてキセノン (^{134}Xe) とバリウム (^{135}Ba , ^{137}Ba) が同重体干渉を発生する懸念がある。そこで、ICP-MS のコリジョン/リアクションセルによって除去できるかを検討した。セルガスには酸素ガス、一酸化二窒素ガス (N_2O) ガス、ヘリウムガスを使用した。

Cs 溶出のための最適条件の検討

濃縮カラムからの溶離条件について検討した。

^{133}Cs 検量線から ^{135}Cs および ^{137}Cs 検出下限値の算出

安定同位体 ^{133}Cs を 0 , 0.1 , 1 , 5 , 10 , 100 ng/L まで調製し検量線を作成し、直線性、 ^{133}Cs 測定強度から計算される ^{135}Cs および ^{137}Cs の検出下限値を評価した。

4 . 研究成果

キレート樹脂にて濃縮できる元素の調査

本研究で採用したキレート樹脂 MetaSEP IC-ME-1 の回収率を下記図に示した。今回の吸着溶出条件においては多くの元素が濃縮測定できることが確認できた。スプリット法によって得られる回収率が 95 % 以上の元素は Li , Na , K , Mg , Mn , Cu , Zn , Rb , Sr , Ag , Cs , Ba , Pb , U であった。なお、Cs 選択樹脂 (Eichrom) は樹脂に含まれる共存元素の影響により ICP-MS 測定に対しては不適當であると判断された (図 1) 。

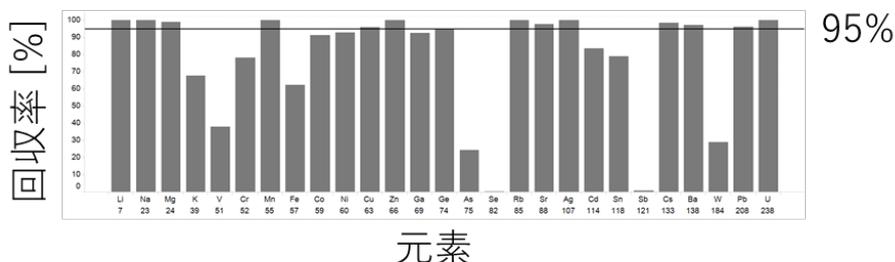


図 1 キレート樹脂を用いた各元素の回収率

Cs 測定における同重体干渉の除去検討

セシウムに対してキセノン (^{134}Xe) とバリウム (^{135}Ba , ^{137}Ba) が同重体干渉をコリジョン/リアクションセルによって除去できるかを検討した。Ba は O_2 ガスでは除去できず N_2O ガスで除去でき、Xe は N_2O ガスでは除去できず O_2 ガスリアクションによって効果的に除去できることが確認された。Ba と Xe を同時に除去するために、 N_2O ガスと O_2 ガスの混合リアクションガスを利用することとした。Ba と Xe の同重体を十分に除去でき、Cs 強度も保つことができる O_2 ガス 1.0 mL/min , N_2O ガス 0.4 mL/min の混合リアクションガス流量を最適条件と決定した (図 2) 。

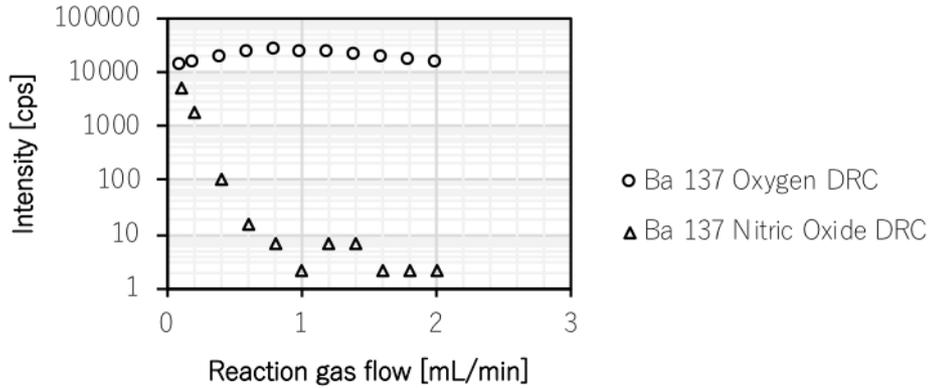


図2 N₂O ガスと O₂ ガスの混合リアクションガスの流量と Ba137 検出の関係

Cs 溶出のための最適条件の検討

濃縮カラムからの溶離液について検討した。カラム内に吸着した元素は、溶離液の酸濃度によって溶出挙動が異なり、溶出段階でも共存元素と目的元素の分離がある程度できることが確認された。溶出とコリジョン/リアクションセルの2重の干渉除去機構を併用することで、誤認の少ない手法となったと考えられた(図3)。

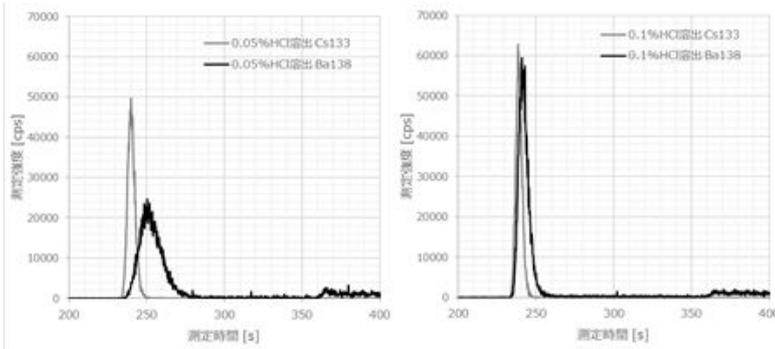


図3 溶離液が与える濃縮カラムからの元素溶出時間への影響

¹³³Cs 検量線から ¹³⁵Cs および ¹³⁷Cs 検出下限値の算出

安定同位体 ¹³³Cs を 0 ~ 100 ng/L まで調製し検量線を作成したところ良好な直線性が得られた(図4)。このときの導入体積は 5 mL とした。¹³³Cs 測定強度から計算される ¹³⁷Cs の検出下限値は、0.74 pg/L (2.3 Bq/L) であり、¹³⁵Cs の検出下限値は 0.72 pg/L (0.03 Bq/L) であった。

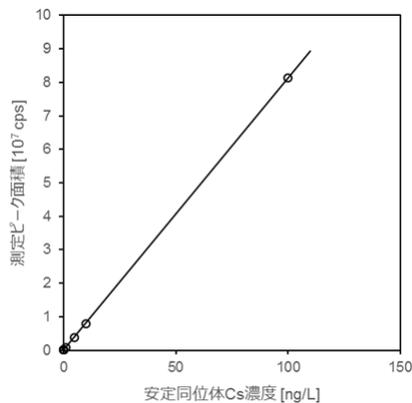


図4 安定同位体セシウム 133 の濃度と測定ピーク面積の関係

通常、同軸ネブライザーでの検出下限値は 50 pg/L 程度であるため、100 倍近い高感度化が達成された。濃縮溶液量を 50 mL とした場合は、さらに約 1/10 まで検出下限値を下げるができると期待された。一方で、Sr 同様に安定同位体 Cs や K がどの程度含まれるかによっても測定感度は変化すると予想される。

これらによって確立した分析手法を実際の環境動態調査へと展開を予定していたが、実用評価にまでは至らなかった。本技術は迅速性に優れるが、今後は実際のサンプルに適用できるかを評価する必要がある。本技術の確立によって、これまでに複数の装置群での分析が必要だったものが、一度にデータ収集ができ、より迅速かつ簡易な放射性セシウム調査ができると期待される。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 0 件)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

東京大学大学院農学生命科学研究科 博士論文 古川真「農地および農作物における放射性物質の新規計測技術および吸収特性評価法の開発」

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：二瓶直登

ローマ字氏名：Nihei Naoto

所属研究機関名：東京大学

部局名：大学院農学生命科学研究科

職名：特任准教授

研究者番号 (8 桁)：50504065

(2)研究協力者

研究協力者氏名：古川真

ローマ字氏名：FURUKAWA MAKOTO

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。