

## Appendix 4.1-3 ICP-MS(コリジョンタイプ)による迅速ヨウ素 129 分析法の開発

ヨウ素 129 の測定には加速器質量分析法 (AMS) が用いられているが、これは検出下限が低く、I-129/I-127 が  $10^{-14}$  レベルの極微量ヨウ素 129 を検出することができる。しかし、装置が大がかりで、我が国では東京大学と原子力機構にしかヨウ素 129 を測定できる施設はない。今後、多量の試料を迅速に分析するために、検出感度は劣るが汎用性がある誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)を用いて、土壌試料中のヨウ素 129 定量法の開発を行った。

### (1) 研究内容

ICP-MS は微量元素の分析に広く用いられ、本研究でも土壌中の安定ヨウ素 (ヨウ素 127) の定量に使用している。しかし、通常の ICP-MS では、ヨウ素 129 を分析する際に問題となるのは、アルゴンプラズマガス中の不純物である  $^{129}\text{Xe}^+$  や  $^{127}\text{IH}_2^+$  等の分子イオンによるスペクトル干渉である。我々は、既にオクタポールリアクションシステムを装備した ICP-MS (コリジョンタイプ) に反応ガスとして酸素を用いた測定法の開発を進めてきた[1]。この方法では ICP-MS でヨウ素 129 を分析する際に問題となるアルゴンプラズマガス中の不純物である  $^{129}\text{Xe}^+$  の妨害を低減することにより、I-129/I-127 が  $10^{-7}$  レベルのヨウ素 129 を検出することが可能となった。一方、この方法では  $^{127}\text{IH}_2^+$  等の  $^{127}\text{I}$  起源の分子イオンを除去することができないため、 $^{127}\text{IH}_2^+ / ^{127}\text{I}$  比 ( $3 \times 10^{-8}$ ) が検出下限を決めていた。

ここではオクタポールリアクションシステムを搭載した四重極 ICP-MS の前段にもう一つの四重極(Q1)を持つトリプル四重極 ICP-MS (ICP-QQQ) (図 1) を用い、ヨウ素 129 測定時にヨウ素 127 を導入させないようにすることで  $^{127}\text{IH}_2^+ / ^{127}\text{I}$  比の低減化を試み、検出下限の向上を狙った。

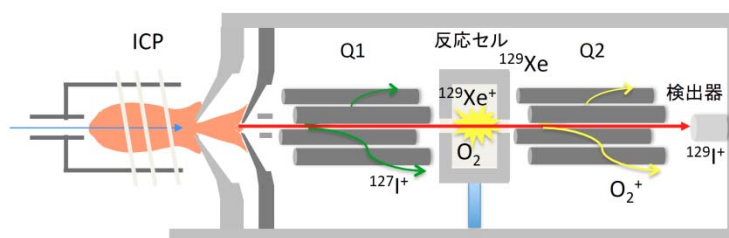


図 1 トリプル四重極 ICP 質量分析計の概念図

### (2) 結果と考察

ICP-QQQ を用いることにより、 $^{127}\text{IH}_2^+ / ^{127}\text{I}$  の生成比を  $5 \times 10^{-9}$  程度まで低減化することに成功した。これはヨウ素 129 測定時に、Q1 を用いてヨウ素 127 をセル内に導入させないようにすることで、セル内で生成する  $^{127}\text{IH}_2^+$  の妨害を低減化できたためと考えられる。さらにイオンレンズの最適化により 10 倍程度の感度向上が達成された。

分析法の妥当性を評価するために、NIST SRM 3231 Level.2 (I-129/I-127;  $0.981 \times 10^{-8}$ ) の 10 倍希釈溶液を測定したところ、 $1.06 \pm 0.10 \times 10^{-8}$  ( $1\sigma$ ,  $n=5$ ) となり誤差の範囲で良い一致が得られた。また AMS で得られた結果と比較するため、福島土壌試料において分析を行った所、AMS で得られた結果と調和的であった (図 2)。また、IAEA375 土壌標準試料 2 g ( $^{129}\text{I}$ ; 1.7 mBq/kg) を加熱分離法のみ用いて回収した試料を分析した結果、ヨウ素 129 濃度  $1.52 \pm 0.20$  mBq/kg ( $1\sigma$ ,  $n=5$ )

と IAEA の保証値と矛盾のない値が得られた (表 1)。以上のことより加熱分離法と ICP-QQQ を用いた分析法により、I-129/I-127 を  $10^{-8}$  レベルで、またヨウ素 129 を 2 mBq/kg 含む土壌を 2 g から定量することが可能となった。試料の導入系等いくつかの課題は残るものの、この方法を汚染濃度の高い試料においては利用可能と考える。

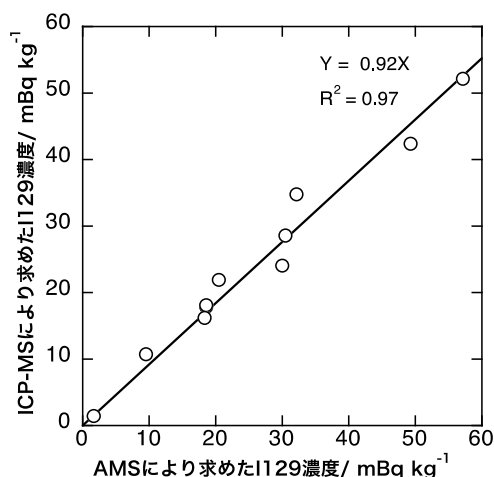


図2 ヨウ素 129 測定における ICP-MS と AMS の比較

表 1 ICP-MS による福島土壌試料分析結果

Sample	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	Error (1sd)	RSD	$^{127}\text{I}$ mg/kg	$^{129}\text{I}$ mBq/kg	Error (1sd)
IAEA375	1.55E-07	2.05E-08	13%	1.5	1.5	0.2
A-1	4.61E-07	5.54E-08	12%	3.6	10.8	1.3
A-13	1.77E-06	1.82E-07	10%	1.9	21.8	2.2
A-18	1.47E-06	8.19E-08	6%	3.6	34.8	2.1
A-23	6.28E-07	3.27E-08	5%	12.7	52.1	2.6
A-25	1.05E-06	1.64E-08	2%	4.2	28.7	0.6
A-27	1.38E-07	3.37E-09	2%	19.7	17.8	0.4
A-70	4.61E-07	4.01E-08	9%	6.0	18.2	1.6
B-61	6.67E-07	2.43E-08	4%	3.7	16.1	0.6
B-76	1.73E-06	1.41E-07	8%	2.1	24.1	1.9
B-78	5.54E-06	9.38E-08	2%	1.2	42.3	0.8

参考文献：

- [1] T. Ohno, Y. Muramatsu, C. Toyama, K. Nakano, S. Kakuta, and H. Matsuzaki; Determination of  $^{129}\text{I}$  in Fukushima Soil Samples by ICP-MS with an Octopole Reaction System, ANALYTICAL SCIENCES, 29, 271-274, 2013