

論文題目

全反射蛍光 X 線分析法を用いた汚染水中極微量ウランの迅速分析

論文要旨

2011年3月11日の東日本大震災とそれに引き続き生じた津波によって東京電力福島第一原子力発電所は甚大な被害を受けた。現在福島第一原子力発電所は廃炉が決まり、廃炉に向けての作業が少しずつ進められているところであるが、高温の炉心を冷却するために4000トンにも及ぶ海水を使用したことにより、炉心周辺にはウラン (U) を含む汚染水が存在すると予想されている。本研究では、そのような汚染水中の U を高感度かつ迅速に分析する方法を確立することを目指した。それは、今後の廃炉作業の進捗を左右すると共に、安心安全な作業環境を整えるために重要な役割を演じるはずである。

現在の公定法では、U 汚染水の放射能濃度は放出される α 線を計測することで測定されるが、濃縮作業等に時間がかかる上、U は長半減期核種のため、この方法の総分析時間は長い。そこで、その信号強度が原子数に比例する蛍光 X 線分析法を U 汚染水の放射能濃度測定に使うことを考え、その中でも試料面での X 線の全反射特性を利用した全反射蛍光 X 線分析法に着目した。しかし、一般的な装置では、U の検出下限は実用に耐えうるものではなく、また福島第一原子力発電所に存在すると予想される汚染水には、U とエネルギーの近い蛍光 X 線を放出するルビジウム (Rb) や臭素 (Br) も含まれると考えられるので、U の分析は困難であるとされていた。

そこで、本研究では、測定前に試料を簡易濃縮することと、モリブデン (Mo) ターゲットの全反射型装置を用いることでさらなる測定感度の向上を目指した。Mo ターゲットから放出される特性 X 線 ($K\alpha$ 線) のエネルギーは $U L_3$ 殻電子の励起・電離エネルギーよりもわずかに高く、効率的に L_3 殻空孔を生成できるので、そこに M_5 殻電子が遷移することで生じる $U L\alpha$ 線の観測に有利である。また、汚染水から U 吸着樹脂で U を選別する方法も開発し、Rb や Br のような共存元素があっても福島第一原子力発電所の廃炉現場で適用できる分析方法を構築した。

実験では、瓦礫を純水に浸漬することで調製した瓦礫浸漬液に様々な濃度の U 溶液を混合することで、実際の汚染水を模した U 含有瓦礫浸漬液を調製し準備した。U 吸着樹脂を用いて、試料溶液から U を抽出した後に、簡易エバポレーターで完全に乾固した。そして、その試料の乾燥残渣を元々の溶液量よりも少ない量の溶液で溶解することで濃縮試料とし、可搬型・卓上型全反射蛍光 X 線分析それぞれで測定した。

濃縮試料を用いることで、可搬型・卓上型装置それぞれの測定感度を濃縮しない場合の 10 倍に向上させることができ、要求される感度条件は満たされた。また、これらの分析方法の総分析時間は、U 吸着樹脂による化学処理に 2 時間、簡易濃縮に 15 分、滴下・乾燥・測定に 10 分程度と 2 時間半程度であり、従来の α 線計測法よりもはるかに短く、汚染水中の U を高感度かつ迅速に分析するスキームを確立できた。今後、廃炉作業の進む福島第一原子力発電所の現場での活用を期待している。