

低バックグラウンド γ 線測定法を利用した海水試料の多核種同時測定法の確立

中野佑介, 井上睦夫, 小村和久

〒923-1224 石川県能美市和気町 金沢大学環日本域環境研究センターLLRL

Y. Nakano, M. Inoue, and K. Komura

A simple coprecipitation method combined with low-background γ -spectrometry
: Determination of ^7Be , ^{137}Cs , ^{210}Pb , and radium and thorium isotopes
in small-volume coastal water samples

[はじめに]

^7Be , ^{210}Pb , ^{137}Cs , ラジウム同位体およびトリウム同位体といった海水に存在する放射性核種は、古くから海洋化学に重要な役割を果たしてきた。ラジウム同位体, ^{137}Cs が溶存成分として海水の動きを探るトレーサーであるのに対し, ^7Be , ^{210}Pb および ^{234}Th は粒子に強く反応する核種としてこれら核種の海水からの除去過程, さらには粒子の挙動のトレーサーとして多くの報告例がある。これら半減期および地球化学的挙動の異なる複数の核種を組み合わせることにより海水の物質循環に関する総括的な議論が可能になる。

本研究では, 簡単な共沈法による海水試料の多核種同時測定法の確立を目的とし, 実際の海水試料から, BaSO_4 , $\text{Fe}(\text{OH})_3$ およびリンモリブデン酸アンモニウム (AMP) による共沈回収により, ラジウム同位体, ^{137}Cs の他, ^7Be , ^{210}Pb , トリウム同位体の同時回収, 測定を行なった。また, その回収率, 再現性により, 実測値から本手法を評価した。

[実験]

本手法の再現性を確認するため, 以下の手順で実験をおこなった。石川県金沢市沿岸で海水 ~100 L を採取 (2007 年 4 月 19 日), カートリッジフィルター (pore size: $0.5\ \mu\text{m}$) を用いてろ過し, 18 L の 5 試料に分けた。その後, 濃 HNO_3 で pH 1 に調製した。セシウムキャリア, リンモリブデン酸アンモニウム試薬 (以下, AMP) を加え, 一時間攪拌後, ^{137}Cs 測定のための AMP/Cs を回収した。Ra 汚染の少ない Ba キャリア (^{226}Ra ; $0.7\ \text{mBq/g-Ba}$) を使用し, BaSO_4 沈殿により Ra を共沈回収した。さらに, ^7Be , ^{210}Pb および ^{234}Th の回収のため, Fe キャリアを加え, $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 沈殿を同時に回収した。Fe キャリアおよび AMP など他の試薬においても, 目的核種の汚染は全く問題のないレベルであることを確認した。また, 回収率の検討のためにこれら上澄み液に対して同様の操作をおこない, 5 試料重ねて測定試料とした。全ての AMP/Cs および $\text{BaSO}_4+\text{Fe}(\text{OH})_3$ 試料の測定は, 石川県小松市の尾小屋地下測定室 (水深換算 270 m) に設置した低バックグラウンド仕様の平板型 Ge 検出器を使用した。 ^{234}Th , ^7Be など比較的短寿命核種も対象とするため, 採取 5 日後より, 5 日間 γ 線測定をおこなった (Fig. 1)。

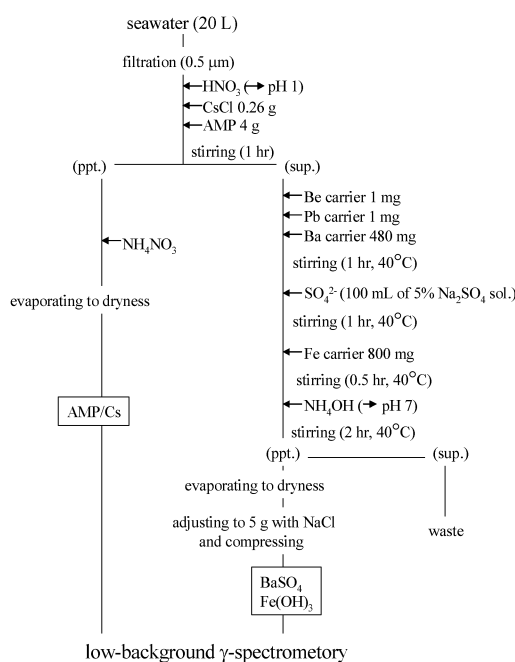


Fig.1 Experimental scheme for coprecipitation processing of seawater samples

γ 線測定後、沈殿混合物試料 ($\text{BaSO}_4 + \text{Fe}(\text{OH})_3$) を硝酸溶液に浸し、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ を溶解、溶け残った BaSO_4 の質量より BaSO_4 の回収率を見積もった。さらに、上澄み液を再びアンモニア水によって中和し、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ を回収後、電気炉で 500°C で5時間加熱し、 Fe_2O_3 とした後、質量を測定し、 Fe の回収率を見積もった。本研究では、共沈処理過程におけるラジウム同位体の回収率を BaSO_4 、 ^7Be および ^{234}Th の回収率を $\text{Fe}(\text{OH})_3$ の回収率で補正した。 ^{210}Pb については BaSO_4 、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ へそれぞれ 25%、75% が取り込まれたとみなし (BaSO_4 のみを γ 線測定した結果から見積もった平均値)、回収率を補正した。

[結果]

実際の測定値による再現性について、 ^{210}Pb 以外については確認することが出来た (Fig. 2)。また、上澄み液による二度目の操作試料の放射能濃度は ^7Be 以外については検出限界以下であった。各核種における回収率の確認の必要があるが、互いに妨害にならないキャリアを利用した簡便な共沈法の組み合わせにより、海水試料における ^7Be 、 ^{137}Cs 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra および ^{234}Th (≤ 1 年で ^{238}U と放射平衡になる) の同時測定が可能となった。

今後、本手法を用いた、多核種同時測定による、海水の循環、混合および粒子の挙動解明が期待される。

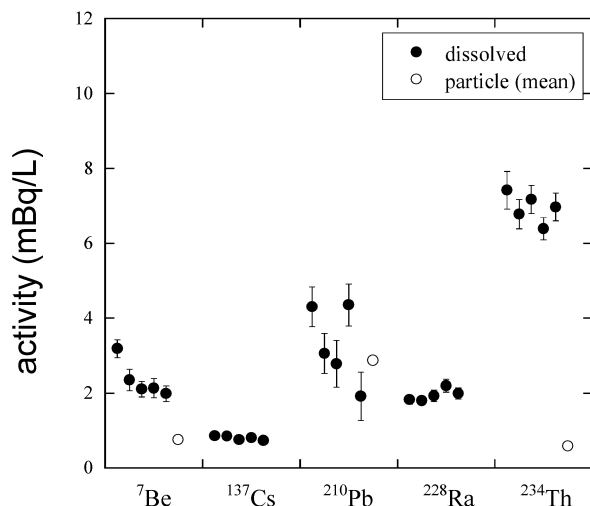


Fig. 2 Replicate determinations of ^7Be , ^{137}Cs , ^{210}Pb , ^{228}Ra , and ^{234}Th in 18 L of seawaters (dissolved fraction). Open circles show $>0.5 \mu\text{m}$ particle fractions (means of five replicate waters)