

JAERI-Research

97-016



液体シンチレーション計測法を用いた
プルトニウム241の測定法の検討と
環境試料への適用

1997年3月

渡邊美紀*・天野 光

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1997

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 (株)原子力資料サービス

液体シンチレーション計測法を用いたプルトニウム241の測定法の
検討と環境試料への適用

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

渡邊 美紀*・天野 光

(1997年2月3日受理)

液体シンチレーションカウンター (LSC) を用いて α 線及び β 線からのパルスを全て測定する従来の測定法は簡便ではあるが、バックグラウンド計数 (BG) が高い等の欠点を有する。一方、 α 線及び β 線によるパルスの立ち上がり時間の違いを利用する α - β 線分別法は、バックグラウンド計数を減少させるため、分析目標値を低減する方法として有用である。本研究では、環境試料中に含まれる超ウラン元素のうち、長期にわたる影響が考えられる ^{241}Am の親核種で β 線放出核種である ^{241}Pu を取り上げ、LSC による α - β 線分別法を用いた簡便で精度の高い測定法の検討を行った。測定液量の異なる二種の液体シンチレーションカウンターの測定精度の比較、従来の測定手法と α - β 線分別法における測定の比較を行い、それぞれの装置及び測定法の特性を明らかにし、 ^{241}Pu 測定に最適な測定条件を調べた。その結果、以下のような知見が得られた。

1. α 線及び β 線の分別測定において、液体シンチレータ (LS) の種類は、溶媒と発光剤である芳香族の間のエネルギー移行過程において迅速に作用するナフタレンベースの溶剤が α 線と β 線の分別を良くする働きがあることが確かめられた。
2. α - β 線分別測定法は、 α 線のバックグラウンドを従来法の 1/10 に低減し、 α 線の測定性能を高める。
3. 検討した測定手法を用いて、チェルノブイル事故炉周辺環境試料中の ^{241}Pu の定量を精度良く行うことができた。

Determination of Plutonium-241 by Liquid Scintillation Counting Method and
its Application to Environmental Samples

Miki WATANABE* and Hikaru AMANO

Department of Environmental Safety Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received February 3, 1997)

Radionuclides are usually measured by gross counting mode in liquid scintillator counting (LSC) which measures both α and β pulses. This method can easily measure radioactivities, but its background counting is high. Recently reported $\alpha - \beta$ pulse shape discrimination method ($\alpha - \beta$ PSD method) in LSC which distinguishes α pulses from β pulses, shows low background counting, so it makes the detection limit lower.

The aim of this research is to develop the best method for the determination of ^{241}Pu which is β -emitter, and Pu isotopes of α -emitters which have long half-lives and stay long in animal body. In this research, two LSC machines was carried out in different scintillators, vial volumes, measurement modes and so on. The following things were found.

1. The liquid scintillator based on naphthalene is proved to be the best separator of α -ray from β -ray, because it acts quickly in energy translation procedure between solvent and aromatic compounds.
2. $\alpha - \beta$ PSD method makes the background counting rate ten times lower than usual method. It makes the measurement performance better.
3. It is possible to determine ^{241}Pu in environmental samples around Chernobyl by the combination of LSC and radiochemical separation methods.

Keywords: Pu α Emitters, ^{241}Pu , Liquid Scintillation Counting, $\alpha - \beta$ PSD Method,
Environmental Samples

* Student Research Fellow: Aoyama Gakuin University

目 次

1. はじめに	1
1.1 研究の目的	1
1.2 プルトニウム同位体と従来の測定法	1
2. 液体シンチレーション計測法 (LSC)	2
2.1 液体シンチレーション計測法 (LSC) の原理	2
2.2 液体シンチレーション測定の特徴	3
2.3 クエンチング効果	3
2.4 α — β 線波形分別法	3
3. LSCにおける α 線と β 線を分別する測定手法の検討	4
3.1 α — β 線分別曲線の作製及び計算	4
3.2 実 験	5
3.3 結果と考察	6
4. 測定液量の異なる二種の液体シンチレーションカウンターの特性及び α — β 線波形分別法と比較	7
4.1 実 験	7
4.2 結果と考察	8
5. チェルノブイル事故炉周辺環境試料への適用	10
6. 結 論	11
謝 辞	11
参考文献	12

Contents

1. Introduction	1
1.1 Objectives	1
1.2 Plutonium Isotopes and Their Measurement Techniques	1
2. Liquid Scintillation Counting (LSC)	2
2.1 Principle of LSC	2
2.2 Characteristics of LSC	3
2.3 Quenching Effects	3
2.4 $\alpha - \beta$ Pulse Shape Decay Method ($\alpha - \beta$ PSD Method)	3
3. Investigation of Radioactivity Measurement by $\alpha - \beta$ PSD Method	4
3.1 $\alpha - \beta$ Discrimination Curve and its calculation	4
3.2 Experimental	5
3.3 Results and Discussion	6
4. Characteristics of Liquid Scintillation Counting in Different Volumes of Counting Vial and Comparison of $\alpha - \beta$ PSD Method with Traditional Method	7
4.1 Experimental	7
4.2 Results and Discussion	8
5. Application for Environmental Samples Around Chernobyl	10
6. Conclusion	11
Acknowledgements	11
References	12

Contents of Tables

Table 2.1	Classification of Quencher	13
Table 3.1	Nucleus Data of Radionuclides	13
Table 4.1	Background Counting Rate of LSC in Different Machines	14
Table 4.2	Counting Efficiency and Performance of LSC	15
Table 4.3	Detection Limit of LSC	16
Table 5.1	Relevant Parameters for Environmental Samples from Different Ecosystems	17
Table 5.2	Determination of Pu-241 in Environmental Samples Around Chernobyl	18

Contents of Figures

Fig. 2.1	A Block Diagram of LSC	19
Fig. 2.2	Beta Radiation, 0.5MeV, Compared with 5MeV Alpha Radiation in a LSC	20
Fig. 2.3	Mechanism of Liquid Scintillation	20
Fig. 2.4	Theoretical Model of Liquid Scintillation Counting and Quenching	21
Fig. 2.5	Difference of the Shape of Amplified Voltage Pulse	21
Fig. 2.6	Timing in Separating Beta-gamma and Alpha Peaks	22
Fig. 3.1	Discrimination Curve Using Various Scintillator	23
Fig. 3.2	Misclassification Plot for Various Nuclides	24
Fig. 3.3	Misclassification Plot as a Function of Radioactivity	25
Fig. 3.4	Misclassification Plot under Quenched Conditions	26
Fig. 3.5	The Effect of Quenching on Percent Misclassification of Alpha Events Using UG AB	27
Fig. 4.1	Alpha Peak and FWHM of Am-241 under Quenched conditions	28
Fig. 5.1	Analytical Procedure for Pu-241	28

1. はじめに

1.1. 研究の目的

環境中には、種々の人工的な汚染源からのプルトニウム同位体、主に ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu 及び ^{241}Pu が広く分布、存在している。そして、プルトニウム α 同位体 (^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu) は長い半減期を持つために被曝において注意を払う必要がある。 ^{241}Pu はプルトニウム同位体の中で唯一の β 放射体であり、半減期は約 14 年と短いが ^{241}Pu から壊変して生じる ^{241}Am は半減期が 432 年と長く、また動物や人間の体内に入った場合長く残留する。1986 年に起こったチェルノブイル原発事故はプルトニウム同位体を初めとする多くの超ウラン元素及び放射性元素を環境中に放出した。プルトニウム同位体の中でも ^{241}Pu は他のプルトニウム同位体より二桁も多く放出されており、 ^{241}Am の影響を調べるために ^{241}Pu の測定の必要性が増している。

実際に ^{241}Pu を測る方法として現在液体シンチレーション測定法(LSC)が使用されている。しかし測定装置により液量が異なり、測定法には従来のグロス測定法と最近登場した α - β 線分別測定法の二つの方法がある。また、 ^{241}Pu は低エネルギーの放射体であるために、使用する液体シンチレータや測定試料の状態により測定精度が大きく変わる。そこで、環境試料中に含まれる ^{241}Pu を LSC で精度良く測定するために、LSC の中で測定液量の異なる機種での測定や従来のグロス測定法と α - β 線分別測定法の精度を比較し検討を行った。また、検討した測定手法と従来の放射化学的な手法を併用して汚染土壌及び河川試料中の種々の放射性核種を定量し、土壌中の深度分布や ^{241}Am の ^{241}Pu からの生成寄与等について調べた。

1.2. プルトニウム同位体と従来の測定法

1.2.1. プルトニウム 241

β 線放射体の ^{241}Pu の定量法としては、分離・精製したプルトニウムの α 線スペクトロメトリー用の電着試料を作製し、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 比を測定した後しばらく放置し、再び α 線スペクトロメトリーにかけ、新旧のスペクトルを比較することにより、試料採取時における $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ の放射能を間接的に推定する方法がある⁴⁾。この方法は分析処理が少なく済むが、 ^{241}Pu の生成を待って再測定を行う必要があるために ^{241}Pu の定量に時間がかかる。このため ^{241}Pu が放出する β 線を直接計測する方法が用いられ、 β 線に対して計数効率の高い LSC が報告されている⁵⁾⁶⁾⁷⁾⁸⁾。

液体シンチレーションカウンターを用いる手法として一般的に用いられている α 線及び β 線からのパルス全てを測定するグロス測定法は簡便ではあるが、バックグラウンド計数率(BG)が高い等の欠点を有する。一方、最近報告されている LSC を用いた α - β 線波形分別法⁹⁾は、 α 線及び β 線によるパルスの立ち上がり時間の違いを利用して α 線及び β 線を測定しており、バックグラウンド計数を減少させるために分析

目標値を低減する方法として有用である。

1.2.2. プルトニウム α 同位体

局地的な汚染源を除く一般環境でのプルトニウム汚染源は、そのほとんどが大気圏内核実験からのフォールアウトによるものであり、 ^{238}Pu (8kCi), ^{239}Pu (210kCi), ^{240}Pu (150kCi), ^{241}Pu (4600kCi)などのプルトニウム同位体が放出されている¹⁾。これらのプルトニウム同位体は β 線放射体の ^{241}Pu を除いて全て α 同位体である。これらの放射能レベルが高い場合には、放出される γ 線あるいはLX線等を直接 γ 線スペクトロメーターで測定することが可能であるが²⁾、環境試料は放射能レベルが低いためにその適用は不可能である。従って、環境試料中のプルトニウムを分析する場合、放射化学的にプルトニウムを分離・精製し、Si検出器による α 線スペクトロメトリーで ^{238}Pu と $^{239+240}\text{Pu}$ を定量している。その場合、 ^{239}Pu と ^{240}Pu は α 線エネルギーが接近していて分別不可能であるため、両者の和 $^{239+240}\text{Pu}$ として定量される³⁾。

一方、LSCでは α 線に対しては半導体検出器に比べてエネルギー分解能が悪いため同位体を分離して測定することは難しい。 α 線を放出するプルトニウム同位体として定量する場合は $^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ の合計が通常は得られる⁷⁾⁸⁾。今回 ^{241}Pu を定量するときは、 α 同位体は電着板から剥離して溶媒抽出するときの抽出率の計算に使用する。このため ^{241}Pu の定量精度を良くするため及び α - β 線波形分別法の有効性を確かめるために、 α 同位体についても検討を行った。

2. 液体シンチレーション計測法(LSC)

2.1. 液体シンチレーション計測法(LSC)の原理

LSCの測定装置は、検出部分(光電子増倍管)、同時計数回路、増幅器、波高分析器とゲート回路により構成されている。Fig. 2.1に液体シンチレーション測定装置の測定回路を示す¹⁰⁾。また、Fig. 2.2にLSCによる α 線及び β 線スペクトルの図を示す¹⁰⁾。

放射線励起によるシンチレーションの発光現象は次の過程により生じる。

1. 放射線エネルギー吸収による溶媒分子の励起
2. 溶媒分子間のエネルギー移行
3. 励起溶媒分子から溶質分子の励起
4. 溶質分子からの発光

Fig. 2.3に液体シンチレーション発光の基本機構を示す¹¹⁾。

目標値を低減する方法として有用である。

1.2.2. プルトニウム α 同位体

局地的な汚染源を除く一般環境でのプルトニウム汚染源は、そのほとんどが大気圏内核実験からのフォールアウトによるものであり、 ^{238}Pu (8kCi), ^{239}Pu (210kCi), ^{240}Pu (150kCi), ^{241}Pu (4600kCi)などのプルトニウム同位体が放出されている¹⁾。これらのプルトニウム同位体は β 線放射体の ^{241}Pu を除いて全て α 同位体である。これらの放射能レベルが高い場合には、放出される γ 線あるいはLX線等を直接 γ 線スペクトロメーターで測定することが可能であるが²⁾、環境試料は放射能レベルが低いためにその適用は不可能である。従って、環境試料中のプルトニウムを分析する場合、放射化学的にプルトニウムを分離・精製し、Si検出器による α 線スペクトロメトリーで ^{238}Pu と $^{239+240}\text{Pu}$ を定量している。その場合、 ^{239}Pu と ^{240}Pu は α 線エネルギーが接近していて分別不可能であるため、両者の和 $^{239+240}\text{Pu}$ として定量される³⁾。

一方、LSCでは α 線に対しては半導体検出器に比べてエネルギー分解能が悪いため同位体を分離して測定することは難しい。 α 線を放出するプルトニウム同位体として定量する場合は $^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ の合計が通常は得られる⁷⁾⁸⁾。今回 ^{241}Pu を定量するときは、 α 同位体は電着板から剥離して溶媒抽出するときの抽出率の計算に使用する。このため ^{241}Pu の定量精度を良くするため及び α - β 線波形分別法の有効性を確かめるために、 α 同位体についても検討を行った。

2. 液体シンチレーション計測法(LSC)

2.1. 液体シンチレーション計測法(LSC)の原理

LSCの測定装置は、検出部分(光電子増倍管)、同時計数回路、増幅器、波高分析器とゲート回路により構成されている。Fig. 2.1に液体シンチレーション測定装置の測定回路を示す¹⁰⁾。また、Fig. 2.2にLSCによる α 線及び β 線スペクトルの図を示す¹⁰⁾。

放射線励起によるシンチレーションの発光現象は次の過程により生じる。

1. 放射線エネルギー吸収による溶媒分子の励起
2. 溶媒分子間のエネルギー移行
3. 励起溶媒分子から溶質分子の励起
4. 溶質分子からの発光

Fig. 2.3に液体シンチレーション発光の基本機構を示す¹¹⁾。

2.2. 液体シンチレーション測定の特徴

LSCによる β 線の測定上の特徴は、次のようなことである。

1. 放射性試料-検出体間の吸収がない。
2. 検出体に入射する前の放射線散乱を考慮する必要がない。
3. 4π 計数が可能である。

一方、LSCによる α 線の測定上の特徴として、次のようなことが挙げられる。

1. 試料調整が容易で、自己吸収が無視できる。
2. スペクトルの積分値から直ちに α 線放出率が決定可能である。
3. α 線の発光効率 β 線の10分の1であり(Fig. 2.2)、またパルス波高値が大きいためクエンチングに対する配慮を必要としない。

2.3. クエンチング効果

クエンチングとは試料溶液中で発光あるいは光の移行に支障をきたし、計数効率が減少する消光現象のことをいう。クエンチングが生じると、次のような現象が生じ、測定上の問題となる。

1. β 線スペクトルが低波高側にシフトする。
2. β 線の計数効率が低下する。

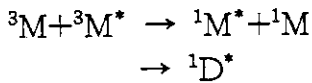
クエンチングは励起エネルギーの溶質への伝達過程において、試料物質の化学性、試料の着色、シンチレータ中の溶存酸素、及び溶質濃度に依存して生じ、それぞれ化学クエンチング、色クエンチング、酸素クエンチング、及び濃度クエンチングと分類されている。Fig. 2.4にクエンチングが生じる過程を示す。クエンチングを起こす物質はクエンチャーと呼ばれているが、多くの物質が当てはまり、強弱は物質により異なる。Table 2.1にクエンチャーの分類を示す。

2.4. α - β 線波形分別法

放射能の種類(比電離能の違い)により液体シンチレータの発光波形が異なることを利用した波形分別法(Pulse Shape Discrimination Method)は、元々、中性子と γ 線を区別して測定する方法として開発されたものである。現在では、 α 線と β 線を測定する場合にバックグラウンド計数を低減する方法(α - β PSD法)として利用されている。

測定方法としては、パルス波形分析(Pulse Shape Analysis, PSA)法とパルス減衰分析(Pulse Decay Analysis, PDA)法の二種があるが、今回はPDA法について検討した。PDA法は、 α 線と β 線及び γ 線の蛍光減衰の光電管に入る時間が異なることを利用する方法である。つまり、溶媒-溶質間のりん光放出の際、数 μ sの長寿命の蛍光が

発生する。



このとき β 線及び γ 線の発光パルスの蛍光減衰成分が速いのに対し、 α 線や中性子の発光パルスの蛍光減衰成分は遅く、この違いを利用して α 線と β 線及び γ 線を区別する。Fig. 2.5 にシンチレーションの速い成分と遅い成分のパルス波形について¹¹⁾、Fig. 2.6 に α 線及び β 線分別の時間設定法について示す¹⁰⁾。

3. LSC における α 線と β 線を分別する測定手法の検討

${}^{241}\text{Pu}$ を測定する場合に、グロス測定法では ${}^{241}\text{Pu}$ はエネルギーが低く他の Pu α 線同位体とエネルギーが離れているので $\alpha - \beta$ 線分別法で分離しなくても測定範囲の設定で分離して測定することができる。しかし、実際には ${}^{241}\text{Pu}$ を算出するときに、 Pu α 線同位体の LSC で測定した値と α 線スペクトロメトリー測定値から電着試料からの ${}^{241}\text{Pu}$ の抽出率を求める必要があるために、LSC による α 線測定についても測定精度の向上が望まれる。本研究ではグロス測定法との比較を行うために、 $\alpha - \beta$ 線波形分別法による測定に影響すると考えられる液体シンチレータ(LS)の種類、核種のエネルギー、放射能の強さ、クエンチングの4つの効果による $\alpha - \beta$ 線分別曲線の変化を調べて最適な測定条件を検討した。

3.1. $\alpha - \beta$ 線分別曲線の作製及び計算

実際の計数率(CPM)を求めるための計算は、基本的には二重標識化合物の場合の計算と同じで、次のようになる。

α 線が β 線として誤計数される α 線(X_α)は次のような式で表される。

$$X_\alpha = B_0 / (A_0 + B_0)$$

同様に、 β 線が α 線として誤計数される β 線(X_β)も次のような式で表される。

$$X_\beta = A_0 / (A_0 + B_0)$$

また、各波高分析器中での実測の計数率は $\alpha - \beta$ 双方の関数で表される。

$$A_0 = A_T - A_T X_\alpha + B_T X_\beta$$

$$B_0 = B_T - B_T X_\beta + A_T X_\alpha$$

よって、真の計数率は次のように表される。

$$A_T = \frac{A_0 - A_0 X_\beta - B_0 X_\alpha}{1 - X_\beta - X_\alpha}, \quad B_T = \frac{B_0 - B_0 X_\alpha - A_0 X_\beta}{1 - X_\alpha - X_\beta}$$

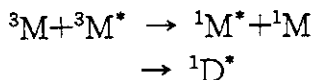
ここで

$X_\alpha = \beta$ 線として誤計数される α 線

$X_\beta = \alpha$ 線として誤計数される β 線

$A_T = \alpha$ 線による真の計数率

発生する。



このとき β 線及び γ 線の発光パルスの蛍光減衰成分が速いのに対し、 α 線や中性子の発光パルスの蛍光減衰成分は遅く、この違いを利用して α 線と β 線及び γ 線を区別する。Fig. 2.5 にシンチレーションの速い成分と遅い成分のパルス波形について¹¹⁾、Fig. 2.6 に α 線及び β 線分別の時間設定法について示す¹⁰⁾。

3. LSC における α 線と β 線を分別する測定手法の検討

${}^{241}\text{Pu}$ を測定する場合に、グロス測定法では ${}^{241}\text{Pu}$ はエネルギーが低く他の Pu α 線同位体とエネルギーが離れているので $\alpha - \beta$ 線分別法で分離しなくても測定範囲の設定で分離して測定することができる。しかし、実際には ${}^{241}\text{Pu}$ を算出するときに、 Pu α 線同位体の LSC で測定した値と α 線スペクトロメトリー測定値から電着試料からの ${}^{241}\text{Pu}$ の抽出率を求める必要があるために、LSC による α 線測定についても測定精度の向上が望まれる。本研究ではグロス測定法との比較を行うために、 $\alpha - \beta$ 線波形分別法による測定に影響すると考えられる液体シンチレータ(LS)の種類、核種のエネルギー、放射能の強さ、クエンチングの4つの効果による $\alpha - \beta$ 線分別曲線の変化を調べて最適な測定条件を検討した。

3.1. $\alpha - \beta$ 線分別曲線の作製及び計算

実際の計数率(CPM)を求めるための計算は、基本的には二重標識化合物の場合の計算と同じで、次のようになる。

α 線が β 線として誤計数される α 線(X_α)は次のような式で表される。

$$X_\alpha = B_o / (A_o + B_o)$$

同様に、 β 線が α 線として誤計数される β 線(X_β)も次のような式で表される。

$$X_\beta = A_o / (A_o + B_o)$$

また、各波高分析器中での実測の計数率は $\alpha - \beta$ 双方の関数で表される。

$$A_o = A_T - A_T X_\alpha + B_T X_\beta$$

$$B_o = B_T - B_T X_\beta + A_T X_\alpha$$

よって、真の計数率は次のように表される。

$$A_T = \frac{A_o - A_o X_\beta - B_o X_\alpha}{1 - X_\beta - X_\alpha}, \quad B_T = \frac{B_o - B_o X_\alpha - A_o X_\beta}{1 - X_\alpha - X_\beta}$$

ここで

$X_\alpha = \beta$ 線として誤計数される α 線

$X_\beta = \alpha$ 線として誤計数される β 線

$A_T = \alpha$ 線による真の計数率

$B_T = \beta$ 線による真の計数率

$A_o = \alpha$ 波高分析器における実測の計数率

$B_o = \beta$ 波高分析器における実測の計数率

3.2. 実験

3.2.1. 装置及び試薬

装置は Packard Tricarb 2550TR/AB(Packard 社)を使用した。この装置はバックグラウンド減算機構と PDA 法に基づいた $\alpha - \beta$ 線分別測定機構を備え、測定液量が 20ml で α 線と β 線の両方をグロス測定するモードと α 線と β 線を分別して測定するモードがある。

また、LS は Aquasol-2(Du Pont 社製), ULTIMA GOLD XR(Packard 社製), ULTIMA GOLD AB(Packard 社製) の三種を使用した。

測定容器 (バイアル) は 20ml 用にポリエチレン製 Low diffusion PE-Vial (Packard 社製)を使用した。

Table 3.1 に測定核種の半減期及びエネルギー一覧を示す。トレーサーは、 α 線の放射体として ^{244}Cm , ^{241}Am を、 β 線の放射体として ^{90}Sr , ^{14}C , ^3H を使用した。プルトニウムの標準溶液が得られなかったため、エネルギーの似た他核種のトレーサーを使用した。すなわち ^{236}Pu の代わりに ^{244}Cm を、 ^{238}Pu の代わりに ^{241}Am を使用した。 ^{241}Pu の代わりに ^3H を同様の理由で使用した。

3.2.2. 測定検討項目及び実験方法

以下の項目について検討を行った。

- I. 液体シンチレータ(LS)による分別曲線の変化： α 線源として ^{241}Am を、 β 線源として ^3H を使用し、加える LS の種類を変えて $\alpha - \beta$ 分別曲線の変化を調べた。
- II. α 線及び β 線のエネルギーの違いによる分別曲線の変化： α 線源として ^{241}Am , ^{244}Cm を、 β 線源として ^3H , ^{14}C , $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ を用い、LS として ULTIMA GOLD AB を加えてエネルギーの違いによる影響を調べた。
- III. 放射能の強さによる分別曲線の変化： α 線源として ^{241}Am 、 β 線源として ^3H を用い、LS として ULTIMA GOLD AB を加えて放射能の強さによる影響を調べた。
- IV. クエンチングによる分別曲線の変化： α 線源として ^{241}Am 、 β 線源として ^3H 、LS に ULTIMA GOLD AB を加え、クエンチャーとして四塩化炭素を 20 μl ずつ添加して測定を行い、クエンチングによる影響を調べた。

3.3. 結果と考察

3.3.1. 液体シンチレータ(LS)による分別曲線の変化

Fig. 3.1 に各 LS を使用した α - β 分別曲線を示す。ここで、横軸の Discrimination setting は Fig. 2.6 における最適分別時間を、縦軸は誤計数率(spillover)を表している。これらの曲線を見ると、 α 線では最適分別設定値が高くなるにつれて α - β 分離能の良さは ULTIMA GOLD AB > ULTIMA GOLD XR > AQUASOL-2 の順であった。 β 線では ULTIMA GOLD XR 及び ULTIMA GOLD AB を用いた場合に最適分別設定値が高くなっても α - β 分離能が良いことがわかる。

β 線計数における標準的な LS は、キシレン、トルエン、アルキルベンゼンのような蛍光減衰の速い溶媒を用いるが、 α 線との分離能が良くないため α β 分別にはあまり効果的ではない。低い分離能を改善するためにナフタレン等の芳香族溶媒が用いられる。ナフタレンは LSC における溶媒と芳香族の間のエネルギー移行過程(Fig. 2.1)において迅速に作用するので、 α β 分別を向上させる働きがあり¹⁰⁾¹²⁾、励起芳香族分子の生成効率を増加させる。溶媒-溶質間の一重項状態から三重項状態へのエネルギー移行は物理的過程に依存しており、ナフタレンのような芳香族の場合は中間体の濃度に影響されるため、芳香族三重項状態の励起による蛍光生成率は特に大きいものとなっている。今回使用した ULTIMA GOLD XR 及び ULTIMA GOLD AB における α β 分離能及び最適分別設定値が高くなっているのは、ジイソプロピルナフタレン(DIN)を溶媒ベースに使用しているためと考えられる。

よって、本研究では α β 分別に芳香族溶媒を含む ULTIMA GOLD AB を使用することにした。ULTIMA GOLD AB は ULTIMA GOLD XR に比べ水と酸の保持容量が高いため、この溶媒を選択した。

3.3.2. α 線及び β 線のエネルギーによる分別曲線の変化

Fig. 3.2 に α 線及び β 線のエネルギーによる分別曲線の変化についての結果を示す。

α 線においては ^{244}Cm が ^{241}Am より α β 分離能に優れており、 α 線の半値幅が小さいほど α β 分離能が優れる傾向がみられた。この理由としては、 α 線放出率(Table 3.1 参照)が関与していると考えられる。 ^{241}Am は ^{244}Cm に比べ放出率が多く分かれているために半値幅が広がり、パルスの立ち上がり時間もばらつくために分離能の低下につながる。一方、 β 線においては、最大エネルギーが低い核種ほど、 α β 分離能が優れていることがわかった。この理由は、最大エネルギーが大きくなるとパルスの立ち上がり時間が長くなり分離能が低下するためと考える。

3.3.3. 放射能の強さによる分別曲線の変化

Fig. 3.3 に α 線及び β 線の放射能の強さによる分別曲線の変化についての結果を示す。分別曲線は放射能濃度により変化を受けないことがわかった。

3.3.4. クエンチングによる分別曲線の変化

Fig. 3.4 にクエンチングの違いによる分別曲線の変化についての結果を示す。この図は、クエンチングが生じるときにどの分別設定時間を設定すれば α β 分離能が良くなるかをみるために示した。横軸は分別設定時間を、縦軸は誤計数率を表している。 α 線では分別設定時間が小さいほど α β 分離能が良く、反対に β 線では分別設定時間が大きいほど α β 分離能が良くなる。これではどのくらいに分別設定時間を決めればよいのかわからない。しかし β 線はどの設定時間でも誤計数率(spillover)が 1% 以下なので、分別設定時間を小さめに設定すればよいことがわかる。

実際には、最適分別設定時間(Pulse Decay Discriminator, PDD)を設定してから測定を行う。そこで、誤計数率が小さくかつ一定になるような分別時間を設定するために、最適分別設定時間を設定した時のクエンチングの違いによる α β 分離能の変化を Fig. 3.5 に示す。横軸はクエンチングの指標である $tSIE$ を、縦軸に誤計数率を表している。クエンチングの異なる条件下においては分別設定時間を定めても α β 分離能が変化していることがわかる。 α 線では PDD の違いにより α β 分離能に大きなばらつきが見られるが、PDD が低いほど α β 分離能が一定している。一方、 β 線ではどの PDD でも誤計数率(spillover)1%以下という良い分離能が見られ、PDD が高いほど α β 分離能が一定している。以上の結果より PDD は低い方に設定し、双方の α β 分離能の変化の少ない PDD=88 で行うこととした。

PDD=88 における α 線(Pu 同位体)及び β 線(^{241}Pu)のクエンチングと誤計数率の関係は次の式で表される。

$$\%spill(\beta) = -2 \times 10^{-8} tSIE^3 + 3 \times 10^{-5} tSIE^2 - 0.01 tSIE + 2.0 \quad [R^2=1]$$

$$\%spill(\alpha) = -9 \times 10^{-8} tSIE^3 + 1 \times 10^{-4} tSIE^2 + 0.05 tSIE - 2.2 \quad [R^2=1]$$

3.3.5. α - β 線波形分別法における最適条件の設定

以上、これまでの測定結果より、 α - β 線波形分別法では LS として ULTIMA GOLD AB を、PDD を 88 に設定した。

4. 測定液量の異なる二種の液体シンチレーションカウンターの特性及び α - β 線波形分別法との比較

4.1. 実験

測定液量が多いと分取せずに測定できるので、液量が多く放射能濃度が低い場合で

Fig. 3.3 に α 線及び β 線の放射能の強さによる分別曲線の変化についての結果を示す。分別曲線は放射能濃度により変化を受けないことがわかった。

3.3.4. クエンチングによる分別曲線の変化

Fig. 3.4 にクエンチングの違いによる分別曲線の変化についての結果を示す。この図は、クエンチングが生じるときにどの分別設定時間を設定すれば α β 分離能が良くなるかをみるために示した。横軸は分別設定時間を、縦軸は誤計数率を表している。 α 線では分別設定時間が小さいほど α β 分離能が良く、反対に β 線では分別設定時間が大きいほど α β 分離能が良くなる。これではどのくらいに分別設定時間を決めればよいのかわからない。しかし β 線はどの設定時間でも誤計数率(spillover)が 1%以下なので、分別設定時間を小さめに設定すればよいことがわかる。

実際には、最適分別設定時間(Pulse Decay Discriminator,PDD)を設定してから測定を行う。そこで、誤計数率が小さくかつ一定になるような分別時間を設定するために、最適分別設定時間を設定した時のクエンチングの違いによる α β 分離能の変化を Fig. 3.5 に示す。横軸はクエンチングの指標である tSIE を、縦軸に誤計数率を表している。クエンチングの異なる条件下においては分別設定時間を定めても α β 分離能が変化していることがわかる。 α 線では PDD の違いにより α β 分離能に大きなばらつきが見られるが、PDD が低いほど α β 分離能が一定している。一方、 β 線ではどの PDD でも誤計数率(spillover)1%以下という良い分離能が見られ、PDD が高いほど α β 分離能が一定している。以上の結果より PDD は低い方に設定し、双方の α β 分離能の変化の少ない PDD=88 で行うこととした。

PDD=88 における α 線(Pu 同位体)及び β 線(^{241}Pu)のクエンチングと誤計数率の関係は次の式で表される。

$$\%spill(\beta) = -2 \times 10^{-8} tSIE^3 + 3 \times 10^{-5} tSIE^2 - 0.01 tSIE + 2.0 \quad [R^2=1]$$

$$\%spill(\alpha) = -9 \times 10^{-8} tSIE^3 + 1 \times 10^{-4} tSIE^2 + 0.05 tSIE - 2.2 \quad [R^2=1]$$

3.3.5. α - β 線波形分別法における最適条件の設定

以上、これまでの測定結果より、 α - β 線波形分別法では LS として ULTIMA GOLD AB を、PDD を 88 に設定した。

4. 測定液量の異なる二種の液体シンチレーションカウンターの特性及び α - β 線波形分別法との比較

4.1. 実験

測定液量が多いと分取せずに測定できるので、液量が多く放射能濃度が低い場合で

も全量の放射能を測定できる。また、多量の LS によりクエンチングの要素となる物質濃度が希釈されるためにクエンチング効果を抑え、測定精度が向上する利点がある。そのため、測定液量の異なる二種の LSC において α 線及び β 線の半値幅からの測定範囲設定を行った。その後で前章の α - β 線波形分別法及びグロス測定法において測定を行い、BG 及び核種の計数効率から検出限界値を求め、プルトニウム同位体測定に最適な条件を検討した。

4.1.1. 装置及び試薬

装置は二種の測定装置を使用した。Packard Tricarb 2550TR/AB(Packard 社)はバックグラウンド減算機構と α - β 線分別測定機構を備え、測定液量が 20ml で α 線と β 線の両方をグロス測定するモードと α 線と β 線を分別して測定するモードがある。一方、Aloka LB-III(Aloka 社)は低バックグラウンド機能を持つ装置で、測定液量が 20ml 及び 100ml で測定でき、 α 線と β 線の両方をグロス測定する。

バイアルは 20ml 用にポリエチレン製 Low diffusion PE-Vial (Packard 社製)を、100ml 用にテフロン製 BIG BOY PFA BOTTLE(井内盛栄堂社製)を使用した。

LS 及び α 線及び β 線のトレーサーについては前章と同じものを使用した。

4.1.2. 測定検討項目及び実験方法

以下の項目について検討を行った。

- I. バックグラウンド計数(BG)の計測：異なる三種の LS(AQUASOL-2,ULTIMA GOLD XR,ULTIMA GOLD AB)を用い、試料液量を 20ml と 100ml の場合に変えて測定を行った。
- II. α 線ピークの半値幅及び分解能： α 線源として ^{241}Am , ^{244}Cm を、LS に ULTIMA GOLD AB 及び ULTIMA GOLD XR を加え、クエンチャーとして四塩化炭素を 20 μl ずつ添加してエネルギーによる α 線の半値幅及び分解能を調べた。
- III. α 線及び β 線放出核種の計数効率： α 線源として ^{241}Am 、 β 線源として ^3H 、LS に ULTIMA GOLD AB を加えて 300 分間測定を行い、各核種の計数効率及び性能を調べた。
- IV. α β 線放出核種定量時の検出限界値：III の実験で得られた結果をもとに、検出限界値を求めた。

4.2. 結果と考察

4.2.1. BG の計測

Table 4.1 に試料液量 20ml の場合と試料液量 100ml の場合におけるバックグラウン

ドの計数を比較した結果を示す。バックグラウンド値の低減は、測定の性能の向上につながる。Table 4.1 に見られる通り ULTIMA GOLD AB を使用するとどちらの装置についてもバックグラウンド値が低くなり、測定に適した LS であることがわかった。

4.2.2. α 線ピークの半値幅及び分解能

Fig. 4.1 に α 線の半値幅及び分解能を比較した結果を示す。Fig. 4.1 において左の縦軸の peak は α 線のエネルギーピークであり、右の縦軸の FWHM は α 線の半値幅である。また、1channel はクエンチングのない場合 α 線では約 10KeV に相当する。 α 線の半値幅が広いために α 線のエネルギーによる分別は困難であることがわかる。よって、LSC による α 線同位体及び核種の定量に関しては、 α 線は総合計数されることになる。また、クエンチングと α 線ピーク及びクエンチングと半値幅に相関が見られ、次の式で表される。

$$\text{peak(ch)} = -0.92 + 0.62t\text{SIE} \quad (R=1.00)$$

$$\text{FWHM(ch)} = 10.7 + 0.10t\text{SIE} \quad (R=1.00)$$

これらの式で求めた値から、 α 線の下限ディスクリミネータ (Lower Level Discriminator, LLD) と上限ディスクリミネータ (Upper Level Discriminator, ULD) を、半値幅によるピークの広がり及び低波高側へのテーリングを考慮して次のように設定した。

$$\text{LLD(ch)} = \text{peak(ch)} - 1.6\text{FWHM(ch)}$$

$$\text{ULD(ch)} = \text{peak(ch)} + 1.4\text{FWHM(ch)}$$

4.2.3. α 線及び β 線放出核種の計数効率

ここでは、性能を規格化するために F.O.M. (Figure of merit) を用いた。F.O.M. は計数効率 (%) の二乗をバックグラウンド計数率 (cpm) で割った値で、F.O.M. が大きいほど性能が良いことを表す。Table 4.2 に α 線及び β 線放出核種の計数効率及び性能の結果を示す。液体シンチレータは ULTIMA GOLD AB を使い、測定時間を 300 分にして行った場合の計数効率、バックグラウンド及び性能を比較した。比較すると、tSIE が大きいほど F.O.M. は大きくなっていった。 α 線の性能は計数効率が高いために、 β 線の性能よりも良かった。また、機種及び測定機構の比較においては、 α 線においても β 線においても Packard 社製液体シンチレーション計数装置の α β 計測モードが性能が良いことがわかった。容量が多い場合において、クエンチングの減少による計数効率の上昇の影響は少なかった。

4.2.4. α β 線放出核種定量時の検出限界値

Table 4.2 で得られた結果をもとに、検出限界値を求めた。検出限界値は次式により求められる。

$$D.L.(Bq/vial) = \frac{1}{60} \times \frac{100}{E} \times \frac{3}{2} \left\{ \frac{3}{T_S} + \sqrt{\left(\frac{3}{T_S}\right)^2 + 4N_B \left(\frac{1}{T_S} + \frac{1}{T_B}\right)} \right\}$$

E : 測定効率(%)

T_S : 試料の測定時間 (分)

N_B : バックグラウンドの計数率(cpm)

T_B : バックグラウンドの測定時間 (分)

Table 4.3 に α 線及び β 線放出核種定量時の検出限界値を示す。検出限界値の幅は、クエンチングの違いにより生じている。

^{241}Pu (^3H)測定は、グロス測定法では測定液量が多い場合に利点があるにも関わらず、測定液量が少ない場合と比べて定量限界値は同程度だった。この理由は測定液量が多い場合に BG が増加し、それが定量限界値を上げるためと思われる。 α - β 線分別法では分別曲線は使用する LS の選択により α - β 線分別能の向上はみられたが BG はあまり変わらなかった。また、核種のエネルギーやクエンチングに対し変化がみられた。これらの影響による設定を行った上でグロス測定法と比較すると、どちらの方法でも精度は同じくらいで測れることがわかった。ただ、クエンチング効果が大きい場合、定量限界値は α - β 線分別法が一番低い値を示した。

Pu の α 線同位体測定において、グロス測定法ではいずれの機種でも定量限界値は同程度だった。 α - β 線分別法では分別曲線は使用する LS の選択により α - β 線分別能の向上及び BG 低下が見られた。また、核種のエネルギーやクエンチングに対し変化がみられた。これらの影響による分別曲線の補正及び測定範囲の設定を行った上でグロス測定法と比較すると、 α - β 線波形分別法では BG を低下でき計数効率もよいため定量限界値も低くなり、測定液量が少なくても精度良く測ることが出来ることがわかった。

4.2.5. まとめ

^{241}Pu 測定においてクエンチング効果が大きい場合、定量限界値は α - β 線分別法が一番低い値を示したこと、及び Pu の α 線同位体において α - β 線分別法では分別曲線は使用する LS の選択により α - β 線分別能の向上及び BG 低下が見られ定量限界値も低くなり、測定液量が少なくても精度良く測ることが出来ることから、低レベルプルトニウム同位体の LSC 測定は次のような設定で行うとよいことがわかった。

測定装置: Packard 2550TR/AB

mode: α β mode (discriminator 88)

LS: ULTIMA GOLD AB

5. チェルノブイル事故炉周辺環境試料への適用

検討した測定手法を用いて、チェルノブイル事故炉周辺の汚染土壌及び河川試料の ^{241}Pu の測定を行った。

$$D.L.(Bq/vial) = \frac{1}{60} \times \frac{100}{E} \times \frac{3}{2} \left\{ \frac{3}{T_S} + \sqrt{\left(\frac{3}{T_S}\right)^2 + 4N_B \left(\frac{1}{T_S} + \frac{1}{T_B}\right)} \right\}$$

E : 測定効率(%)

T_S : 試料の測定時間 (分)

N_B : バックグラウンドの計数率(cpm)

T_B : バックグラウンドの測定時間 (分)

Table 4.3 に α 線及び β 線放出核種定量時の検出限界値を示す。検出限界値の幅は、クエンチングの違いにより生じている。

^{241}Pu (^3H)測定は、グロス測定法では測定液量が多い場合に利点があるにも関わらず、測定液量が少ない場合と比べて定量限界値は同程度だった。この理由は測定液量が多い場合に BG が増加し、それが定量限界値を上げるためと思われる。 α - β 線分別法では分別曲線は使用する LS の選択により α - β 線分別能の向上はみられたが BG はあまり変わらなかった。また、核種のエネルギーやクエンチングに対し変化がみられた。これらの影響による設定を行った上でグロス測定法と比較すると、どちらの方法でも精度は同じくらいで測れることがわかった。ただ、クエンチング効果が大きい場合、定量限界値は α - β 線分別法が一番低い値を示した。

Pu の α 線同位体測定において、グロス測定法ではいずれの機種でも定量限界値は同程度だった。 α - β 線分別法では分別曲線は使用する LS の選択により α - β 線分別能の向上及び BG 低下が見られた。また、核種のエネルギーやクエンチングに対し変化がみられた。これらの影響による分別曲線の補正及び測定範囲の設定を行った上でグロス測定法と比較すると、 α - β 線波形分別法では BG を低下でき計数効率もよいため定量限界値も低くなり、測定液量が少なくても精度良く測ることが出来ることがわかった。

4.2.5. まとめ

^{241}Pu 測定においてクエンチング効果が大きい場合、定量限界値は α - β 線分別法が一番低い値を示したこと、及び Pu の α 線同位体において α - β 線分別法では分別曲線は使用する LS の選択により α - β 線分別能の向上及び BG 低下が見られ定量限界値も低くなり、測定液量が少なくても精度良く測ることが出来ることから、低レベルプルトニウム同位体の LSC 測定は次のような設定で行うとよいことがわかった。

測定装置: Packard 2550TR/AB

mode: α β mode (discriminator 88)

LS: ULTIMA GOLD AB

5. チェルノブイル事故炉周辺環境試料への適用

検討した測定手法を用いて、チェルノブイル事故炉周辺の汚染土壌及び河川試料の ^{241}Pu の測定を行った。

土壌試料については 110°C で乾燥後酸浸出を行い、水酸化鉄(III)共沈法及びイオン交換分離法による放射化学分離操作を行った。また、河川試料については 0.2 μ m フィルターで濾過後の溶存成分の鉄共沈物を持ち帰り、化学処理により放射能分析を行った。 ^{241}Am については電着試料を Si 半導体検出器を用いた α 線スペクトロメトリーにより Pu の分離を行った。 α 線を放出するプルトニウム同位体(^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$)については、電着試料を α 線スペクトロメトリー測定により同位体別に定量を行った。その後、測定の終了した電着板の膜を濃硝酸とフッ化水素酸ではく離し、TOPO-シクロヘキサン溶液による抽出を行い、分離した ^{241}Pu 及び α 線を放出するプルトニウム同位体を含む溶液を液体シンチレータ ULTIMA GOLD AB と混ぜ、LSC で測定した。Fig. 5.1 に ^{241}Pu の分離過程を示す。分析を行った試料についての一覧を Table 5.1 に示す。

Table 5.2 に ^{241}Pu の土壌深度分布及び河川試料の定量結果を示す。この表における収率は電着板作成時の値であり、電着板からの ^{241}Pu の抽出率はどの試料においても 80% 前後であった。定量精度に関しては、河川試料は放射能濃度が低いために誤差が大きくなっており、電着板の収率に定量誤差が左右される傾向にある。一方、土壌試料に対しては誤差は 1~5% であり精度良く測れることがわかる。よって、汚染された環境試料についてこの方法は適用できることがわかった。また、これらの結果は、土壌深度分布による汚染土壌中の放射性核種の特徴の評価や、放射性核種間の放射能比からの ^{241}Am の ^{241}Pu からの生成度合や今後の被曝の寄与を知るために利用することができる。

6. 結 論

これまでの結果をまとめると、次のようなことが言える。

1. α 線及び β 線の分別測定において、LS の種類は溶媒と発光剤である芳香族の間のエネルギー移行過程において迅速に作用するナフタレンベースの溶剤が、 α β 分別を良くする働きがあることが確かめられた。
2. α - β PSD 法のうち PDA に基づいた α 線及び β 線の分別測定は α 線のバックグラウンドを低減し、 α 線及び β 線の測定性能を高める。
3. 今回検討した測定手法と従来の放射化学的な手法を併用して、チェルノブイル事故炉周辺環境試料中の ^{241}Pu の定量を精度良く行うことができる。

謝 辞

本研究を進めるに当たり、実験の際に御助力及び御助言を頂いた日本原子力研究所環境安全研究部環境化学研究室の松永武研究員、上野隆研究員、新麻里子研究員、地質環境研究室の柳瀬信之研究員、天然バリア研究室の長尾誠也研究員及び(財)放射線計測協会の小沼義一氏に感謝いたします。また、本研究の機会を与えて下さった青山学院大学理工学部の木村幹教授に感謝致します。

土壌試料については 110°C で乾燥後酸浸出を行い、水酸化鉄(III)共沈法及びイオン交換分離法による放射化学分離操作を行った。また、河川試料については 0.2 μ m フィルターで濾過後の溶存成分の鉄共沈物を持ち帰り、化学処理により放射能分析を行った。 ^{241}Am については電着試料を Si 半導体検出器を用いた α 線スペクトロメトリーにより Pu の分離を行った。 α 線を放出するプルトニウム同位体(^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$)については、電着試料を α 線スペクトロメトリー測定により同位体別に定量を行った。その後、測定を終了した電着板の膜を濃硝酸とフッ化水素酸ではく離し、TOPO-シクロヘキサン溶液による抽出を行い、分離した ^{241}Pu 及び α 線を放出するプルトニウム同位体を含む溶液を液体シンチレータ ULTIMA GOLD AB と混ぜ、LSC で測定した。Fig. 5.1 に ^{241}Pu の分離過程を示す。分析を行った試料についての一覧を Table 5.1 に示す。

Table 5.2 に ^{241}Pu の土壌深度分布及び河川試料の定量結果を示す。この表における収率は電着板作成時の値であり、電着板からの ^{241}Pu の抽出率はどの試料においても 80% 前後であった。定量精度に関しては、河川試料は放射能濃度が低いために誤差が大きくなっており、電着板の収率に定量誤差が左右される傾向にある。一方、土壌試料に対しては誤差は 1~5% であり精度良く測れることがわかる。よって、汚染された環境試料についてこの方法は適用できることがわかった。また、これらの結果は、土壌深度分布による汚染土壌中の放射性核種の特徴の評価や、放射性核種間の放射能比からの ^{241}Am の ^{241}Pu からの生成度合や今後の被曝の寄与を知るために利用することができる。

6. 結 論

これまでの結果をまとめると、次のようなことが言える。

1. α 線及び β 線の分別測定において、LS の種類は溶媒と発光剤である芳香族の間のエネルギー移行過程において迅速に作用するナフタレンベースの溶剤が、 α β 分別を良くする働きがあることが確かめられた。
2. α - β PSD 法のうち PDA に基づいた α 線及び β 線の分別測定は α 線のバックグラウンドを低減し、 α 線及び β 線の測定性能を高める。
3. 今回検討した測定手法と従来の放射化学的手法を併用して、チェルノブイル事故炉周辺環境試料中の ^{241}Pu の定量を精度良く行うことができる。

謝 辞

本研究を進めるに当たり、実験の際に御助力及び御助言を頂いた日本原子力研究所環境安全研究部環境化学研究室の松永武研究員、上野隆研究員、新麻里子研究員、地質環境研究室の柳瀬信之研究員、天然バリア研究室の長尾誠也研究員及び(財)放射線計測協会の小沼義一氏に感謝いたします。また、本研究の機会を与えて下さった青山学院大学理工学部の木村幹教授に感謝致します。

土壌試料については 110°C で乾燥後酸浸出を行い、水酸化鉄(III)共沈法及びイオン交換分離法による放射化学分離操作を行った。また、河川試料については 0.2 μ m フィルターで濾過後の溶存成分の鉄共沈物を持ち帰り、化学処理により放射能分析を行った。 ^{241}Am については電着試料を Si 半導体検出器を用いた α 線スペクトロメトリーにより Pu の分離を行った。 α 線を放出するプルトニウム同位体(^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$)については、電着試料を α 線スペクトロメトリー測定により同位体別に定量を行った。その後、測定を終了した電着板の膜を濃硝酸とフッ化水素酸ではく離し、TOPO-シクロヘキサン溶液による抽出を行い、分離した ^{241}Pu 及び α 線を放出するプルトニウム同位体を含む溶液を液体シンチレータ ULTIMA GOLD AB と混ぜ、LSC で測定した。Fig. 5.1 に ^{241}Pu の分離過程を示す。分析を行った試料についての一覧を Table 5.1 に示す。

Table. 5.2 に ^{241}Pu の土壌深度分布及び河川試料の定量結果を示す。この表における収率は電着板作成時の値であり、電着板からの ^{241}Pu の抽出率はどの試料においても 80% 前後であった。定量精度に関しては、河川試料は放射能濃度が低いために誤差が大きくなっており、電着板の収率に定量誤差が左右される傾向にある。一方、土壌試料に対しては誤差は 1~5% であり精度良く測れることがわかる。よって、汚染された環境試料についてこの方法は適用できることがわかった。また、これらの結果は、土壌深度分布による汚染土壌中の放射性核種の特徴の評価や、放射性核種間の放射能比からの ^{241}Am の ^{241}Pu からの生成度合や今後の被曝の寄与を知るために利用することができる。

6. 結 論

これまでの結果をまとめると、次のようなことが言える。

1. α 線及び β 線の分別測定において、LS の種類は溶媒と発光剤である芳香族の間のエネルギー移行過程において迅速に作用するナフタレンベースの溶剤が、 α β 分別を良くする働きがあることが確かめられた。
2. α - β PSD 法のうち PDA に基づいた α 線及び β 線の分別測定は α 線のバックグラウンドを低減し、 α 線及び β 線の測定性能を高める。
3. 今回検討した測定手法と従来の放射化学的手法を併用して、チェルノブイル事故炉周辺環境試料中の ^{241}Pu の定量を精度良く行うことができる。

謝 辞

本研究を進めるに当たり、実験の際に御助力及び御助言を頂いた日本原子力研究所環境安全研究部環境化学研究室の松永武研究員、上野隆研究員、新麻里子研究員、地質環境研究室の柳瀬信之研究員、天然バリア研究室の長尾誠也研究員及び(財)放射線計測協会の小沼義一氏に感謝いたします。また、本研究の機会を与えて下さった青山学院大学理工学部の木村幹教授に感謝致します。

参考文献

1. 松岡理:「プルトニウムの安全性評価」,日刊工業新聞社(1993)
2. Komura,K.,Sakanoue,M.,Yamamoto,M.: Health Phys.,46, 1213 (1984)
3. 科学技術庁:「液体シンチレーションカウンタによる放射性核種分析法」,(1992)
4. Matunami, T., Mamuro, T.: Annual Rep. Radiat. Cent. Osaka Pref.,21, 1 (1980)
5. Yamamoto, M., et al.: J. Radioanal. Nucl. Chem.,Articles, 138,2 (1990)
6. Yu, Yu-fu, Bjornstad, E., Salbu, B.:Analyst,117, 439 (1992)
7. Pimpl, M.: J. radioanal nucl. chem.161, 429(1992)
8. Fliss,P.,Enge,R.:Nucl.Eng.Des.147,111(1993)
9. Yang,D.,Zyu,Y.,Mobius,S.:J.Radioanal.Nucl.Chem.147,177(1991)
10. McDowell,W.J.,McDowell,R.L.:”Liquid Scintillation Alpha Spectrometry”CRC Press(1994)
11. 石川寛昭:「液体シンチレーション測定法」,南山堂(1977)
12. Brooks,F.D.:Nucl.Inst.Methods.162,477(1979)

Table 2.1 Classification of quencher

strength	chemicals
weak quencher	hydrocarbon, ether, ester, alcohol, water, fluoride, cyanide
middle quencher	keton, bromide
strong quencher	iodide, amine, aldehyde, phenol, nitro compounds

Table 3.1 Nucleus data of radionuclides

nuclide	decay	half-life	Energy(MeV)	percentage(%)
Cm-244	α	18.1yr	5.763	24.0
			5.805	76.0
Am-241	α	433yr	5.38	1.4
			5.44	12.8
			5.49	85.2
			5.51	0.2
			5.54	0.3
Sr-90	β^-	28.8yr	0.546	100
C-14	β^-	5.73×10^3 yr	0.156	100
H-3	β^-	12.3yr	0.0186	100

Table 4.1 Background counting rate of LSC in different machines

machine	volume(ml)	scintillator	$\alpha \beta - \alpha$ (cpm)	$\alpha \beta - \beta$ (cpm)	cpm mode(cpm)
Packard	20	UG AB	3.66	16.98	27.77
	20	UG XR	4.36	35.80	40.63
	20	Aquazol-2	5.93	32.83	43.90
Aloka	20	UG AB	-	-	6.24
	20	UG XR	-	-	8.78
	20	Aquazol-2	-	-	10.76
	100	UG AB	-	-	18.83
	100	UG XR	-	-	26.50
	100	Aquazol-2	-	-	32.48

Table 4.2 Counting efficiency and performance of LSC

nuclide	scintillator:UG AB	machine	mode	window(ch)	eff%	BG(cpm)	tSIE	F.O.M.	
H-3		Packard	α β (88)	0-18	25	4.70	211	137	
				0-18	63	5.20	617	762	
				0-18	25	9.92	211	65	
				0-18	63	8.88	617	447	
		Aloka(20ml)		cpm	0-7	15	2.45	211	88
					0-8	21	1.91	617	222
					0-8	23	5.77	>617	95
Am-241		Packard	α β (88)	81.5-181.8	94	0.63	219	13971	
				271.1-497.7	100	0.42	634	23851	
				81.6-181.9	94	3.78	219	2313	
				270.4-496.6	98	3.37	632	2841	
		Aloka(20ml)		cpm	33-77	96	3.47	219	2671
					110-210	101	3.26	632	3108
					110-210	101	9.85	>632.15	1043

Table 4.3 Detection limit of LSC

nuclide	machine	mode	E(%)	V(ml)	Ts(min)	Nb(cpm)	Tb(min)	D.L.(Bq/sample)	
H-3	Packard	α β (88)	25	20	300	4.70	300	3.59E-02	
		α β (88)	63	20	300	5.20	300	1.52E-02	
	Aloka(20ml)	cpm	25	20	300	9.92	300	5.17E-02	
		cpm	63	20	300	8.88	300	1.97E-02	
		cpm	15	20	300	2.45	300	4.53E-02	
		cpm	21	20	300	1.91	300	2.86E-02	
		cpm	23	100	300	5.77	300	4.29E-02	
		cpm							
	Am-241	Packard	α β (88)	94	20	300	0.63	300	3.73E-03
			α β (88)	100	20	300	0.42	300	2.91E-03
Aloka(20ml)		cpm	94	20	300	3.78	300	8.76E-03	
		cpm	98	20	300	3.37	300	7.92E-03	
		cpm	96	20	300	3.47	300	8.16E-03	
		cpm	101	20	300	3.26	300	7.58E-03	
		cpm	101	100	300	9.85	300	1.29E-02	
		cpm							

Table 5.1 Relevant parameters for environmental samples from different ecosystems

sample name	sampling site	sample	distance	sample characteristics
NV	Novosjolki village	meadow soil	18km(south)	organic matter,0-1cm,1-2cm, 2-3cm,3-5cm depth
SL	Pine forest near River Sahan	forest soil	5km(west)	AoL,AoF,AoH,0-1cm,1-2cm, 2-3cm,3-5cm,5-8cm,5-10cm, 10-15cm,15-20cm depth
WF	Water-flood of River Pripyat	water-flood soil	20km (south east)	0-1cm,1-2cm,2-3cm, 3-5cm,5-8cm depth
Sahan	River Sahan	water	5km(west)	dissolved (finer than 0.2 μ m)
Pripyat	River Pripyat	water	20km (south east)	dissolved (finer than 0.2 μ m)
Glubokoye	Lake Glubokoye	water	5km(north)	dissolved (finer than 0.2 μ m)
IAEA135	Sellafield,U.K.	sediment	—	—

Table 5.2 Determination of Pu-241 in environmental samples around chernobyl

Type	Sample	weight(g soil) (L water)	Activity(Bq/g soil) (Bq/L water)	error(%)	yield(%)
soil	NV (org.)	1.08	1.15e+1	3	33
	(0-1cm)	2.00	1.41e+0	2	50
	(1-2cm)	2.01	3.22e-1	5	24
soil	SL (AoL)	1.27	1.51e+0	3	45
	(AoF)	1.29	2.43e+1	3	54
	(AoH)	1.26	9.87e+1	3	83
	(0-1cm)	1.24	6.80e+0	3	76
	(1-2cm)	1.23	8.43e-1	5	31
	(2-3cm)	1.22	2.97e-1	6	72
soil	WF (0-1cm)	0.97	1.09e+1	1	48
	(1-2cm)	0.18	3.72e+1	2	20
water	Sahan	37.4	3.2e-2	52	5
	Pripyat	46.5	5.5e-3	21	22
	Glubokoye	19.8	2.4e-2	7	34

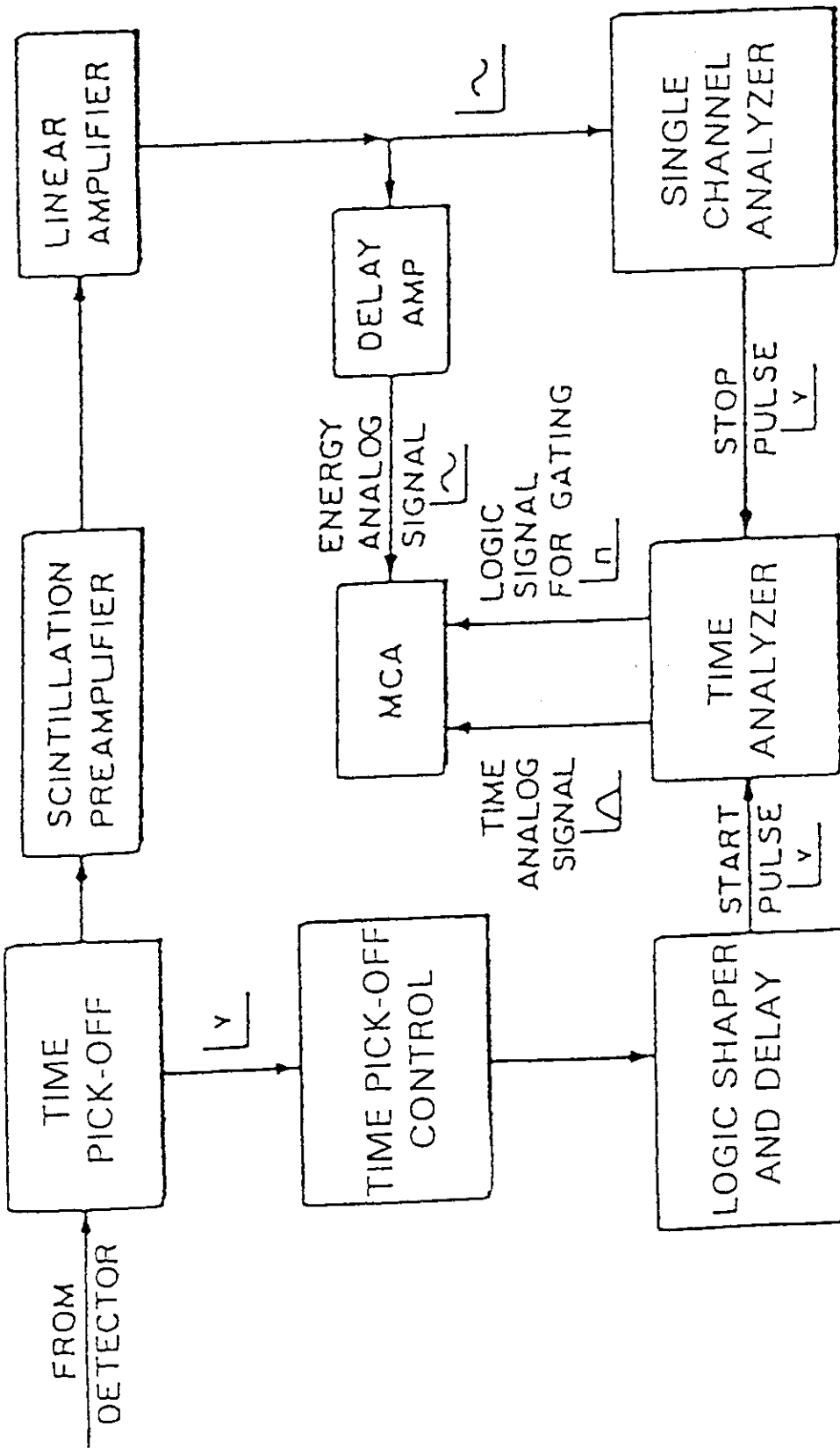


Fig. 2.1 A Block diagram of LSC¹⁰

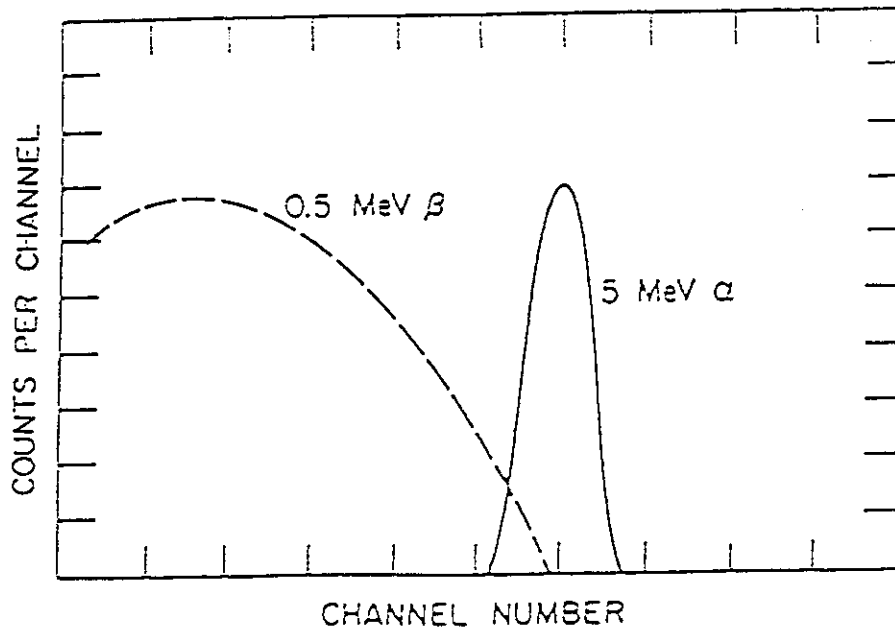


Fig. 2.2 Beta radiation, 0.5MeV, compared with 5MeV alpha radiation in a LSC¹⁰⁾

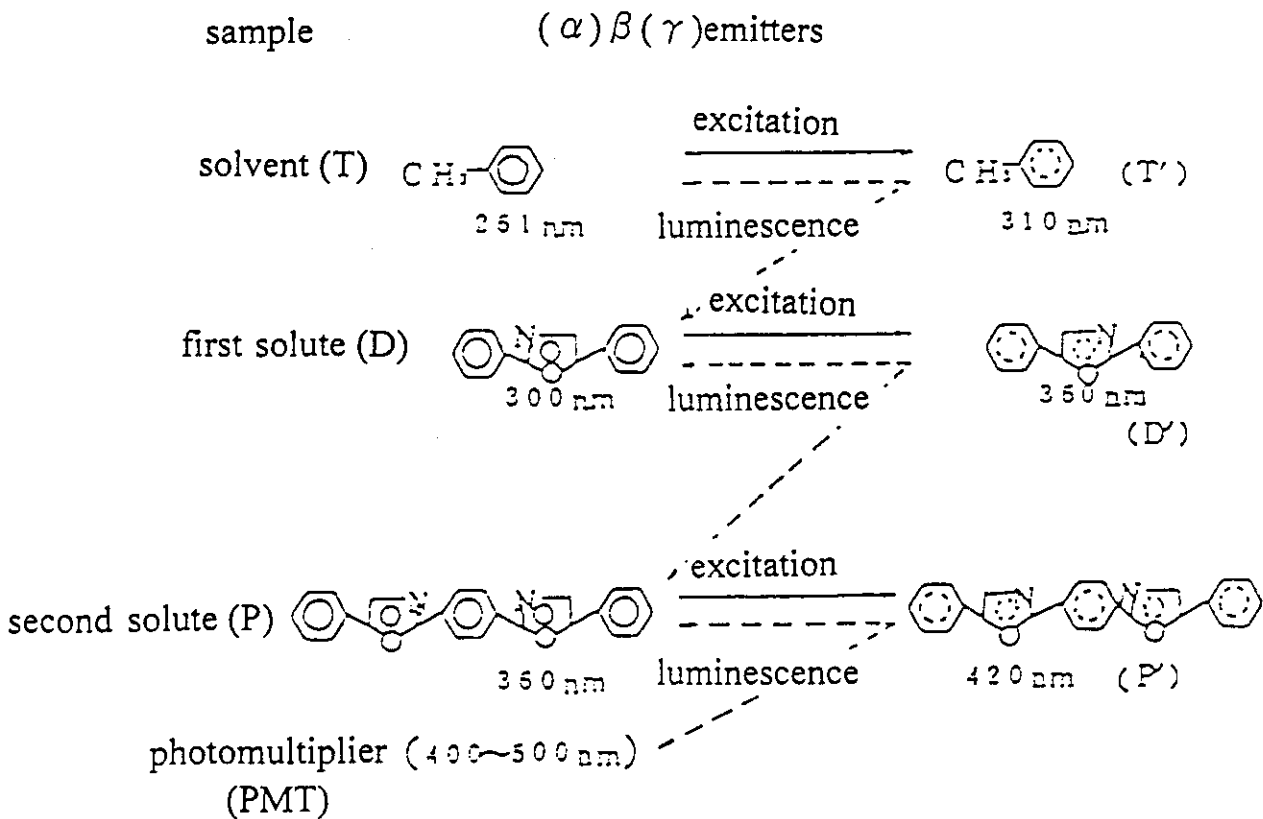


Fig. 2.3 Mechanism of liquid scintillation¹¹⁾

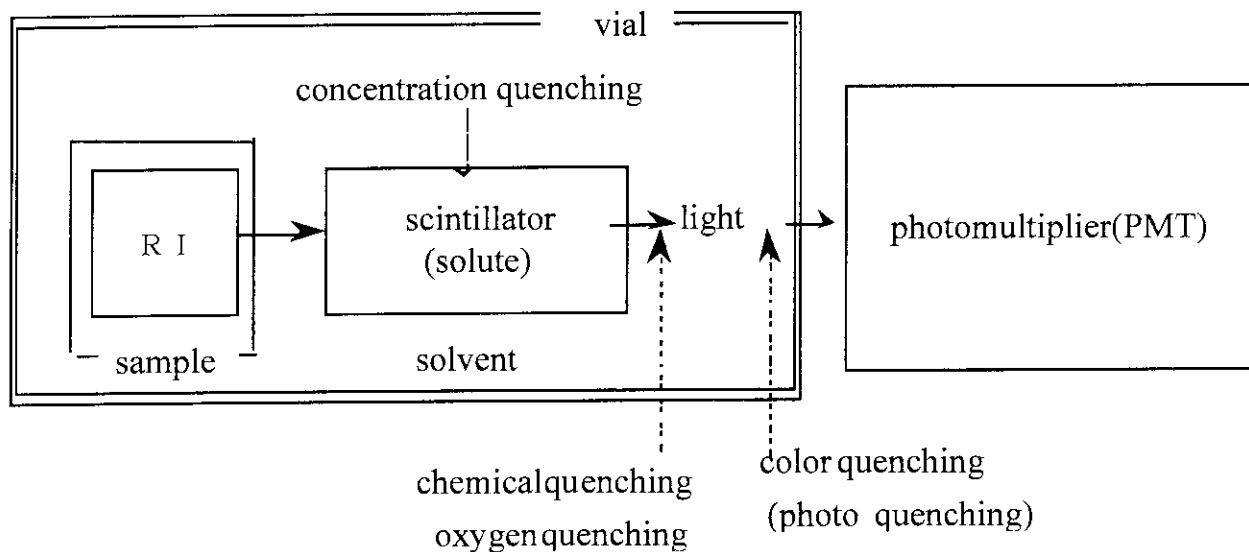


Fig. 2.4 Theoretical model of Liquid Scintillation Counting and Quenching

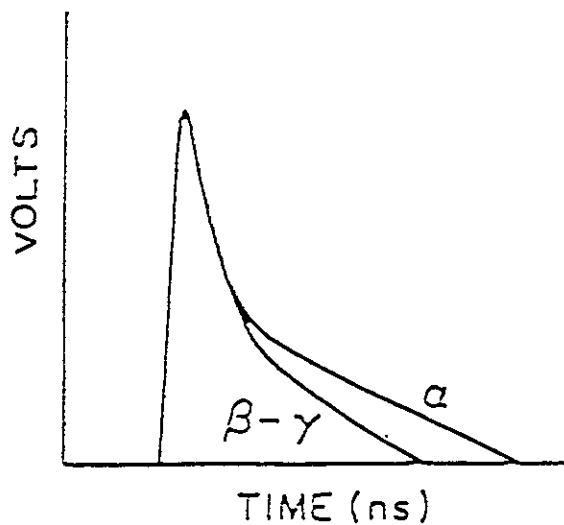


Fig. 2.5 Difference of the shape of amplified voltage pulse¹⁰⁾

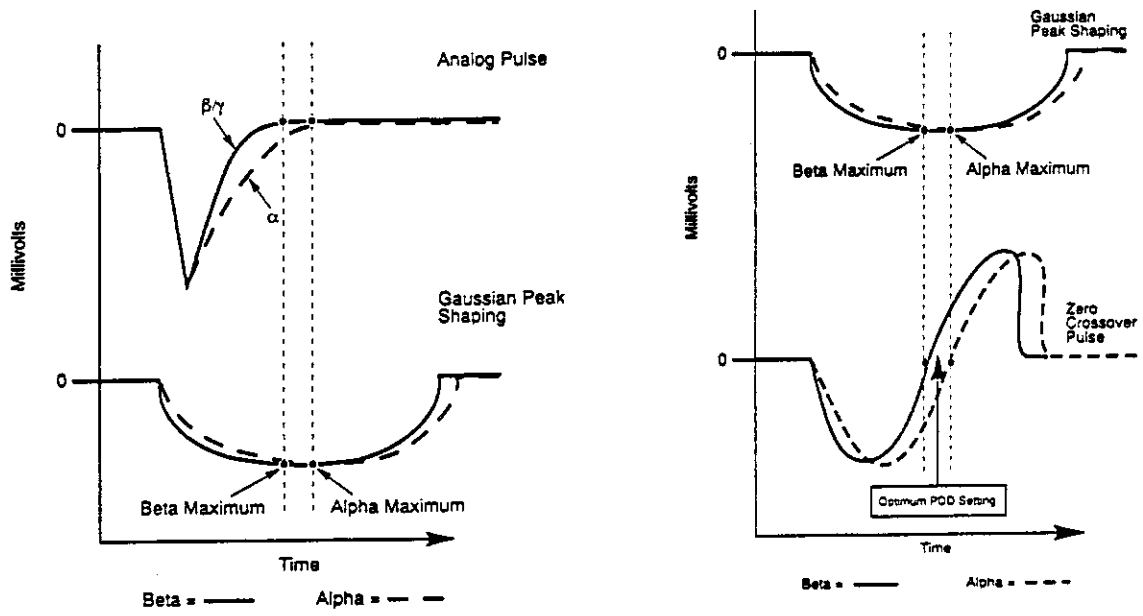
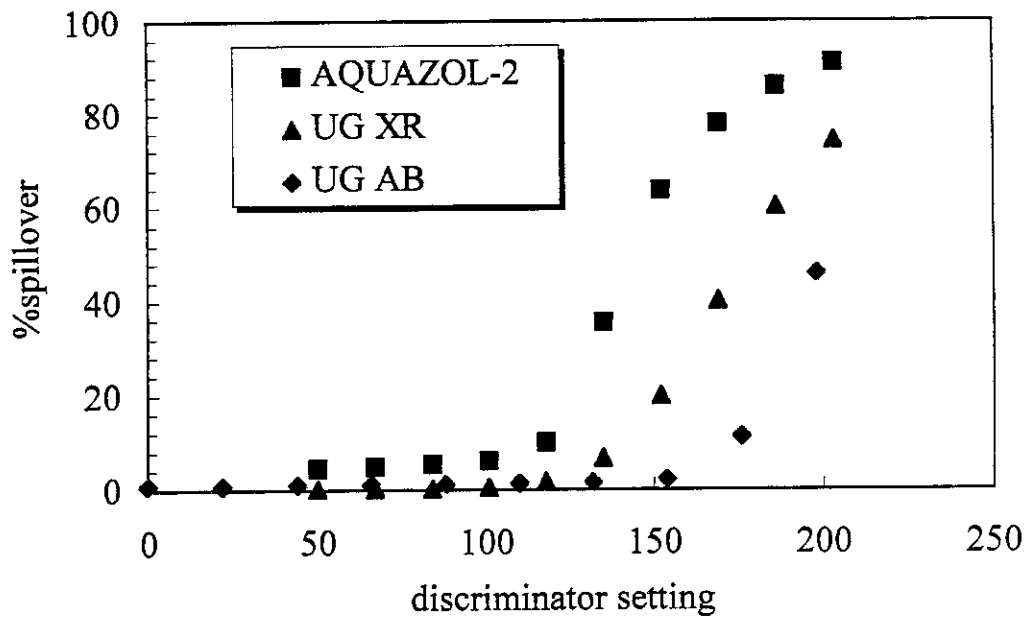
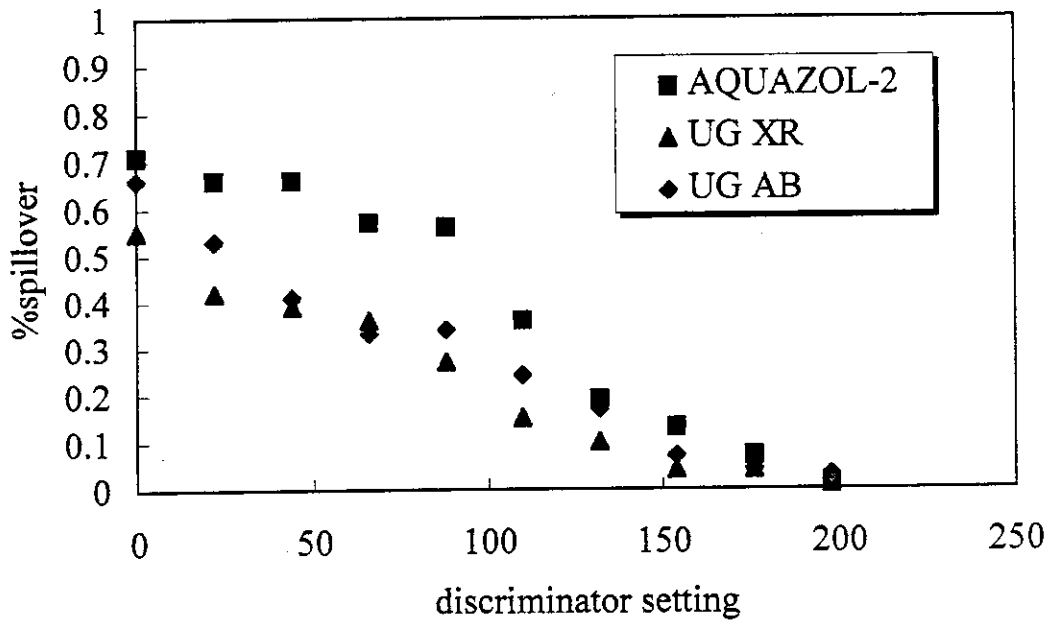


Fig.2.6 Timing in separating beta-gamma and alpha peaks¹⁰⁾

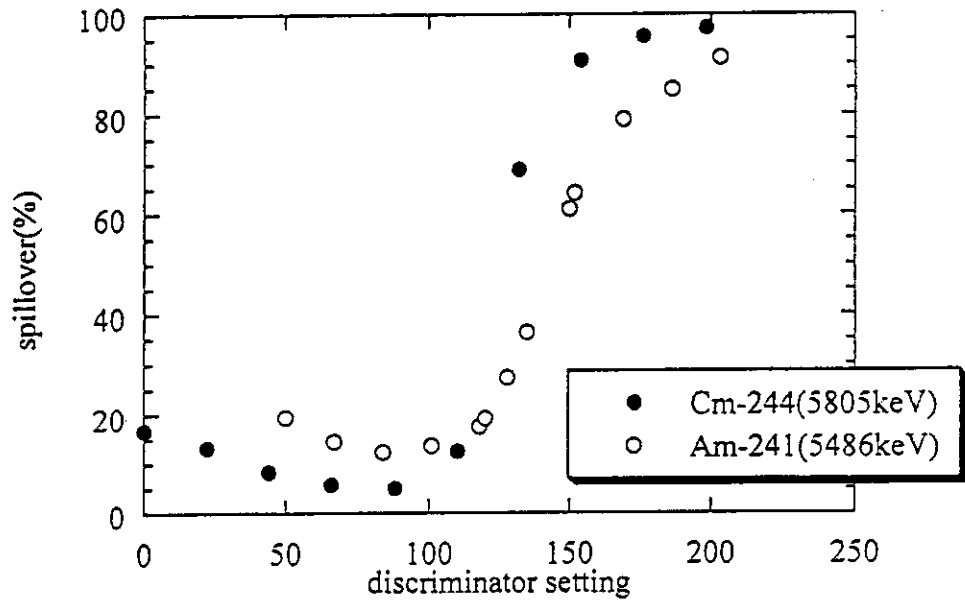


(a) Discrimination curve of Am-241

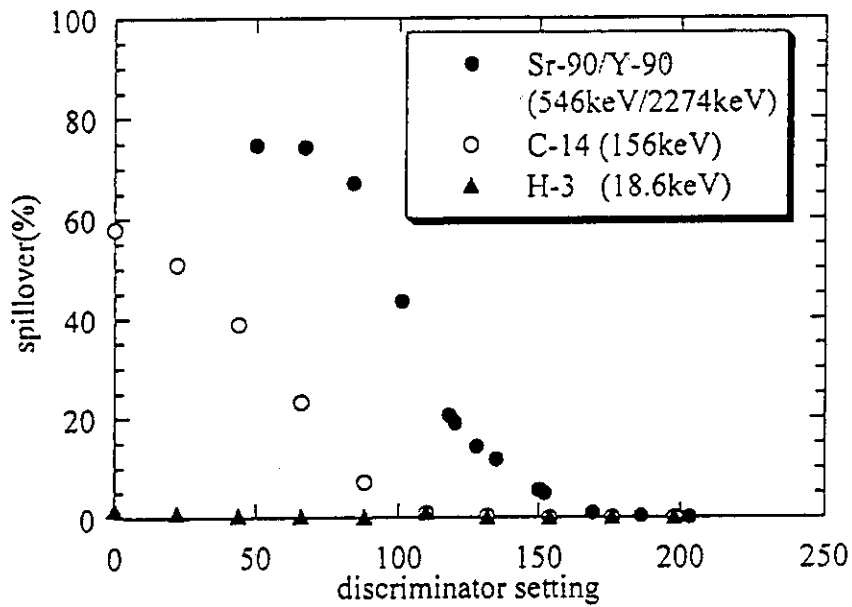


(b) Discrimination curve of H-3

Fig. 3.1 Discrimination curve using various scintillator

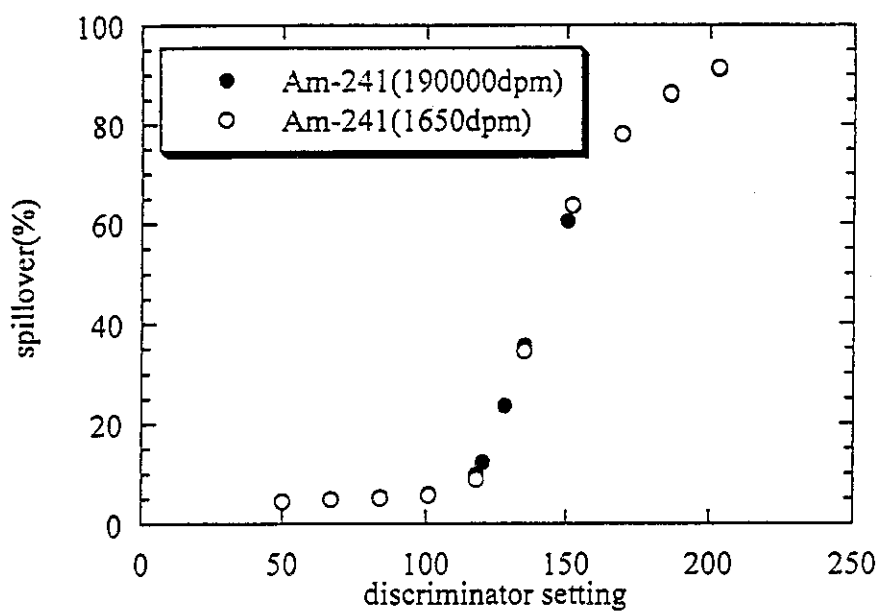


(a) alpha nuclides

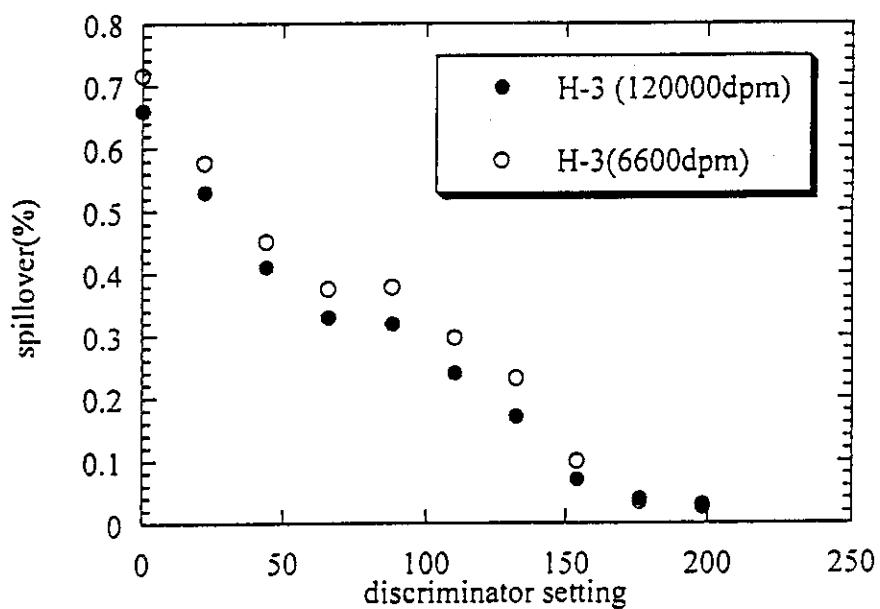


(b) beta nuclides

Fig. 3.2 Misclassification plot for various nuclides



(a) Am-241 [alpha nuclide]



(b) H-3 [beta nuclide]

Fig. 3.3 Misclassification plot as a function of radioactivity

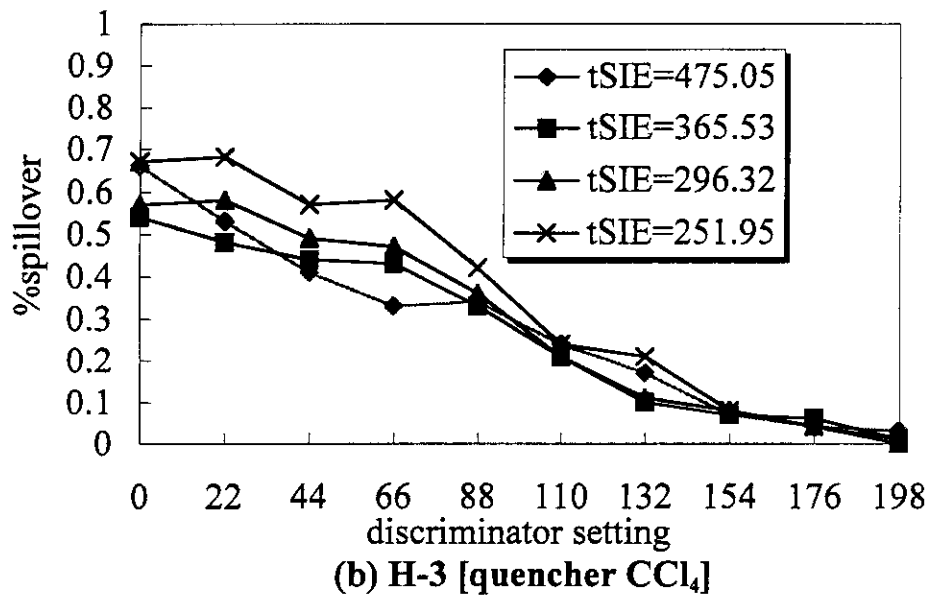
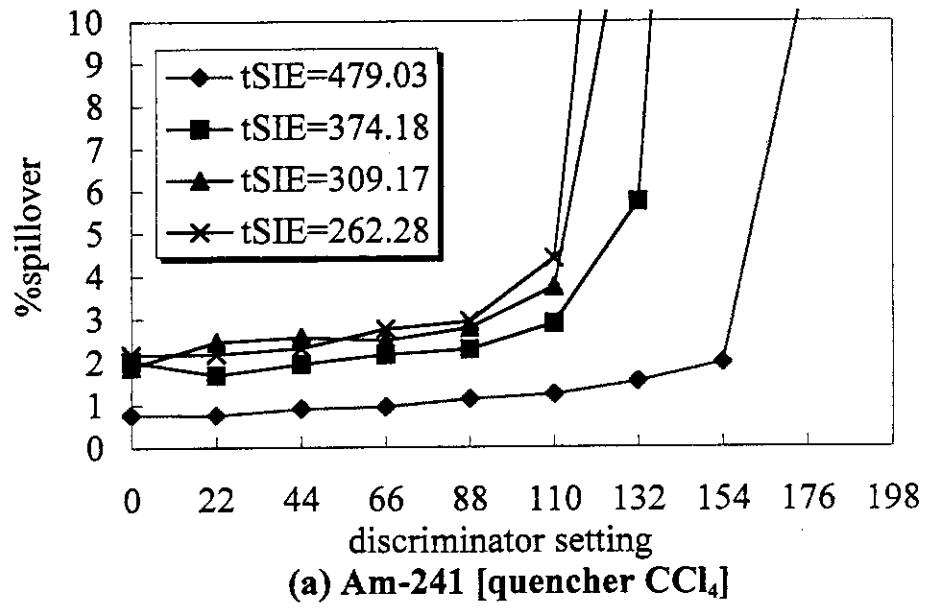


Fig. 3.4 Misclassification plot under quenched conditions

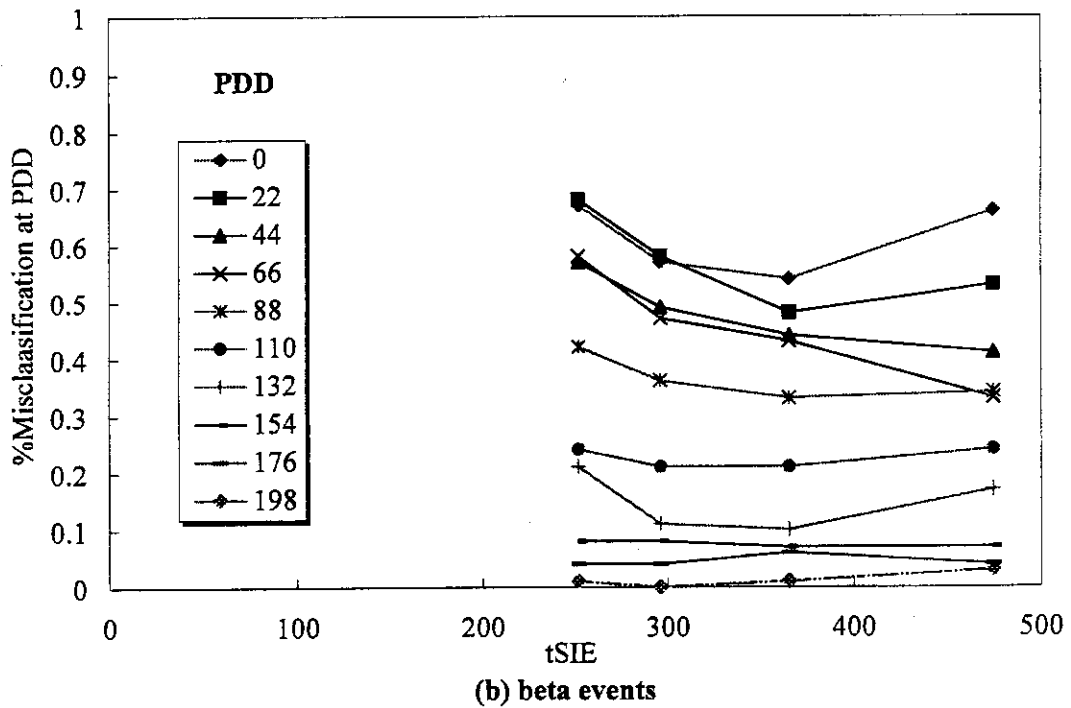
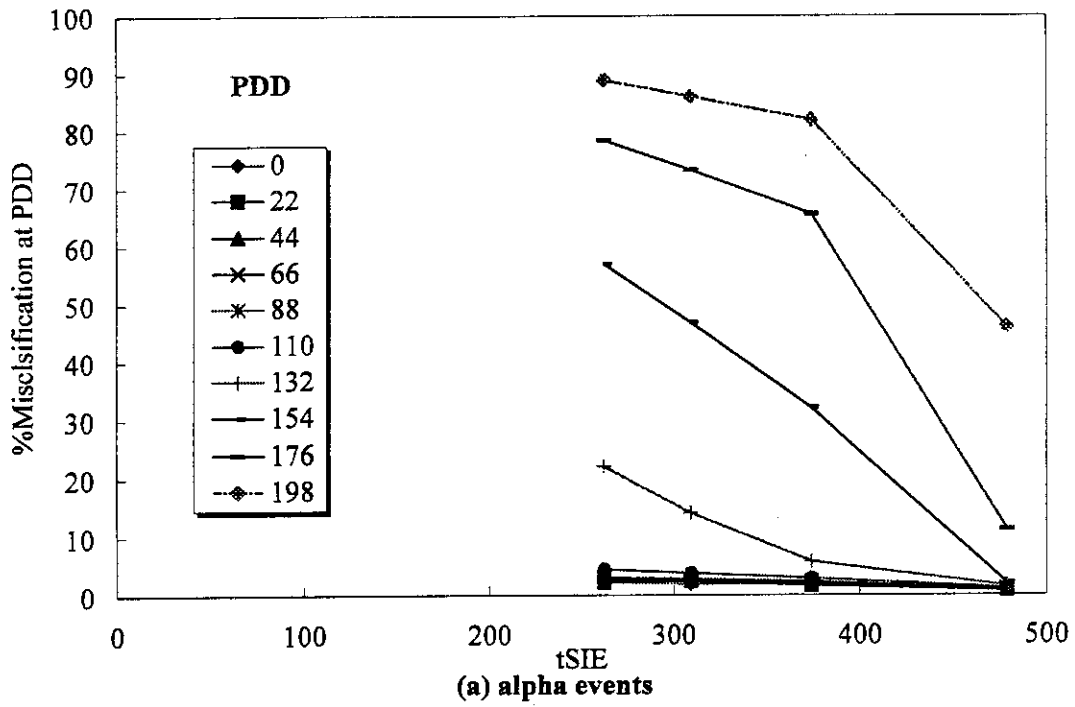


Fig. 3.5 The effect of quenching on percent misclassification of alpha events using UG AB

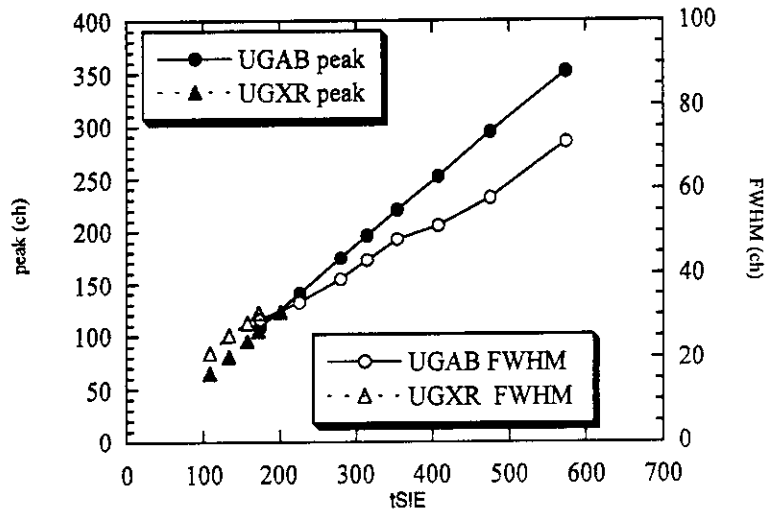


Fig. 4.1 Alpha peak and FWHM of Am-241 under quenched conditions

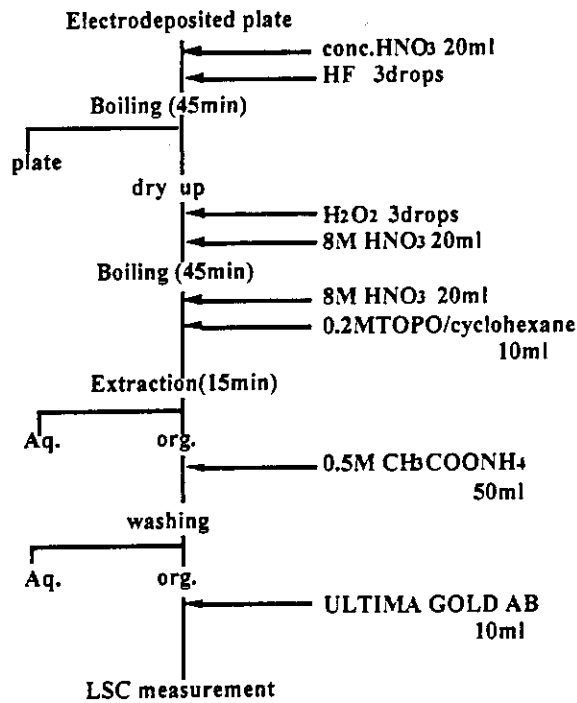


Fig. 5.1 Analytical procedure for Pu-241