

A02-3 班 海洋：若手育成研修レポート

平成 25 年 10 月 23 日(水)～10 月 25 日(金)実施

場所：(独)海洋研究開発機構むつ研究所

筑波大学 末木研究室

[目的]

新学術領域「放射能環境動態」を扱う者が海洋研究班での実習経験を経ることで各研究者の素質の向上を図った。

[概要]

実施日：平成 25 年 10 月 23 日～10 月 25 日

場所：(独) 海洋研究開発機構むつ研究所

オリエンテーション

実習 1：海水からの放射性セシウムの分離精製

実習 2：海水からのプルトニウムの分離精製：鉄共沈

海洋地球研究船「みらい」見学

海洋観測機器見学(セジメントトラップ、現場濾過器、トライトンブイ等)

試料分析棟見学

実習 3：AMP 沈殿処理、鉄沈殿処理

実習 4：AMP Ge 測定用試料調製

講義

[海水からの放射性セシウムの分離実習]

実習 1：海水からの放射性セシウムの分離精製

粒子保持能 $0.45\ \mu\text{m}$ のメンブレンフィルターで濾過された $21.08\ \text{kg}$ の海水 (図 1) に $40\ \text{mL}$ の濃硝酸を加えて 22.6°C 、 $\text{pH}\ 1.59$ に調整した。この海水にキャリアとして塩化セシウム ($\text{Cs}/\text{CsCl}=0.7894$) を $0.3897\ \text{g}$ だけ加え、 $200\ \text{rpm}$ で 2 時間攪拌した。その後、リンモリブデン酸アンモニウム (AMP) を $6.1623\ \text{g}$ だけ加えて $200\ \text{rpm}$ で 1 時間攪拌した (図 2)。



図 1：実験前の海水



図 2：AMP 添加

実習 3 : AMP 沈殿処理

実習 1 で調製した海水中の AMP 沈殿を 1 晩静置して沈降させた(図 3)。これをブフナーロートと ADVANTEC 規格 5B のろ紙を用いてろ別した。ろ紙上の AMP 沈殿 (図 4)には K 沈殿が含まれるので、これを溶かす為に 2.6 mM 硝酸溶液で沈殿を洗浄した。洗浄が済んだ黄色沈殿をろ紙ごと 50℃の恒温乾燥機に入れ、一晩乾燥させた。



図 3 : 一晩静置後の AMP 沈殿



図 4 : ろ紙上の AMP 沈殿

実習 4 : AMP Ge 測定用試料調製

実習 3 で乾燥された AMP 沈殿を U8 容器に入れて持ち帰り、Ge 測定(定量分析)を行った。



図 5 : U8 容器内の AMP 沈殿 (写真左黄色粉末)

[海水からのプルトニウムの分離実習]

実習 2：海水からのプルトニウムの分離精製：鉄共沈

粒子保持能 $0.45\ \mu\text{m}$ のメンブレンフィルターで濾過された $18.20\ \text{kg}$ の海水(図6)に $40\ \text{mL}$ の濃硝酸を加えて $22.8\ ^\circ\text{C}$ 、 $\text{pH}\ 1.53$ に調整した。この海水にキャリアとして $0.60\ \text{g/mL}$ 塩化鉄(III)を $1.0\ \text{mL}$ だけ加え、 $200\ \text{rpm}$ で 33 分間攪拌した(図7)。その後、アンモニア水で $\text{pH}\ 7.93$ に調整し、 $200\ \text{rpm}$ で 24 分間攪拌した。



図 6：実験前の海水



図 7：塩化鉄(III)の添加

実習 3：鉄沈殿処理

実習 2 で調製した海水中の鉄沈殿を 1 晩静置して沈降させた (図 8)。これをブフナーロートと ADVANTEC 規格 5B のろ紙を用いてろ別した。ろ紙上の褐色沈殿をろ紙ごと 50°C の恒温乾燥機に入れ、一晩乾燥させた。乾燥の後、ろ紙を U8 容器に入るように畳み(図 9)、持ち帰って Ge 測定(定性分析)を行った。



図 8：一晩静置後の Fe 沈殿



図 9：Fe 沈殿 (写真右、ろ紙)

[結果]

海水からの放射性セシウムの分離

キャリアとして添加した塩化セシウム 0.3897 g 中のセシウムは 0.3076 g で、加えた AMP が 6.1623 g なので、理論回収量は 6.4699 g である。今回、実際に U8 容器内に回収できた AMP 沈殿の量が 5.9356 g だったので、回収率は 91.74% であった。筑波大学アイソトープ環境動態研究センターアイソトープ棟にある CANBERRA の Ge 半導体検出器で生成した AMP 沈殿の測定を行ったところ、 ^{134}Cs が 29.95 ± 1.40 mBq/g、 ^{137}Cs が 64.47 ± 1.60 mBq/g だった。使用前 AMP 中 ^{137}Cs の BG が 0.023 mBq/g であることを考慮して、64.45 mBq/g であったことがわかった。 ^{134}Cs の BG は検出限界以下) 得られたスペクトルを図 10、ピークの帰属を表 1 に示す。

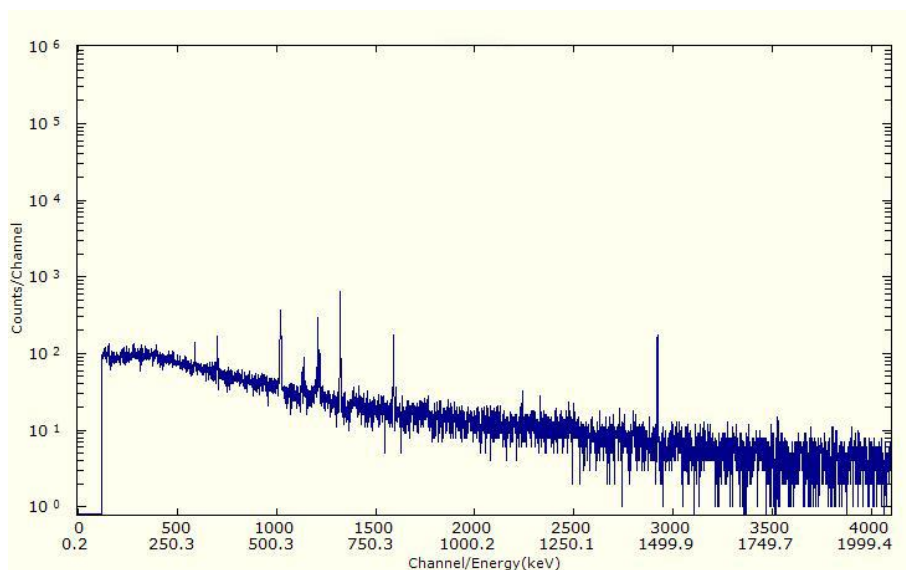


図 10 : AMP 沈殿の γ 線スペクトル

2013 年 10 月 29 日測定 (測定時間 : 100000 秒)

表 1 : AMP 沈殿から検出されたスペクトルピークの帰属 (BG 差引後の値)

核種	ピーク中心エネルギー (keV)	ネット面積 (カウント)	誤差 (カウント)
^{134}Cs	569.21	161.82	21.54
^{134}Cs	604.35	785.12	36.67
^{137}Cs	661.34	1881.33	46.68
^{134}Cs	795.42	561.85	28.49

測定時(2013年10月29日)における海水中のセシウム濃度は以下のとおりである。

^{134}Cs

$$(29.95 \pm 1.40) \times \frac{6.4699}{21.08} = 9.192 \pm 0.430$$
$$\therefore 9.19 \pm 0.43 \text{ mBq/kg}$$

^{137}Cs

$$(64.47 \pm 1.60) \times \frac{6.4699}{21.08} = 19.79 \pm 0.491$$
$$\therefore 19.79 \pm 0.49 \text{ mBq/kg}$$

海水からのプルトニウムの分離

実習 2,3 で生成し、持ち帰った Fe 沈殿をセシウムと同じように CANBERRA の Ge 半導体検出器で測定を行ったところ、図 11 のようなスペクトルが得られた。そのピークの帰属を表 2 に示した。

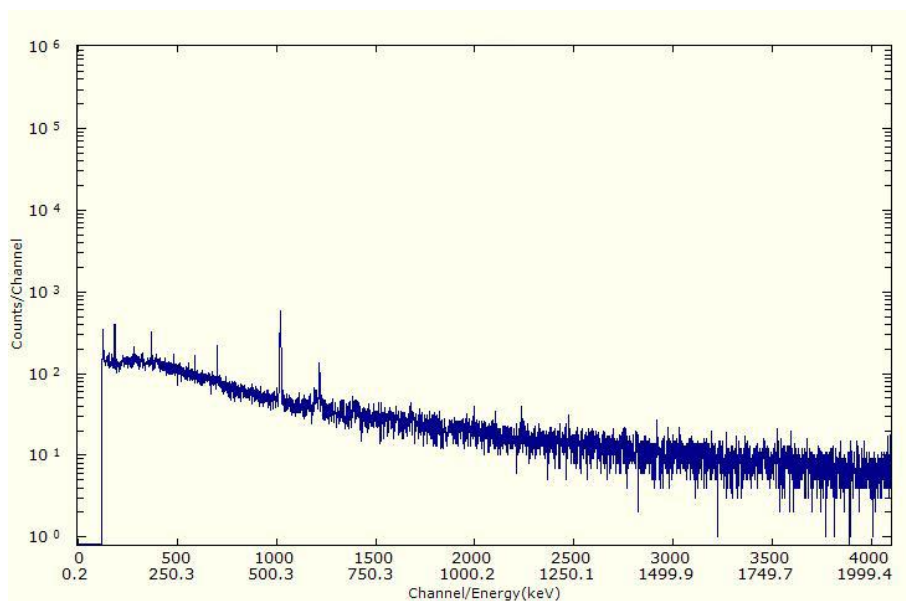


図 11 : Fe 沈殿の γ 線スペクトル

2013年11月28日測定 (測定時間 : 165000 秒)

表 2 : Fe 沈殿から検出されたスペクトルピークの帰属

核種	ピーク中心エネルギー (keV)
^{234}Th	125.96
^{234}Th	184.50
^{235}U , ^{226}Ra	370.80
^{214}Pb	589.47
^{214}Pb	702.20
^{214}Bi , ^{74}Ga	1216.31
^{214}Bi	2237.81
^{40}K	2918.10
^{214}Bi	3525.89

[まとめ・感想]

AMP 沈殿による海水からのセシウムの分離実習では、Ge 測定を行った日時(2013 年 10 月 29 日)における海水中の放射性セシウムの濃度が ^{134}Cs , ^{137}Cs それぞれ、 9.19 ± 0.43 mBq/kg、 19.79 ± 0.49 mBq/kg だとわかった。

また、Fe 沈殿による海水からのプルトニウムの分離実習で得た沈殿中には、少なくとも ^{234}Th , ^{235}U , ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{74}Ga が含まれていた。

この実習で扱った手法を使うことで、濾過した環境水そのままではセシウムの検出が困難だった試料に含まれる放射性セシウムの濃度を知ることが可能になることが分かった。手法自体は非常に理解し易いものだったので、セシウムが AMP と共沈するメカニズムを学び、自身の研究に役立てられるよう、努力したい。