

フォールアウトを考慮した廃止措置終了確認のためのバックグラウンド設定方法の検討

— 土壌中の $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比測定のための化学分離法の開発 —

島田亜佐子、島田太郎、武田聖司

日本原子力研究開発機構 安全研究センター 環境影響評価研究グループ

緒言 廃止措置の終了確認においては、土壌中の放射能濃度の確認が必要とされるが、福島第一原子力発電所の事故により放出された放射性セシウムがバックグラウンドとして存在するため、これと廃止措置施設由来の放射性セシウムとを区別する必要がある。放射性核種の起源特定には同位体比の測定が広く使用されている。 ^{135}Cs と ^{137}Cs は核分裂収率がそれぞれ 6.535% と 6.236%、半減期が 2×10^6 年と 30 年であり、廃止措置終了時にはこの比を利用した起源を特定できる見込みがある。同位体比の測定には質量分析計が使用されるが、いずれの質量分析計を利用する場合においても Ba の同重体との分離は必須となる。そこで、今回は沈殿分離と calix[4]arene-bis(t-octylbenzo-crown-6)(BOBCalixC6)を用いた溶媒抽出による Cs の分離法について検討を行った。

実験 図 1 に今回検討した分離法のスキームを示す。質量分析における妨害元素を含む 90 ml 1 M HCl 溶液 (628 ppm Ba, 10 ppm Cs, Mo, Sn, Sb) を試料溶液とし、 FeCl_3 溶液を添加した後、 NH_3 を加えて pH を 10 以上にした。次に 1.8 g の NaHCO_3 を添加し、煮沸して沈殿を熟成した。放冷後、AnionSR とろ紙により吸引ろ過した。ろ液を乾固後、90ml 3 M HNO_3 と 1 ml H_2O_2 に溶解し、5 時間還流を行った。還流後、溶液を蒸発乾固し、50 ml 3 M HNO_3 溶液に調製した。これを水相として、同体積の 3 M HNO_3 と予備平衡した 0.01 M BOBCalixC6-1-オクタノール溶液と 30 分間振とうした。抽出後の有機相を同体積の水、0.001M HCl(2 回)と振とうし、抽出された Cs を回収した。

結果 沈殿分離と還流により Mo が 26%、Sn が 100%、Sb が 82%、Ba が 97% 除去できた。一方、Cs は 94% が溶液中に残ることが分かった。溶媒抽出において、93% の Cs は有機相に抽出されたが、Sn、Sb、Ba はほとんど抽出されないためにさらに分離された。Mo は 38% が有機相に抽出されたが、水による洗浄により 29% が除去された。一方、Cs は水での洗浄では大部分が有機相に残ったままであったが、0.001 M HCl による 2 回の逆抽出により 75% 以上が回収された。このとき、有機相に 1-ドデカノールを加えたところ、回収率が 83% まで向上した。スキーム全体としての Mo、Sn、Sb、Ba に対する分離係数は 33、 8.3×10^4 、 2.1×10^5 、 1.2×10^6 であった。Mo と Ba に関してはさらに 2 桁ほどの分離係数の改善が必要である。

謝辞 本成果は、原子力規制庁受託である平成 29 年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(廃止措置・クリアランスに関する検討) 事業の成果である。

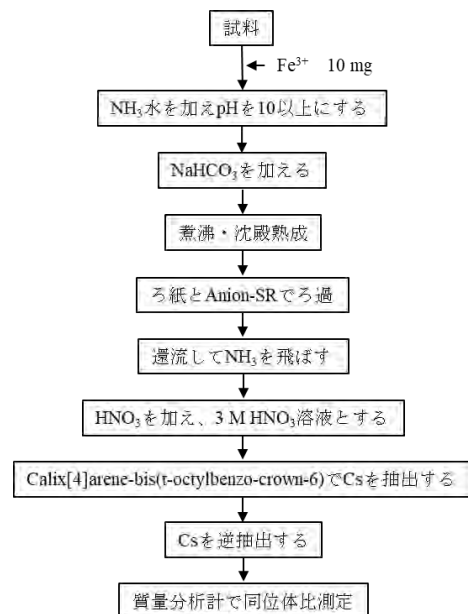


図 1 Cs の分離スキーム