

令和7年度
JAEA-NRA安全研究成果報告会

東京湾堆積物に含まれる人為的ウランの
同位体分析及び起源識別
—質量分析法による核種分析の潮流を捉えて—

令和7年11月13日
原子力規制庁長官官房技術基盤グループ
放射線・廃棄物研究部門
山本 康太

Yamamoto et al. (2024) Environmental Technology & Innovation, 36, 103761.

本研究は、原子力規制庁とJAEA、東京大学、東京科学大学、QST及び京都大学との共同研究「長半減期放射性核種等の特性評価方法に関する研究」の成果の一部である。

同位体比から分かること
(既往研究より)

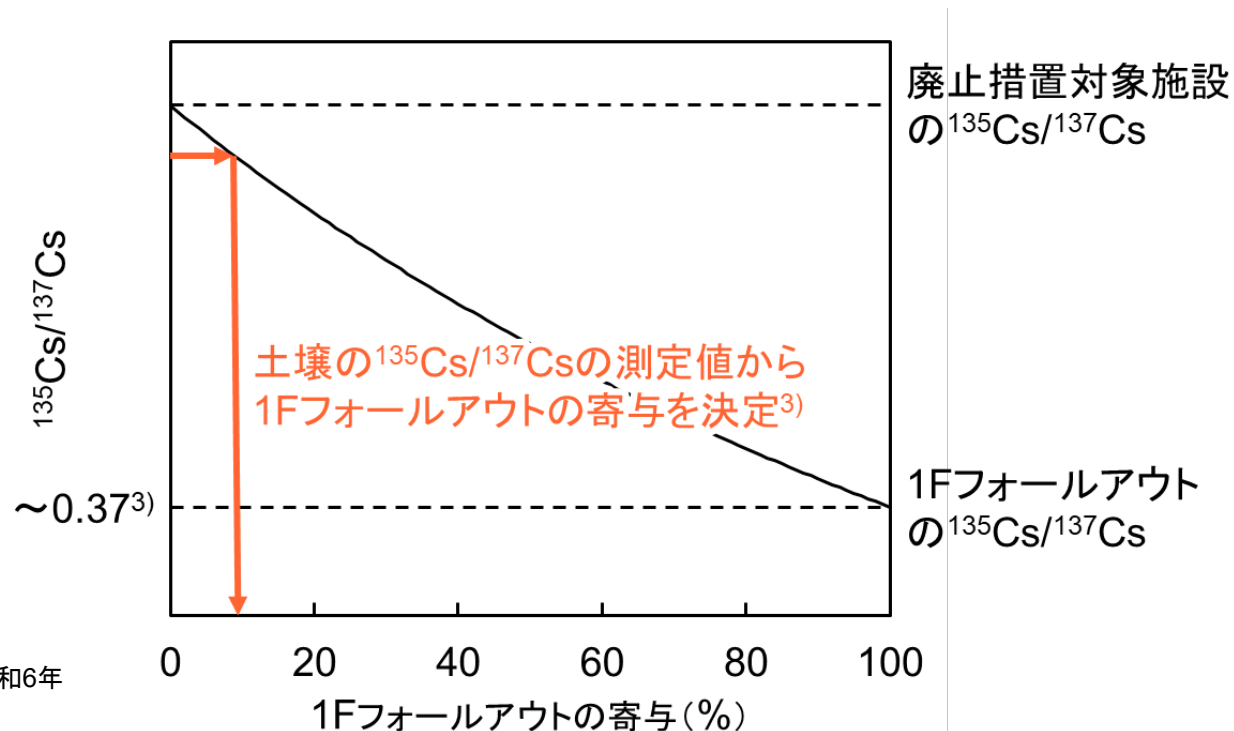


同位体比に基づく放射性物質放出源の識別

廃止措置が終了した後のサイト解放に関する基準への適合性判断において、福島第一原子力発電所由来のフォールアウト(1Fフォールアウト)の影響を除いた事業由来汚染の値で判定を行うという考え方が示された。¹⁾

土壌試料、廃止措置対象施設及び1Fフォールアウトの $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ から、事業由来汚染の放射能濃度を評価する手法が報告されている。²⁾

土壌の $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ に対する1Fフォールアウトの影響



1) 原子力規制委員会、令和6年

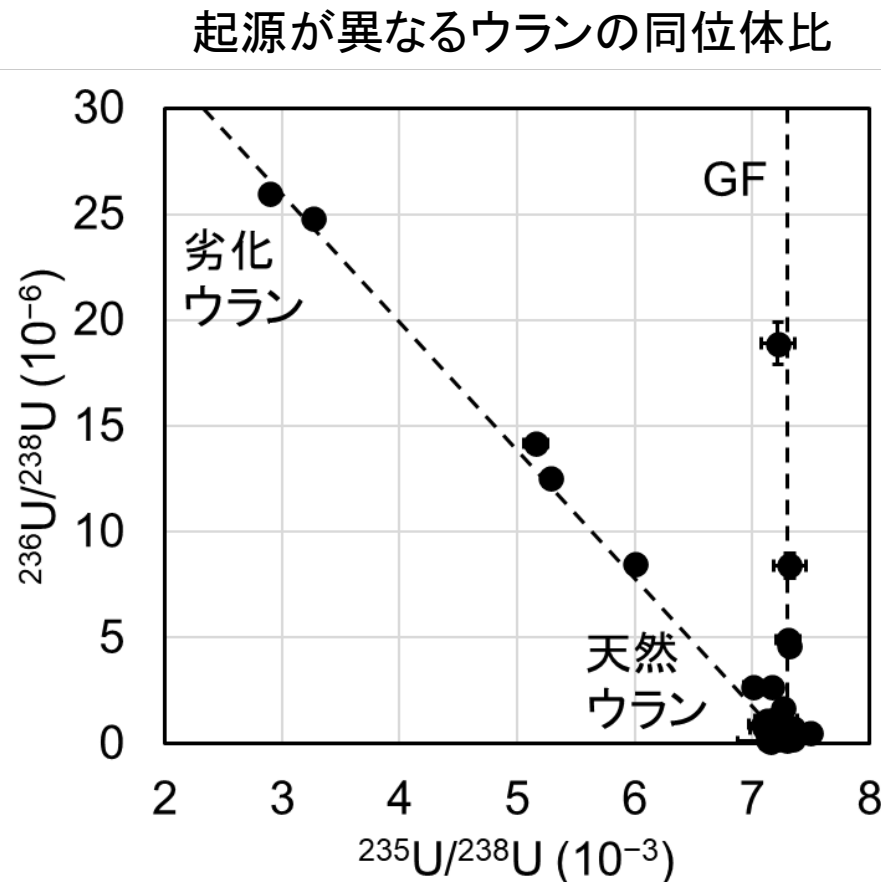
2) 島田ほか、令和6年

3) Shimada et al. (2021)



同位体比に基づく放射性物質放出源の識別

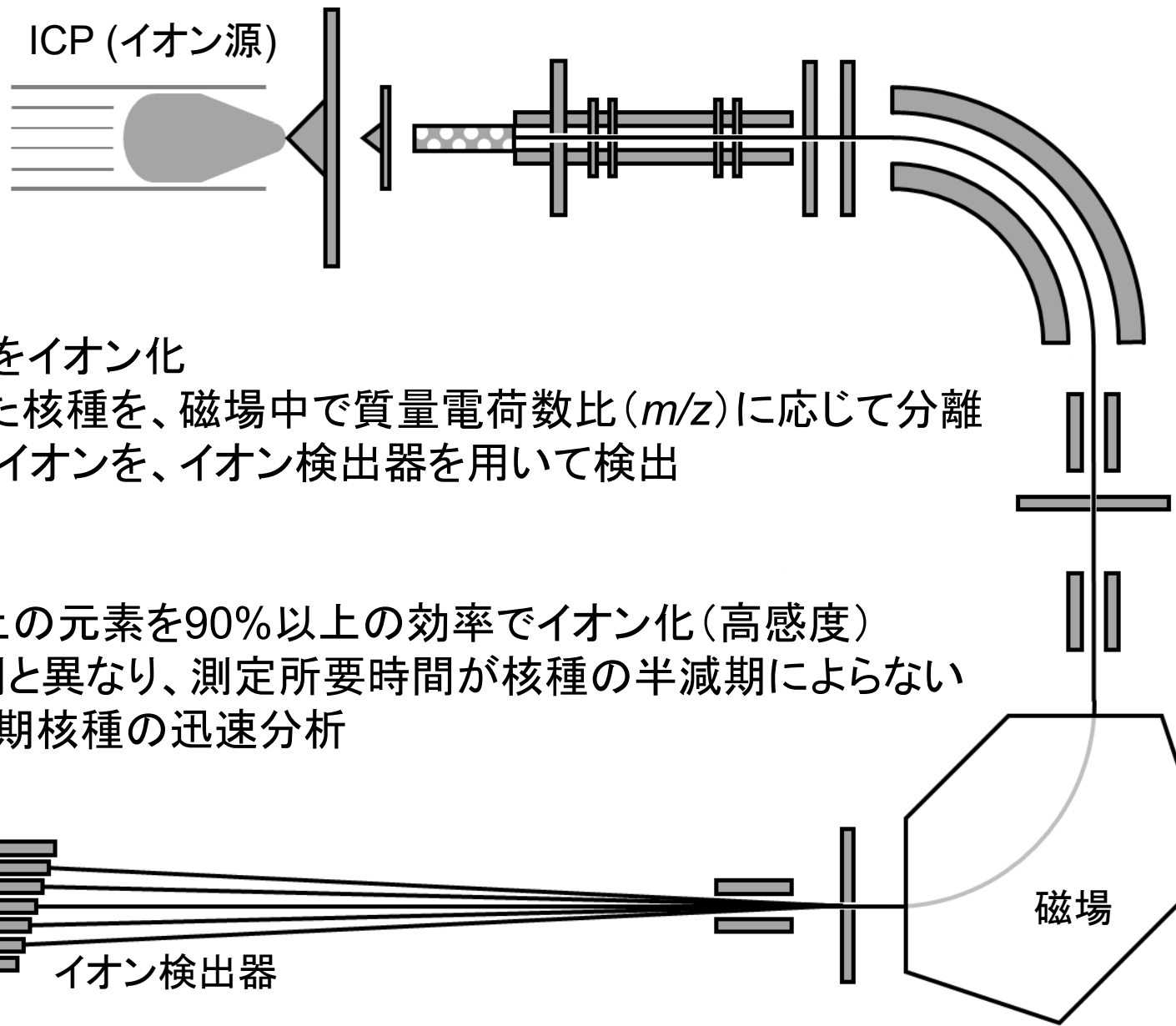
Ohno et al. (2022)は、1960年代～1970年代に国内で捕集された大気降下物のU同位体比を測定し、工業用の劣化ウランと核実験由来のウラン(グローバルフォールアウト、GF)が含まれていることを見いだした。



同位体比の測定法 (質量分析法とは)



多重検出器型誘導結合プラズマ質量分析計(MC-ICP-MS)



【原理】

1. ICPで試料をイオン化
2. イオン化した核種を、磁場中で質量電荷数比(m/z)に応じて分離
3. 分離されたイオンを、イオン検出器を用いて検出

【特長】

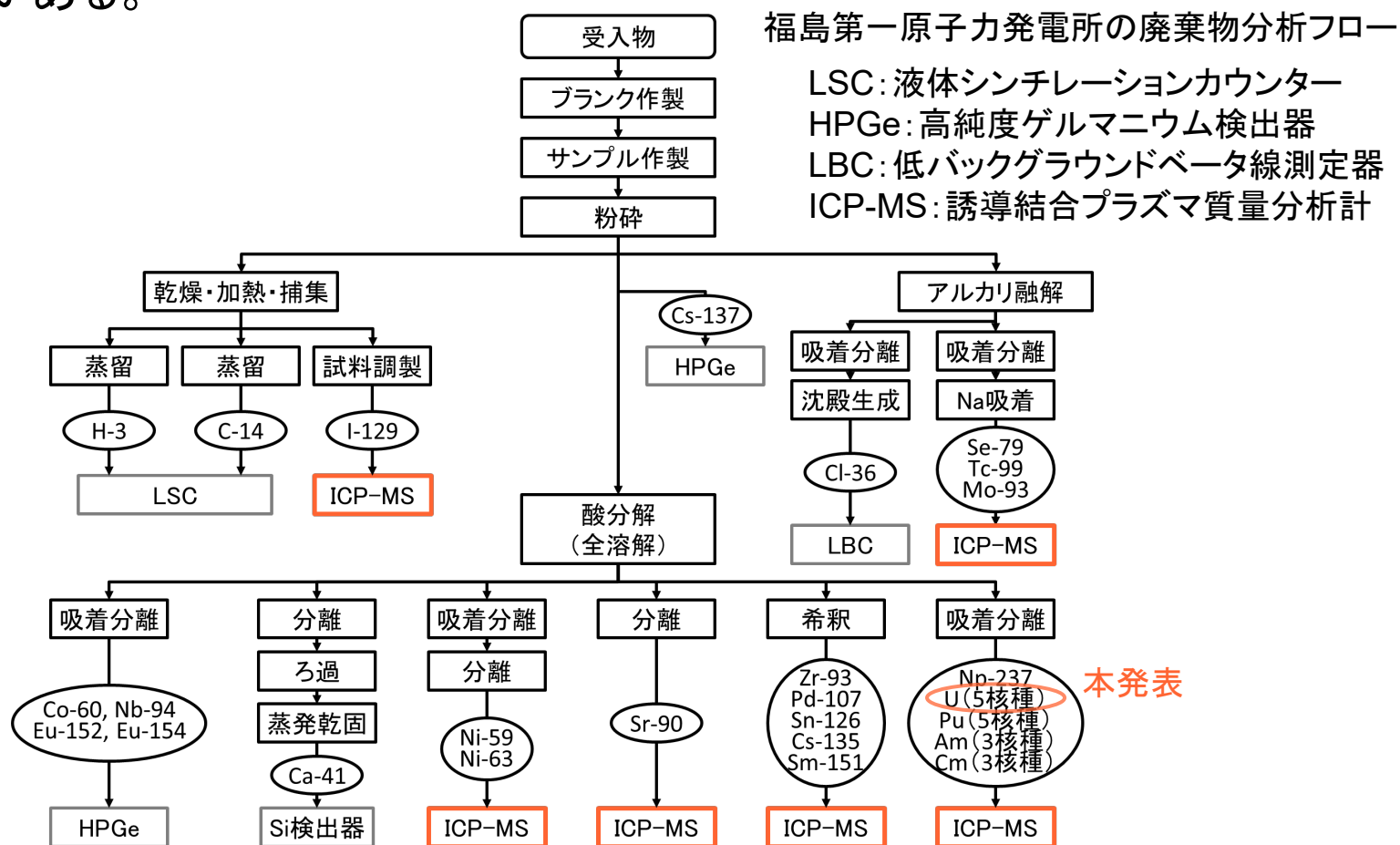
- 50種類以上の元素を90%以上の効率でイオン化(高感度)
- 放射線計測と異なり、測定所要時間が核種の半減期によらない
→ 長半減期核種の迅速分析

研究の背景 (規制上の課題)



質量分析法による核種分析の広がり

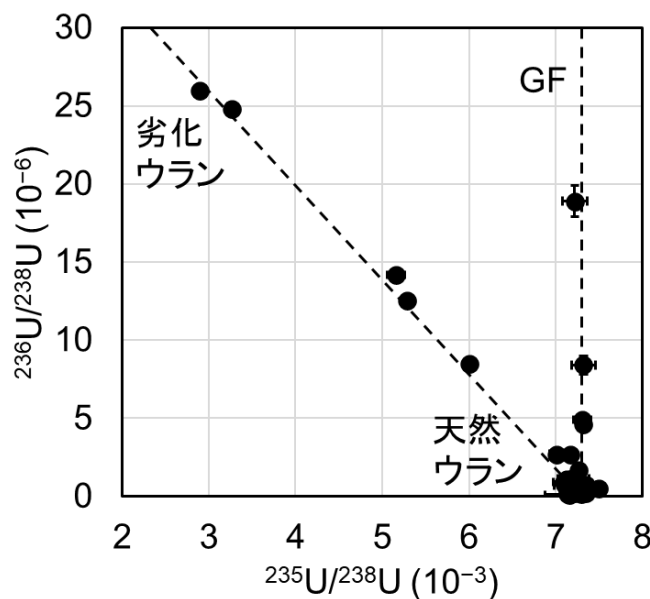
長半減期放射性核種の測定において質量分析計を活用する動きが広がつつある。原子力規制庁は、事業者が提出する質量分析計を用いた放射性核種分析データの妥当性確認の基礎となる科学的・技術的知見を蓄積する必要がある。





ウランの起源と同位体比

同位体	天然存在度(%)	半減期(年)	備考
^{233}U	—	1.592×10^5	—
^{234}U	0.0054	2.455×10^5	—
^{235}U	0.7204	7.04×10^8	濃縮度($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$)はウランの用途を反映 ・濃縮ウラン: 核燃料 ・劣化ウラン: 触媒、金属材料等
^{236}U	—	2.342×10^7	人為利用(中性子照射)されたウランの痕跡
^{238}U	99.2742	4.468×10^9	—

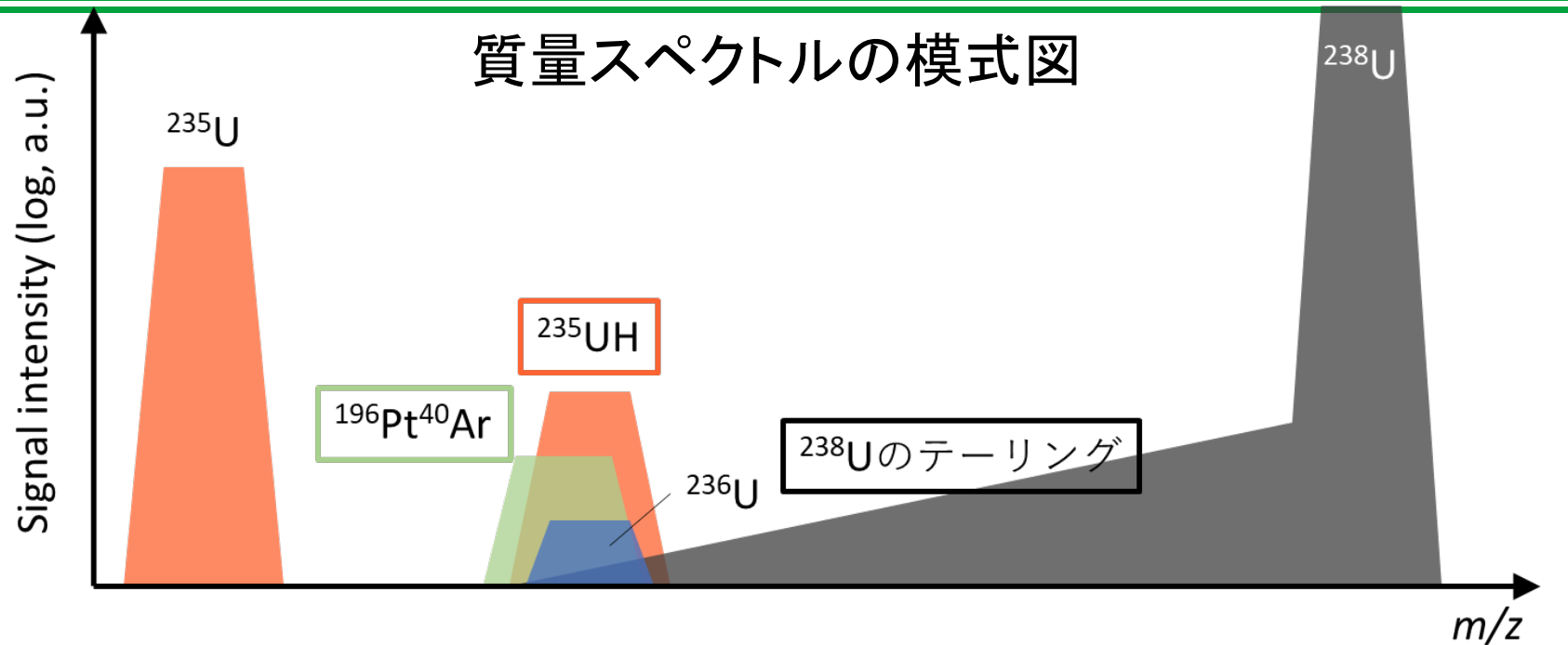


起源識別の指標となる

研究課題・目的



$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 測定上の課題と本研究の目的



3種類の質量スペクトル干渉により、 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 測定データの信頼性が低下

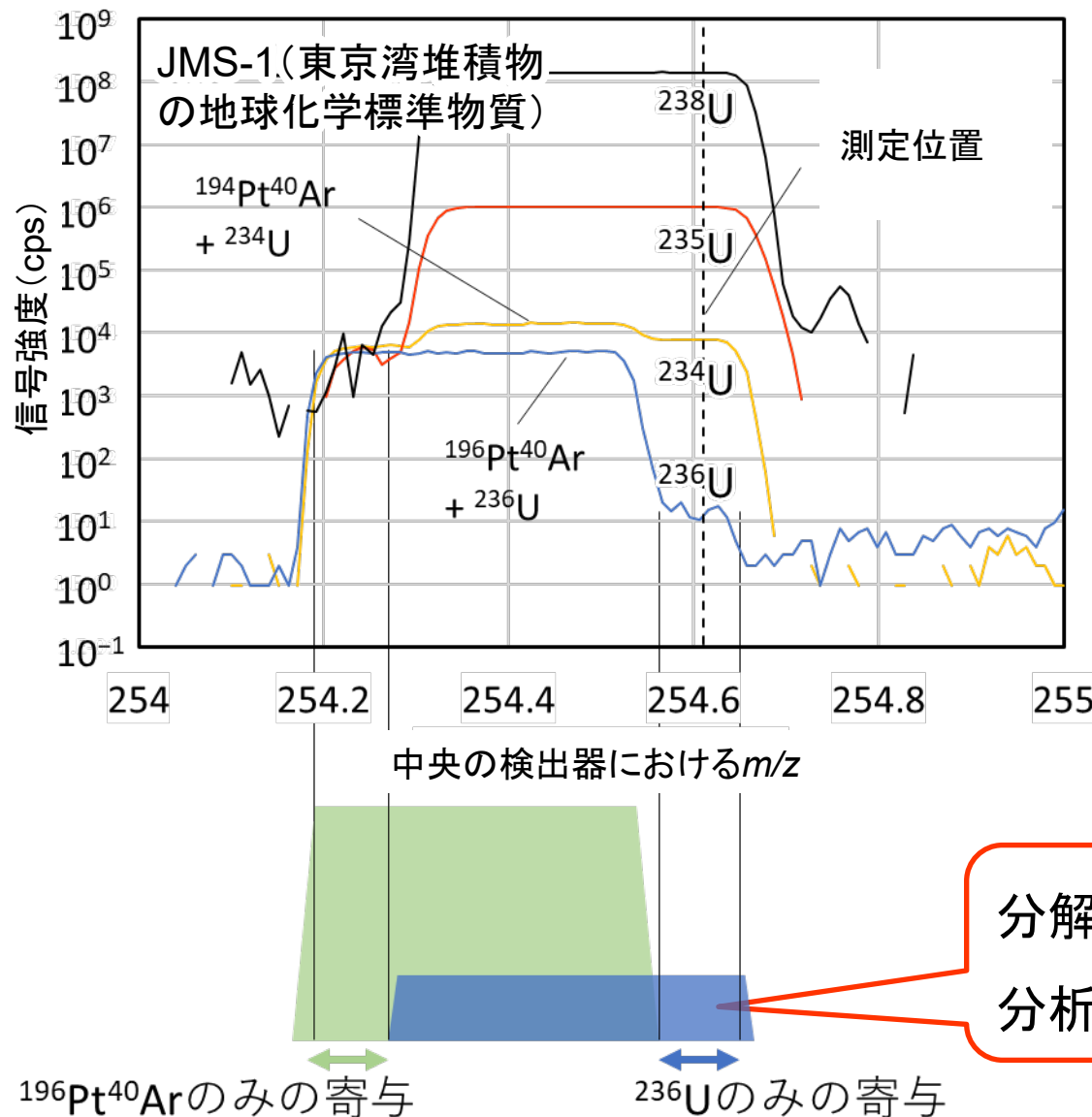
- $^{196}\text{Pt}^{40}\text{Ar}$: 試料又は器具由来のPtとイオン源由来のArから生成
- ^{235}UH : 試料由来の ^{235}U と溶媒由来のHから生成
- ^{238}U のテーリング : 装置内の残留ガスと衝突して散乱された ^{238}U

➔干渉に対処するとともに、改良した測定・解析手法を実試料に応用することで、東京湾堆積物の標準物質であるJMS-1中の人為的ウランの起源を識別

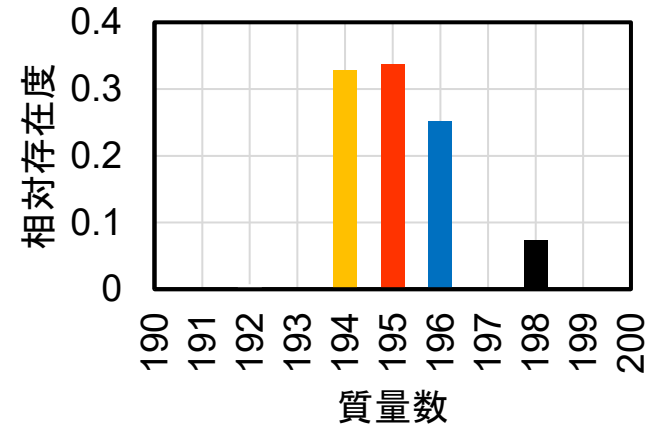
質量スペクトル干渉への対処



実験1: 多原子イオン(PtAr^+)による質量スペクトル干渉



天然における白金の同位体組成



- 多原子イオン $^{19x}\text{Pt}^{40}\text{Ar}^+$ が $^{23x}\text{U}^+$ に干渉
- 存在度の低い ^{236}U 及び ^{234}U に対して顕著

分解能を高めて ($m/\Delta m = 7000$)
分析イオンと多原子イオンを分離



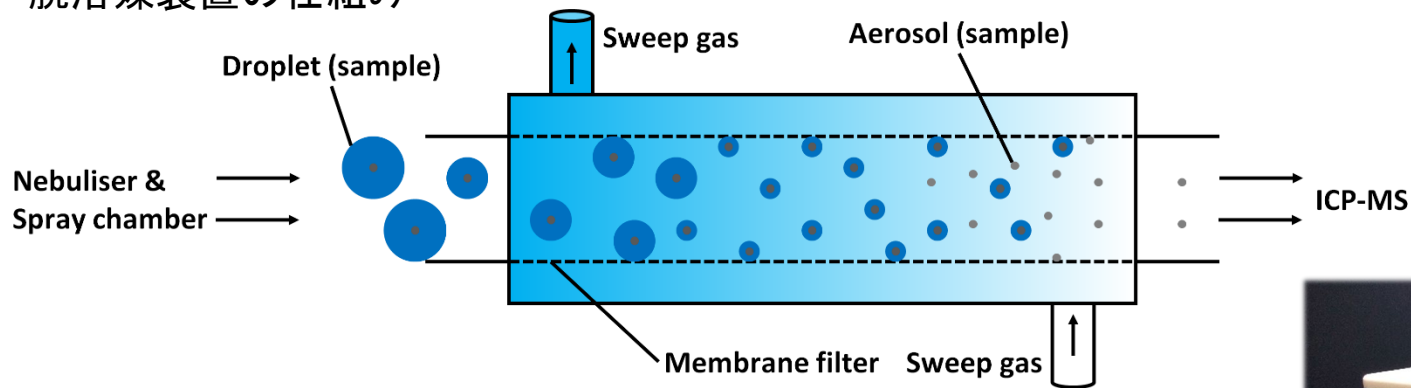
実験2：水素化物の低減

イオン	m/z	必要な質量分解能*	達成可否
$^{236}\text{U}^+$	236.0456	—	—
$^{235}\text{UH}^+$	236.0518	38,000	不可
$^{196}\text{Pt}^{40}\text{Ar}^+$	235.9273	2,000	可

*一般的な性能 約10,000

脱溶媒装置を利用して水素化物の生成を抑制

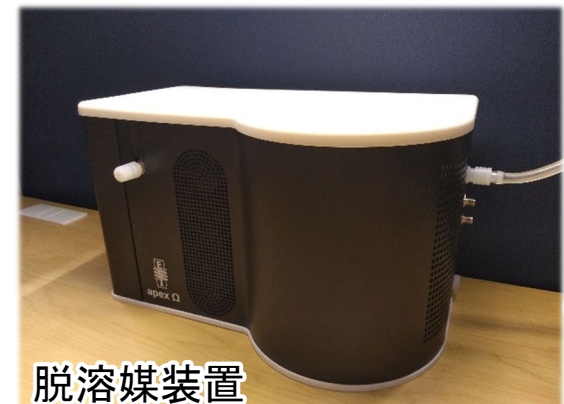
脱溶媒装置の仕組み



$^{235}\text{UH}/^{235}\text{U} \approx 10^{-4} - 10^{-5}$ (通常の溶液試料導入)



$^{235}\text{UH}/^{235}\text{U} \approx 10^{-6}$ ($^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ への寄与 $\leq 10^{-8}$)

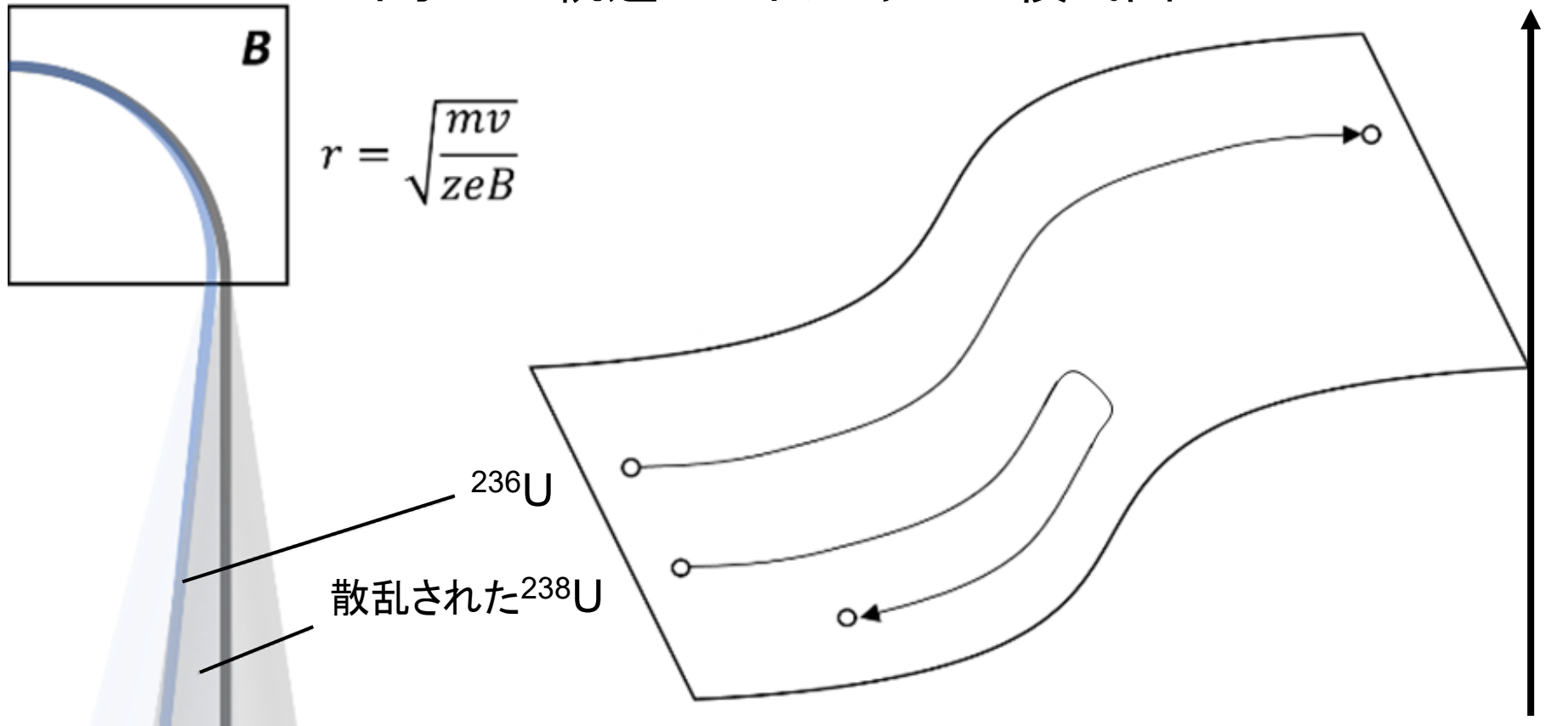


脱溶媒装置



実験3: テーリングの影響の低減

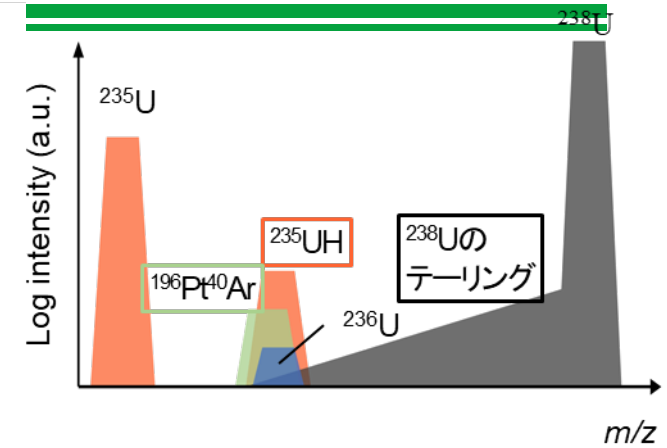
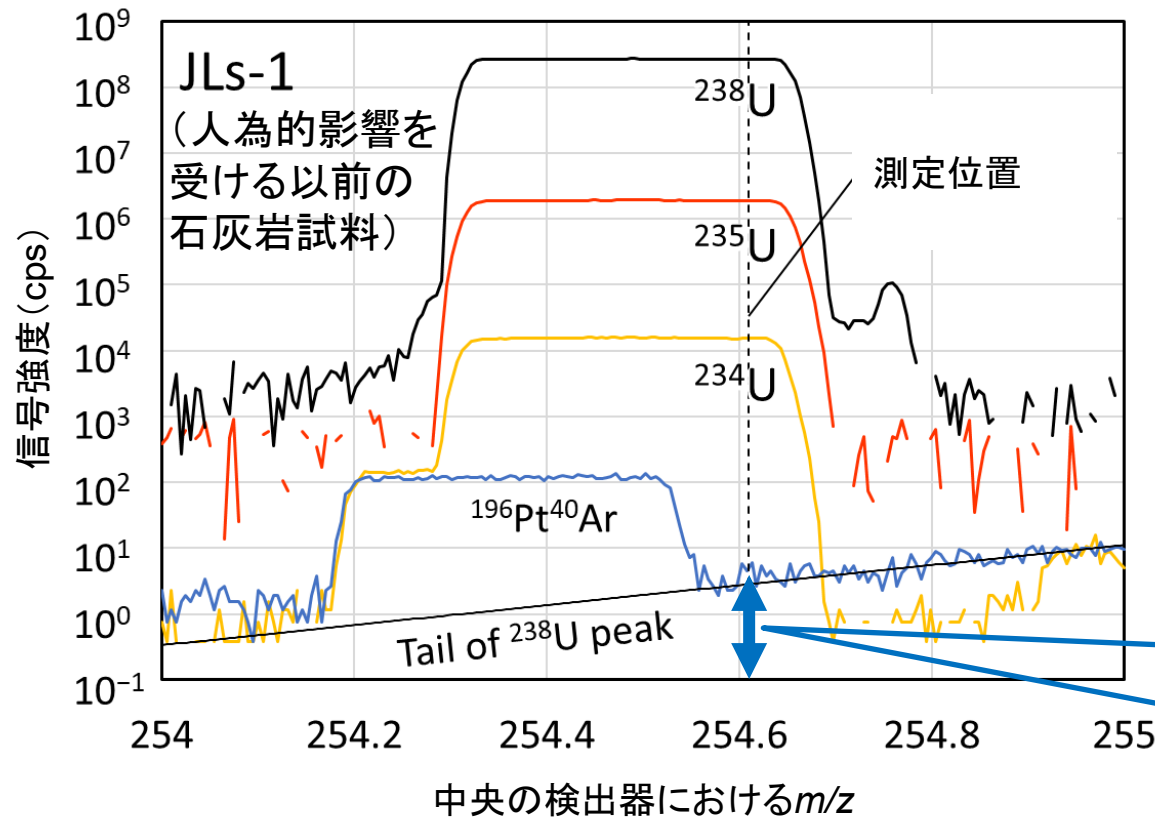
イオンの軌道とエネルギーの模式図



Retarding potential quadrupole (RPQ) レンズを用いたエネルギー障壁により散乱イオンを除去することで、 ^{238}U から ^{236}U へのテーリングを低減



テーリング及び水素化物による干渉の補正



- ²³⁸Uのテーリング
 - ²³⁵UH
- ²³⁶U/²³⁸Uへの寄与
 $(2.1-2.5) \times 10^{-8}$

²³⁶U含有試料(海水、海底堆積物)に関して

$$^{236}\text{U}_{\text{interference}} (\text{干渉の寄与}) = (2.1-2.5) \times 10^{-8} \times ^{238}\text{U}_{\text{sample}}^*$$

$$^{236}\text{U}_{\text{net}} (\text{正味の信号強度}) = ^{236}\text{U}_{\text{sample}}^* - ^{236}\text{U}_{\text{interference}}$$

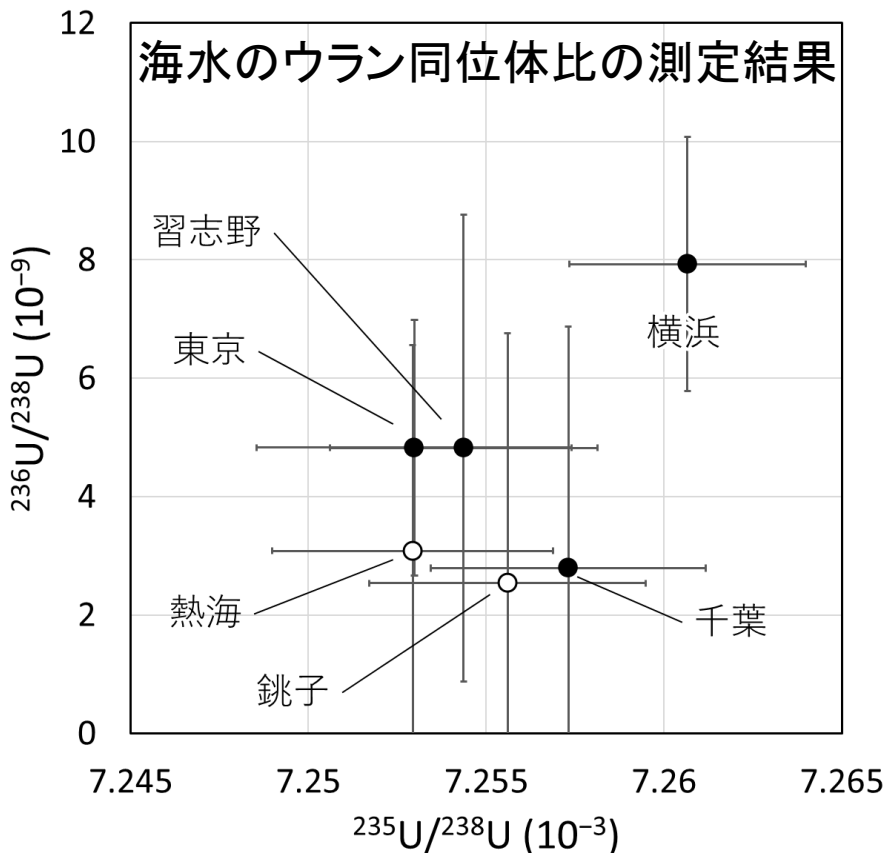
以後、 $^{236}\text{U}_{\text{net}}/^{238}\text{U}_{\text{sample}}$ を $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ と表記する

*空試験における信号強度を引いた値

実試料への応用



東京湾内外の海水の $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 及び $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$

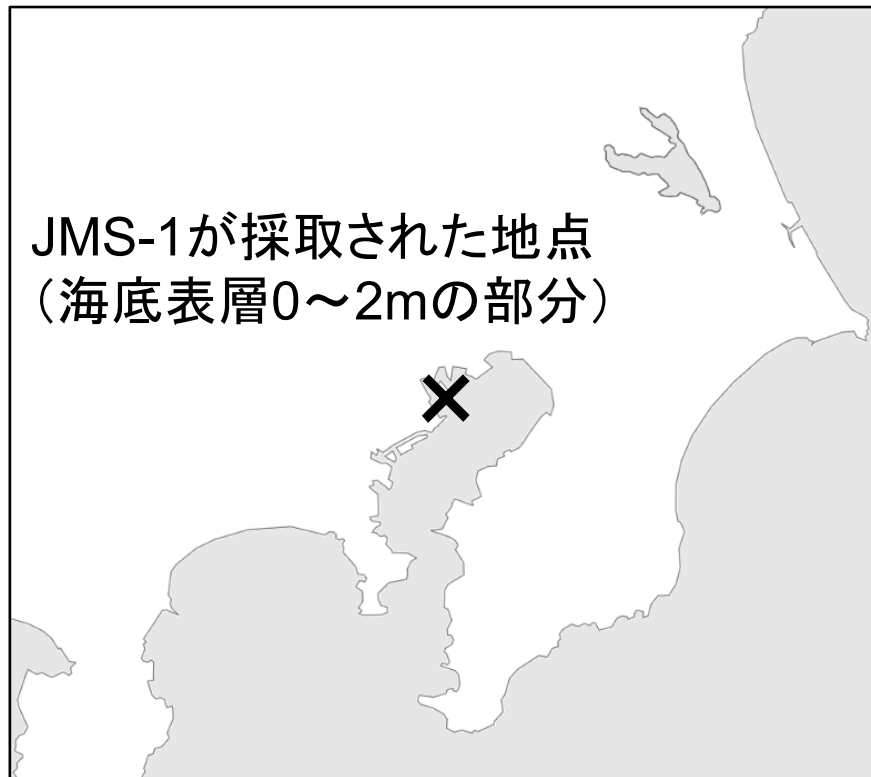


- $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 及び $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ を同時に考慮すると、横浜において人為的ウランの放出が示唆されるが、起源は未特定
 - 東京湾の半閉鎖的環境にもかかわらず、湾内外の $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 及び $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ に違いはなかった
- ➔人為的ウランの東京湾海水への移行は無視できるほど少ない

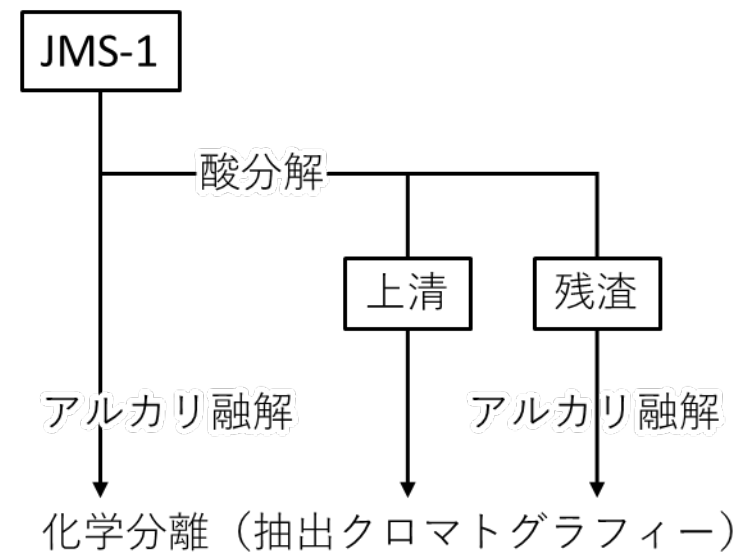


東京湾堆積物試料の概要

試料	前処理	備考
JMS-1 (全体)	アルカリ融解 (Na_2CO_3 、1000 °C)	東京湾堆積物
JMS-1 (可溶性)	酸分解 (6 M塩酸、100 °C)	東京湾堆積物中の可溶性成分
JMS-1 (不溶性)	アルカリ融解 (Na_2CO_3 、1000 °C)	東京湾堆積物の酸分解の残渣

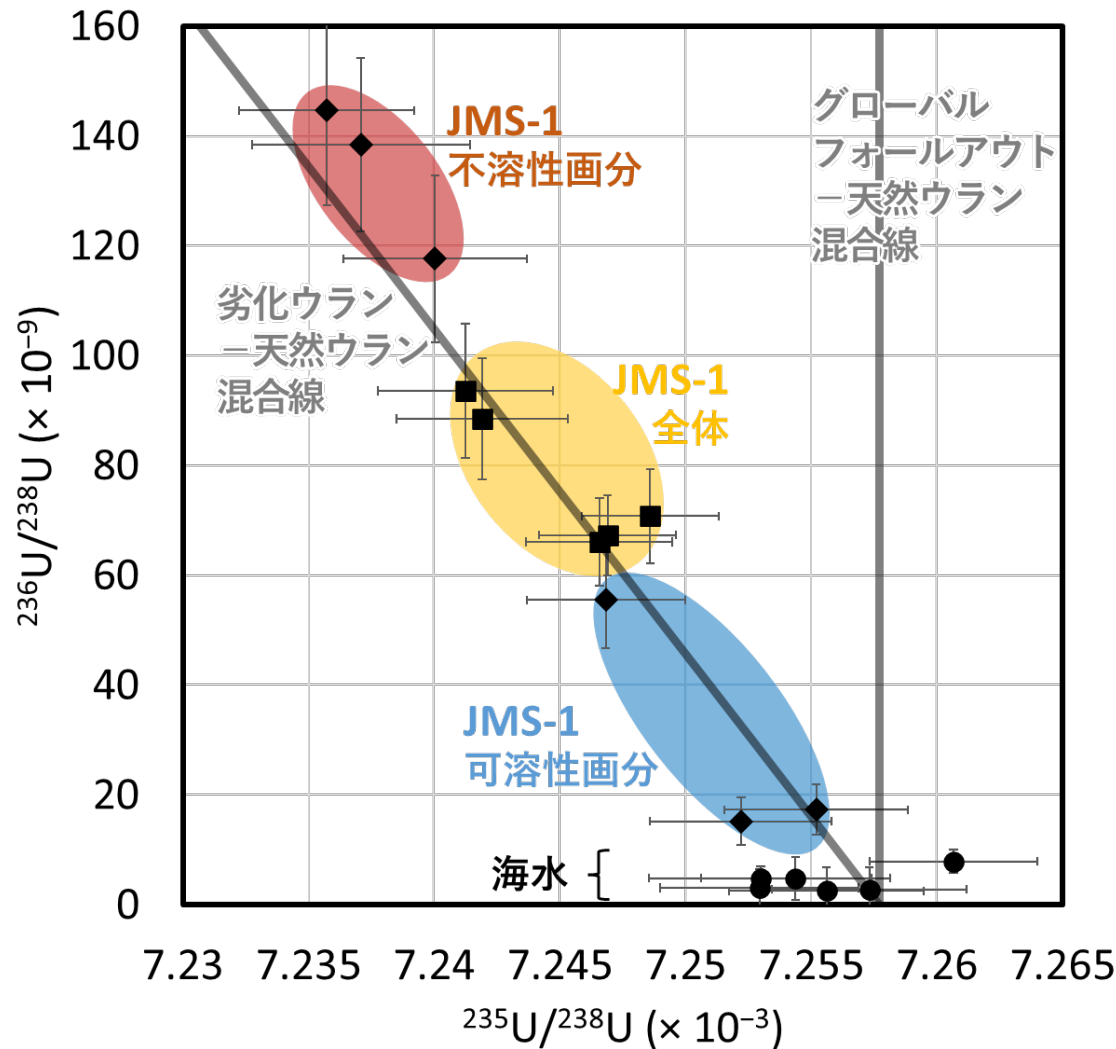


東京湾堆積物中ウランの段階抽出



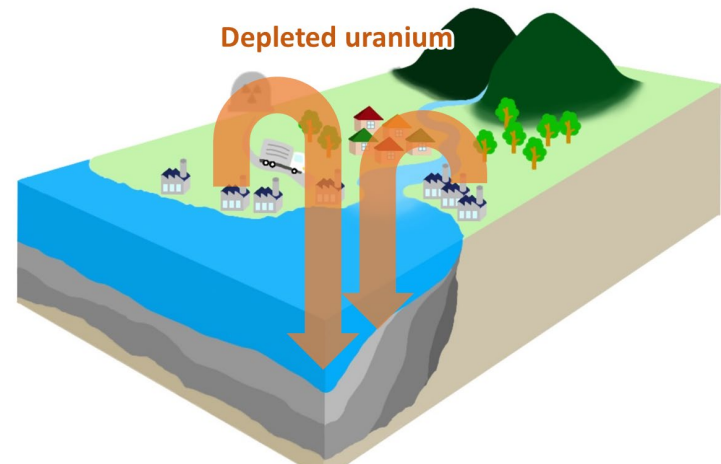


JMS-1の $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 及び $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$



可溶形態の1点が外れた原因は、6M HClの溶出力が強すぎたか、分画時に不溶形態の一部を取り込んだためと考えられる。

- JMS-1の $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 及び $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ は、劣化ウランと天然ウランの混合線 (Ohno et al., 2022) 上に分布
→ 1970年代の大気降下物中ウランと同じ起源 (工業用) の劣化ウランであることを示唆
- $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ について、不溶性画分は海水よりも約20倍高く、可溶性画分は海水相当
→ 劣化ウランは不溶形態で存在していると考えられる





結論

1. MC-ICP-MSを用いて信頼できる $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ を取得するために、以下に取り組んだ。
 - ◆ 質量分解能を高めることで多原子イオン(PtAr^+)による質量スペクトル干渉を回避。
 - ◆ 脱溶媒試料導入法を採用することで水素化物の生成を抑制。
 - ◆ RPQレンズを用いて ^{238}U のテーリングを低減。
2. 改良した測定手法を海水及び東京湾堆積物に適用し、以下の結論を得た。
 - ◆ 東京湾堆積物中の人為的ウランは、工業的な用途の劣化ウラン(例えば触媒)を起源とする。
 - ◆ 劣化ウランは不溶形態で東京湾にもたらされ堆積した。

MC-ICP-MSを用いた同位体比測定技術は、今後、放射性廃棄物等の放射能濃度測定や原子力施設の廃止措置といった分野への適用が期待される。



参考文献

- 原子力規制委員会、NRA技術報告、「廃止措置の終了確認における敷地土壤等の状況の技術的判定方法」、NTEC-2024-3001、令和6年
<https://www.nra.go.jp/data/000473043.pdf> (令和7年9月22日確認)
- 島田太郎、島田亜佐子、三輪一爾、鍋倉修英、佐々木利久、高井静霞、武田聖司、「廃止措置終了確認手順の検討」、JAEA-Research 2024-004、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、令和6年
- Shimada, A., Tsukahara, T., Nomura, M., Kim, M.S., Shimada, T., Takeda, S., Yamaguchi, T., “Determination of $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ isotopic ratio in soil collected near Fukushima Daiichi nuclear power station through mass spectrometry”, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 58, No. 11, pp. 1184–1194, 2021. doi:10.1080/00223131.2021.1931520



参考文献

- Ohno, T., Sato, N., Shikimori, J., Ijichi, Y., Fukami, Y., Igarashi, Y., "Temporal change of $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ and $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ isotopic ratios in atmospheric deposition in Tokyo and Akita from 1963 to 1979", Science of The Total Environment, Vol. 810, 151292, 2022. doi:10.1016/j.scitotenv.2021.151292
- 東京電力HD(株)、「放射性物質分析・研究施設第2棟における燃料デブリの分析に係る検討について」、第72回特定原子力施設監視・評価検討会、資料2、令和元年
- Yamamoto, K., Ohno, T., Kitamura, G., Takahashi, H., Hirata, T., "Deciphering the uranium isotopic signature of coastal water and sediments from Tokyo Bay using a multi-collector inductively coupled plasma mass spectrometer", Environmental Technology & Innovation, Vol. 36, 103761, 2024. doi:10.1016/j.eti.2024.103761