

研究成果報告書

(国立情報学研究所の民間助成研究成果概要データベース・登録原稿)

研究テーマ (和文) AB		福島第一原発由来の未測定核種【長半減期放射性セシウム-135】の分析技術の開発			
研究テーマ (欧文) AZ		Development of analytical method for the hard-to-detect radiocesium-135 released from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident			
研究氏 代表 者	カナ CC	姓) ツン	名) ジェン	研究期間 B	2012 ~ 2014 年
	漢字 CB	鄭	建	報告年度 YR	2014 年
	ローマ字 CZ	Zheng	Jian	研究機関名	(独)放射線医学総合研究所
研究代表者 CD 所属機関・職名		鄭 建 独立行政法人 放射線医学総合研究所・主任研究員			
概要 EA (600字~800字程度にまとめてください。)					
<p>福島第一原発(FDNPP)事故により環境中に放出された放射性セシウム(Cs)のうち、物理学的半減期($T_{1/2}$)が約2年の^{134}Csと約30年の^{137}Csの放出量は事故後の早い時期に推定され、その放射能濃度比($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$)は、汚染源がFDNPPか否かの判定に用いられているが、^{134}Csの半減期が短いため、近い将来、$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$の利用は困難になると考えられる。一方、原子炉中で同程度の個数が生成されると考えられる^{135}Cs($T_{1/2}=230$万年)は、有望なトレーサーとなりうるが、ベータ線核種であるために測定が難しく、FDNPPからの放出量や$^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$原子数比の報告はない。$^{135}\text{Cs}$を測定し、$^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$原子数比を得ておくことは、将来に渡って科学的に重要となる。^{135}Cs測定を既存の放射線測定法により定量するのは化学分離や測定方法等、複雑かつ時間がかかり困難である。そこで我々はICP-MSを用い、環境試料中の^{135}Csの定量測定を行い、これまでに例のないFDNPP由来の$^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$原子数比を求める研究を行った。</p> <p>具体的には、まずリンモリブデン酸アンモニウムによるCs選択的吸着と、二段のイオン交換クロマトグラフィーによる妨害元素(Ba, Mo, SbとSn)の除去によるCs単離法を開発した。得られた溶液中Cs同位体の測定は、近年開発されたトリプルQ-ICP-MS(ICP-MS/MS)で行った。Cs単離溶液中にわずかに残る妨害元素イオンを装置内でN_2Oと反応させ、^{135}Csと^{137}Csの同重体干渉($^{135}\text{Ba}^+$と$^{137}\text{Ba}^+$)と多原子イオン干渉($^{95}\text{Mo}^{40}\text{Ar}^+$、$^{97}\text{Mo}^{40}\text{Ar}^+$、$^{119}\text{Sn}^{16}\text{O}^+$と$^{121}\text{Sb}^{16}\text{O}^+$)を大幅に減少させることに成功し、質量分析法による世界で最も低い検出下限($^{135}\text{Cs}:0.01\text{ pg/mL}$、$^{137}\text{Cs}:0.006\text{ pg/mL}$)を達成した。本分析法を用いてFDNPP事故後採取した環境試料(土壌、落ち葉や地衣類)中の^{135}Csと^{137}Csの同位体の測定を行い、^{135}Cs放出量推定と$^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$比を世界で初めて報告した。これにより今後もFDNPP由来の^{137}Csの長期環境動態調査が可能となると期待される。なお、本研究の成果は、国内外の学術討論会において発表するとともに、国際的に著名な学術誌に3報に掲載した。</p>					
キーワード FA	質量分析	放射性セシウム	環境試料	福島第一原発事故	

(以下は記入しないでください。)

助成財団コード TA					研究課題番号 AA								
研究機関番号 AC					シート番号								

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。）									
雑誌	論文標題 ^{GB}	The key role of atomic spectrometry in radiation protection.							
	著者名 ^{GA}	J. Zheng*, K. Tagami, S. Takeda, W. T. Bu	雑誌名 ^{GC}	Journal of Analytical Atomic Spectrometry					
	ページ ^{GF}	1676~1699	発行年 ^{GE}	2	0	1	3	巻号 ^{GD}	28
雑誌	論文標題 ^{GB}	¹³⁵ Cs/ ¹³⁷ Cs isotopic ratio as a new tracer of radiocesium released from the Fukushima nuclear accident							
	著者名 ^{GA}	J. Zheng*, K. Tagami, W. T. Bu et al.	雑誌名 ^{GC}	Environmental Science and Technology					
	ページ ^{GF}	5433~5438	発行年 ^{GE}	2	0	1	4	巻号 ^{GD}	48
雑誌	論文標題 ^{GB}	Determination of ¹³⁵ Cs and ¹³⁵ Cs/ ¹³⁷ Cs isotopic ratio in environmental samples by combining AMP selective Cs adsorption and ion-exchange chromatographic separation to triple quadrupole inductively coupled plasma mass spectrometry. (online available)							
	著者名 ^{GA}	J. Zheng*, W. T. Bu, K. Tagami, et al.	雑誌名 ^{GC}	Analytical Chemistry					
	ページ ^{GF}	in press	発行年 ^{GE}	2	0	1	4	巻号 ^{GD}	
図書	著者名 ^{HA}								
	書名 ^{HC}								
	出版者 ^{HB}		発行年 ^{HD}					総ページ ^{HE}	

欧文概要^{EZ}

The Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident caused massive releases of radioactivity into the environment. As the major radiation dose contributor, the released amounts of radiocesium, ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs have been estimated, and ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs activity ratio was immediately used to identify radioactive contamination in the environment. However, due largely to the difficulty of ¹³⁵Cs analysis (because of its long half-life of 2x10⁶ y and low-energy β-decay of 76 keV), the amount of ¹³⁵Cs released and the isotopic fingerprint of ¹³⁵Cs/¹³⁷Cs ratio of FDNPP accident have not been studied more than one year after the accident. Considering the short half-life of ¹³⁴Cs, the ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs activity ratio will become unavailable in the future for identification of FDNPP contamination, and for long-term estimation of the FDNPP accident related fission products mobility in the environment. Therefore, there is a strong scientific need to study the release of ¹³⁵Cs and to obtain the isotopic fingerprint of ¹³⁵Cs/¹³⁷Cs of the FDNPP accident.

The determination of ¹³⁵Cs by radiometric methods is very difficult and quite insensitive because of its long half-life and low-energy β-decay. Recently, the analytical potential of ICP-MS for ¹³⁵Cs, ¹³⁷Cs activities and ¹³⁵Cs/¹³⁷Cs isotope ratio have been studied, but the analysis of environmental samples remains to be a great challenge. In Japan, there has been no report on the analysis of ¹³⁵Cs and ¹³⁵Cs/¹³⁷Cs isotope ratio since no method has been established for ¹³⁵Cs analysis in the MEXT environmental radioactivity analytical method.

In this study, we developed an analytical method for the determination of the long-lived ¹³⁵Cs and the atom ratio of ¹³⁵Cs/¹³⁷Cs, as a promising geochemical tracer in environmental samples. The analytical method involves ammonium molybdophosphate (AMP) selective adsorption of Cs and subsequent two-stage ion-exchange chromatographic separation followed by detection of isolated radiocesium isotopes by a triple quadrupole inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS/MS). The AMP selective adsorption of Cs and chromatographic separation system showed high decontamination factors (10⁴ -10⁵) for interfering elements, such as Ba, Mo, Sb and Sn. Using ICP-MS/MS, only selected ions enter the collision/reaction cell to react with N₂O, reducing the isobaric interferences (¹³⁵Ba⁺ and ¹³⁷Ba⁺) and polyatomic interferences (⁹⁵Mo⁴⁰Ar⁺, ⁹⁷Mo⁴⁰Ar⁺, ¹¹⁹Sn¹⁶O⁺ and ¹²¹Sb¹⁶O⁺) produced by sample matrix ions. The high abundance sensitivity (10⁻⁹ for the ¹³⁵Cs/¹³⁷Cs ratio) provided by ICP-MS/MS allowed reliable analysis of ¹³⁵Cs and ¹³⁷Cs isotopes with the lowest detection limits ever reported by mass counting methods (0.01 pg mL⁻¹ and 0.006 pg mL⁻¹, respectively). The developed analytical method was successfully applied to the determination of ¹³⁵Cs and ¹³⁷Cs isotopes in environmental samples (soil, litter and lichen) collected after the FDNPP accident for contamination source identification. The results were reported at several international conferences, and three research articles have been published in leading international journals.