

資料は 年 月 日付けで登録区分、
更新する。

01.10.-4

[技術情報室]

環境中における長半減期放射性核種の 定量法とそのレベルに関する調査研究(I)

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1996年3月

(財) 日本分析センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

この資料は、動燃事業団社内における検討を目的とする社内資料です。ついては、複製
転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下
さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう注意して下さい。

本資料についての問い合わせは下記に願います。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松4-33
動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所
技術開発推進部・技術管理室



社 内 資 料

PNC ~~J~~J1309 96-001

1996年3月

環境中における長半減期放射性核種の定量法とそのレベルに関する調査研究 (I)

樋口 英雄*

要 旨

本報告は、本邦での核燃料サイクル施設の本格的稼働を間近に控えたこの時期において、核燃料サイクルとも関連した環境中の長半減期放射性核種の分析法並びにそれらのレベルを調査した結果をとりまとめたものである。

本報告書は以下の項目の内容が記載されている。

- (1) トリチウム人体代謝モデルの検証に環境データを用いる際の問題点
- (2) 二酸化炭素吸収剤を用いる環境中の ^{14}C 測定法
- (3) ^{99}Tc 分析のための $^{95\text{m}}\text{Tc}$ トレーサーの製造
- (4) 放射性降下物の最近の状況
- (5) 環境試料中の ^{241}Pu 分析
- (6) 環境試料中の $^{242}, ^{243}, ^{244}\text{Cm}$ 分析
- (7) α 線放射体測定のための収率トレーサー
- (8) クロスチェックについて

本報告書は財団法人日本分析センターが動力炉・核燃料開発事業団との契約により実施した業務の成果である。

契約番号：070D0201

事業団担当者：石黒秀治 東海事業所 安全管理部長

*：財団法人日本分析センター 研修・技術部長



OFFICIAL USE ONLY

PNC EJ1309 96-001

MARCH 1996

An Advanced Survey of Radioanalytical Methods for Long-Lived Radionuclides
and its Radioactivity Level in Environment (I)

Hideo Higuchi*

Abstract

A further advanced survey on the radioanalytical methods and radioactivity level for long-lived radionuclides in environment has been conducted.

The valuable information on recent analytical techniques and behavior of radionuclides in environment was obtained for the long-lived radionuclides such as ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{137}Cs and transuranium.

This volume includes the following contents:

- (1) Model and its limitation on the estimation of tritium behavior in human body using environmental data
- (2) ^{14}C analysis in environmental samples by using CO_2 absorbent
- (3) Production method of $^{95\text{m}}\text{Tc}$ tracer for ^{99}Tc analysis
- (4) Recent study on fallout radionuclides
- (5) ^{241}Pu analysis in environmental samples
- (6) 242 , 243 , ^{244}Cm analysis in environmental samples
- (7) Radioactive tracer for recovery of chemical analysis of α emitter
- (8) Intercomparison for quality control of analysis

This work was performed by Japan Chemical Analysis Center under contact with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

PNC Liaison : Shuji Ishiguro Director, Health and Safety Division
Tokai Works, PNC.

* : Director, Division of Research & Training, Japan Chemical Analysis Center

長半減期放射性核種の定量法等に関する検討委員会

委員名簿

委員長	橋本哲夫	新潟大学 理学部化学教室 教授
委員	久松俊一	秋田大学 医学部公衆衛生学講座 助手
	山本政儀	金沢大学 理学部附属低レベル放射能実験施設 助教授
	百島則幸	九州大学 理学部化学科 助手
	五十嵐康人	気象研究所 地球化学研究部第二研究室 主任研究官
オブザーバー	片桐裕実	動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所 安全管理部 環境安全課
	渡辺均	動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所 安全管理部 環境安全課

(敬称略)

事務局	樋口英雄	(財)日本分析センター 研修・技術部
	佐藤兼章	(財)日本分析センター 研修・技術部 技術課
	今澤良章	(財)日本分析センター 研修・技術部 技術課
	金子健司	(財)日本分析センター 研修・技術部 技術課

目 次

1. はじめに	1
2. 調査研究目的	2
3. 概要	3
3.1 調査研究概要	3
3.2 調査研究検討委員会	3
3.2.1 調査研究期間	3
3.2.2 委員会開催日および議題	3
4. 調査研究成果	4
4.1 トリチウム人体代謝モデルの検証に環境データを用いる際の問題点	4
4.1.1 はじめに	4
4.1.2 食品・人体組織中フォールアウトトリチウムのデータ	4
4.1.3 人体代謝モデル	6
4.1.4 計算結果	6
参考文献	7
4.2 二酸化炭素の吸収剤を用いる環境中の炭素-14測定法	17
4.2.1 はじめに	17
4.2.2 実験	17
4.2.3 環境試料の測定	21
参考文献	22
4.3 ^{99}Tc 分析のための $^{95\text{m}}\text{Tc}$ トレーサーの製造	28
4.3.1 はじめに	28
4.3.2 実験	28

4.3.3	結果と考察	29
	参考文献	30
4.4	放射性降下物の最近の状況	36
4.4.1	はじめに	36
4.4.2	研究の方法	36
4.4.3	最近の ⁹⁰ Sr、 ¹³⁷ Cs降下量	38
4.4.4	おわりに	42
	参考文献	43
4.5	プルトニウム-241	55
4.5.1	化学分離・測定法	55
4.5.2	測定例	57
	参考文献	58
4.6	キュリウム-242, 243, 244	73
4.6.1	化学分離・ α 線スペクトロメトリー	73
4.6.2	測定例	74
	参考文献	75
4.7	α 線放射体測定のための収率トレーサー	87
4.7.1	はじめに	87
4.7.2	アクチニド核種の α 線スペクトル測定	87
4.7.3	液体シンチレーション測定	95
	参考文献	97
4.8	クロスチェックについて	111

目 次

図4-1	食品と人体組織中の ³ H濃度	12
図4-2	食品中OBTのコンパートメントモデル	12
図4-3	東京と稜里における降下物中の ³ H濃度および日本で収集された ワイン中 ³ H濃度	13
図4-4	OBTコンパートメントモデルにおける平均滞留時間による 食品中の ³ H推定濃度	13
図4-5	Etnier等による4コンパートメントモデル	14
図4-6	Saito によるMTCモデル	14
図4-7	食品中OBTの平均滞留時間を1年として見積もった4コンパート メントモデルによる人体中のOBT推定濃度	15
図4-8	食品中OBTの平均滞留時間を3年として見積もった4コンパート メントモデルによる人体中のOBT推定濃度	15
図4-9	食品中OBTの平均滞留時間を1年として見積もったMTC モデルによる人体中のOBT推定濃度	16
図4-10	食品中OBTの平均滞留時間を3年として見積もったMTC モデルによる人体中のOBT推定濃度	16
図4-11	植物試料の燃焼装置	23
図4-12	二酸化炭素吸収装置	24
図4-13	炭素-14 のエネルギースペクトルと二酸化炭素飽和度の関係	24
図4-14	炭素-14 の計数効率及びバックグラウンド計数率と二酸化炭素 飽和度の関係	25
図4-15	二酸化炭素飽和度が異なる貝試料の炭素-14濃度	25
図4-16	大気中二酸化炭素の炭素-14 濃度	26
図4-17	植物試料の採取地点。原子力発電所周辺（鹿島町）と一般環境（太 田市、福岡市）	26
図4-18	原子力発電所周辺と一般環境で採取した植物中の炭素-14濃度	27
図4-19	$^{93}\text{Nb}(\alpha, xn)^{97-x}\text{Tc}$ 反応の励起曲線	32

図4-20-a	40MeV の α 線で照射したNbの γ 線スペクトル	33
図4-20-b	40MeV の α 線で照射したNbの γ 線スペクトル	34
図4-21	核種の相対的な生成量	35
図4-22	標準試料を構成する各地点降下物の重量割合	46
図4-23	^{137}Cs 濃度報告値の分布(正規確率プロット)	46
図4-24	気象研究所における放射性降下物の経年変動	47
図4-25	1990年代における放射性降下物の月間降下量	47
図4-26	成層圏滞留半減期と降下量予測	50
図4-27	降下量に対する成層圏フォールアウトと舞い上がりの寄与	50
図4-28	r/s 比の変動	50
図4-29	降下物中の $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比の変動	51
図4-30	降下物中の $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比頻度分布	51
図4-31	降水量と放射能沈着量との関係	52
図4-32	黄砂を含んだ大気移動	53
図4-33	日本における黄砂現象発現頻度の季節変化	53
図4-34	ベトナム ダラット市における降下物および大気中の放射性セシウム同位体の月間変動	54
図4-35	超ウラン元素の生成スキーム	59
図4-36	プルトニウム(^{241}Pu) 定量の分析・測定スキーム	62
図4-37	チェルノブイリ原発事故由来のhot particle中の化学分離・精製したPuフラクションについての β (^{241}Pu) と α -スペクトル	63
図4-38	スカンジナビアの種々の地域で採取した地衣類(Lichen)のPu同位体濃度の経年変化	64
図4-39	地衣類の各層での ^{241}Pu 濃度と $^{241}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$ 放射能比の推移	65
図4-40	陸土および海底土についての $^{241}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$ 放射能比の経年変化	66
図4-41	ピートおよび地衣類(Lichen)からの ^{241}Pu 分離・精製	69
図4-42	液シン(Quantulus 1220)によるPuおよびBGスペクトル	69
図4-43	イギリスのアイリッシュ海エスク湾での沿岸堆積物コア試料採取地点	71

図4-44	1961-1972年に採取した地衣類(Lichen)の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ に対するCm 同位体等の放射能比	77
図4-45	アイリッシュ海のエスク湾で採取した沿岸堆積物の $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ および $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ の経時変化	78
図4-46	環境試料中のアメリシウムとの分離・精製法	79
図4-47	アイリッシュ海の海底堆積物についてのCm精製フラクション および $^{244}, ^{243}\text{Cm}$ 標準溶液の α 線スペクトル	80
図4-48	チェルノブイル原発事故関連のhot particleの α 線スペクトル	81
図4-49	アイリッシュ海での沿岸表層堆積物の採取地点	82
図4-50	アイリッシュ海のエスク湾で採取した堆積物コアの超ウラン元素 濃度の深度分布	86
図4-51	アクチノイド α 放射性核種の質量数と α 線エネルギー	99
図4-52	アクチノイド元素の放射化学的分離の流れ図	100
図4-53	検出器のコリメーションによるエネルギー分解能の改善	101
図4-54	$^{239+240}\text{Pu}$ E_0 の低エネルギーテイルの低エネルギー側に 位置する他のピーク E_x への寄与	102
図4-55	吸収材厚みを変化にともなう $^{239+240}\text{Pu}$ 線源からの α 線スペクトル の劣化	103
図4-56	天然トリウム試料の α 線スペクトル	104
図4-57	トリウム分析で考慮されねばならない α 線放射体のエネルギー領域	105
図4-58	土壌より分離されたきれいな天然ウラン試料からの α 線スペクトル	105
図4-59	ウラン分析で考慮する必要がある α 線放射体のエネルギー領域	106
図4-60	ネプツニウム試料の α 線スペクトル	106
図4-61	ネプツニウム分析で考慮する必要がある α 線放射体のエネルギー 領域	107
図4-62	プルトニウム試料の α 線スペクトル	107
図4-63	プルトニウム分析で考慮する必要がある α 線放射体のエネルギー領 域	108
図4-64	アイリッシュ海からの海草試料中のAmとCmの α 線スペクトル	108

図4-65	アメリシウムとキュリウムで分析で考慮する必要のある α 線放射体のエネルギー領域	109
図4-66	放射平衡に達した ^{226}Ra 試料を含むシンチレーションからのスペク トル	110

表 目 次

表4-1	ニオブとモリブデンの同位体組成	31
表4-2	^{95m}Tc を生成する核反応	31
表4-3	γ 線スペクトルに検出された放射性核種の γ 線エネルギーと放出率	31
表4-4	放射性降下物標準試料に含まれる核種濃度報告値	46
表4-5	放射性降下物の月間降下量	48
表4-6	放射性降下物をもたらす各過程の定性的特徴	49
表4-7	関東地方の表層土(0-5cm)の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 濃度とその比	49
表4-8	環境中の超ウラン元素の推定存在量(1998年1月現在)	60
表4-9	環境中で検出される(可能性がある)超ウラン元素諸核種	61
表4-10	液体シンチレーションカウンターによる β (^{241}Pu)と α 計測条件	62
表4-11	Pu電着線源を用いての液シン測定効率、BGおよびFOMの比較	63
表4-12	海底土、陸土中の $^{239, 240}\text{Pu}$ 濃度と $^{241}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$ 放射能比	66
表4-13	松葉、ホンダワラ中の $^{239, 240}\text{Pu}$ 濃度と $^{241}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$ 放射能比	67
表4-14	チェルノブイリ原発事故関連試料中のPu濃度および放射能比	67
表4-15	キエフ周辺で採取した土壌からのhot particle中のPu同位体の濃度	68
表4-16	キエフ周辺で採取した植物中のPu同位体の濃度(1986年での値)	68
表4-17	地衣類の ^{241}Pu 放射能濃度(1986年5月)	70
表4-18	チェルノブイリ原発事故からの $^{241}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$ 放射能比、 ^{241}Pu 蓄積量および2059年における $^{241}\text{Am}/^{239, 240}\text{Pu}$ 放射能比の推定	70
表4-19	エスク湾での堆積物コア-Cについての ^{237}Np およびPu同位体濃度	72
表4-20	エスク湾での堆積物コア-Cについての放射能比	72
表4-21	チェルノブイリ原発事故関連のhot particleの測定結果	83
表4-22	チェルノブイリ原発事故関連のhot particleのアクチニド組成	83
表4-23	セラフィールド核燃料再処理工場からの放射性核種の年間放出量	84
表4-24	アイリッシュ海の沿岸表層堆積物中の超ウラン元素濃度	85
表4-25	各種 α 線放射体の検出法の比較	98
表4-26	分析の質の管理のための重要事項(例)	113

1. はじめに

現在、我が国初の核燃料サイクル施設の本格的稼働を間近に控えており、環境中における ^3H 、 ^{14}C 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{99}Tc 、 $^{238, 239, 240}\text{Pu}$ 、 $^{243, 244}\text{Cm}$ 等の長半減期放射性核種の濃度レベルと環境中での挙動の把握が急務とされている。これらの目的を達成させるためには、信頼のできる分析法の確立はもとより、分析機関の分析技術水準の維持、向上が重要である。また、ICP-質量分析装置等の最新機器が長半減期核種の測定に広く普及したことを考慮した分析法の改良も必要となっている。

特に、放射性核種の環境中での挙動の把握は、人体への移行経路を決定でき、被ばく線量推定にとって有用であることから、分析法には環境における存在状態が推定できる方法であることも望まれている。

このような現状に鑑み、長半減期放射性核種の定量分析法の確立及び環境中における長半減期放射性核種の濃度レベル、環境移行等を目的とした総合的な調査研究を実施した。

本調査研究を実施するにあたり、「長半減期放射性核種の定量法等に関する検討委員会」(委員長 橋本哲夫 新潟大学教授)を設置し、調査内容の評価・検討を行った。

2. 調査研究目的

再処理施設に起因する長半減期放射性核種の標準的な分析法を確立し、各種環境試料（陸上及び海洋環境試料）中の濃度レベルや検出下限等を確認しておくことは、核燃料サイクル施設から環境中へ放出される放射性核種の環境への影響評価法の高度化を図る上で重要なことである。

環境試料中の放射性核種の標準的な分析法としては、科学技術庁が制定している分析・測定法マニュアルがあるが、再処理施設に起因する核種分析法として整理されていない核種も多い。また、放射性核種の定量には、核種から放出される放射線を測定するのが一般的な方法として従来より採用されているが、半減期10⁴年以上の核種の定量にはそれらの原子数を直接測定して行うICP-質量分析装置を利用した方法が最近用いられ始めた。さらに、今後開発される分析法には、環境への影響を評価する場合に必要なとされる放射性核種の化学形など、存在状態をも把握できることが望まれている。

このような、環境放射能分析法開発への学問的、社会的な要請を鑑み、再処理施設に係る長半減期放射性核種のモニタリング手法についての総合的な調査のみならず、長期的観点から長半減期放射性核種の環境中における挙動に関する調査も合わせて実施することを目的とした。

3. 概要

3.1 調査研究概要

本調査研究は、斯界の専門家からなる「長半減期放射性核種の定量法等に関する検討委員会」を設けて実施した。本年度は3年間行われる本調査研究の初年度に当たり、モニタリング手法としての分析法、環境中の核種濃度レベル及び核種の環境移行に関する文献調査、クロスチェックの方法の策定を行った。

本年度の主な分担は、以下の通りである。

- | | | |
|---|-------|--------------|
| ・ ^3H について | | 久松委員（金沢大学） |
| ・ ^{14}C の測定について | | 百島委員（九州大学） |
| ・ $^{95\text{m}}\text{Tc}$ 製造について | | 百島委員（九州大学） |
| ・ ^{90}Sr と ^{137}Cs について | | 五十嵐委員（気象研究所） |
| ・ ^{241}Pu について | | 山本委員（金沢大学） |
| ・ $^{242}, ^{243}, ^{244}\text{Cm}$ について | | 山本委員（金沢大学） |
| ・ 定量分析のためのトレーサー | | 橋本委員長（新潟大学） |

3.2 調査研究検討委員会

3.2.1 調査研究期間

平成7年8月16日 ～ 平成8年3月8日

3.2.2 委員会開催日および議題

- | | |
|-------------|---|
| ・ 第一回委員会開催日 | 平成7年11月10日（金） |
| 議題 | (1) 調査項目について
(2) クロスチェックについて
(3) その他 |
| ・ 第二回委員会開催日 | 平成8年3月6日（水） |
| 議題 | (1) 平成7年度報告書案について
(2) クロスチェックについて
(3) その他 |

4. 調査研究成果

4.1 トリチウム人体代謝モデルの検証に環境データを用いる際の問題点

4.1.1 はじめに

トリチウムの人体代謝モデルは自由水(FWT)の摂取のみを考え、有機結合型トリチウム(OBT)の摂取については触れないモデルが主流であった¹⁾。しかし、最近では、OBTが、FWTに比較して、体内のOBT画分に取り込まれやすいこと、および、体内OBTの生物学的半減期が自由水に比較して長いという動物実験結果を考慮し²⁾⁻⁹⁾、OBTの摂取を織り込むモデルが提唱されている。そのような、モデルとして、Etnierら¹⁰⁾によるいわゆる4コンパートメントモデルとSaito¹¹⁾による改良3コンパートメントモデルがあげられる。

これらのモデルの検証のため、食品および人体臓器中のフォールアウトトリチウム濃度が使用される場合があり^{10)、11)}、その場合、食品と人体の³Hが平衡になっていると仮定して、フォールアウト³Hの測定結果が使用されている。しかしながら、現実には、環境中のトリチウムレベルは1960-80年代にかけて大きく変化しており、平衡仮定が成り立つかどうかは不明である。そこで、平衡仮定が成り立たない場合には代謝モデルによる推定値にどのような影響があるのかを検討した結果を紹介する。

4.1.2 食品・人体組織中フォールアウトトリチウムのデータ

代謝モデルの検証のために用いられるフォールアウトトリチウムの食品と人体組織のデータを図4-1に示した。1970年代のBogenによるNew Yorkでのデータ¹²⁾⁻¹⁴⁾、イタリアのグループによる測定値¹⁵⁾⁻¹⁷⁾、およびHisamatsuら¹⁸⁾⁻²⁴⁾による秋田市での結果である。これらの内、イタリアのデータはOBT濃度がFWTに比較して極端に高く、不純物による化学クエンチングなどの分析上の問題もあるのではないと思われる。Bogenらの値はOBT濃度がFWTに比較して数倍高い。彼らは自由水、乾燥試料燃焼水の測定に当たって電解濃縮を行っており、少なくとも化学クエンチングの問題は少ないと考えられる。一方、Hisamatsuらは秋田市の食品・人体組織中のトリチウムを分析し、OBT濃度はFWT濃度と大差はないことを報告してきた。

さて、イタリアのデータはさておき、これらのデータを代謝モデルの検証に用いよう

とする際には、食品・人体中の濃度が1970から1980年代にかけて変化していることに注意しなければならない。これは、1963年をピークとする降水中のトリチウム濃度変化によるものであり、環境トリチウム濃度全般が大きく変化している。人体中代謝モデルはいくつかのコンパートメントを組み合わせて作られるが、コンパートメント中のトリチウム平均滞留時間が長いと、食品や飲料水中のトリチウム濃度と平衡が達成されない場合が生じる。つまり、平衡に達する前に食品などのトリチウム濃度が変化してしまうことになる。そのような環境下で平衡を仮定して代謝モデルの検証を行うことには無理があると言えよう。環境中のトリチウム濃度が減少中にもかかわらず平衡を仮定することは、過去の高い濃度の食品の摂取を全て無視するということと同様である。

そこで、代謝モデルへ入力する食品中のトリチウム濃度を実際の変化に合わせて変え、ダイナミックに人体中のトリチウム濃度を計算する必要がある。ダイナミックな計算のためには食品中のトリチウム濃度が核実験フォールアウトの降下があった全期間に渡って判明していることが望ましい。しかし、実際にはそのようなデータは存在しないため、適当なモデルを作って推定する必要がある。そのようなモデルとして、図4-2 に示した簡単なモデルを作成している²⁴⁾。飲料水としては河川水を考え、河川水の³H濃度を推定する。降水の³Hは東京と稜里においてIAEA²⁵⁾-³⁴⁾により長期にわたって測定されているので、これを用い、それ以前についてはTakahashi³⁵⁾によるワインのデータを代用する。それらのデータは図4-3 に示した。このモデルの目的は秋田地区における³Hの挙動を明らかにすることであり、本来であれば、秋田地区の降水中の³H濃度を入力値として用いられるべきであるが、適当なデータがないため、そのまま使用されている。出力としては河川水を水源としている秋田市の水道水中の³H濃度を用いられているが、秋田市における水道水の測定値は図4-3 に示されるような短い期間しかないため、1960、70年代では誤差が大きいと思われる。

人体代謝モデルへの入力として、食餌中のFWT濃度ばかりではなく、OBT濃度のデータも必要である。図4-2 に示したモデルでは、OBTは土壤水のコンパートメントに接続している。しかし、OBTコンパートメントは土壤水コンパートメントに比べて量が少ないため、OBTコンパートメント中のトリチウムは土壤水コンパートメント中のトリチウム濃度に影響を与えないと仮定されている。このOBTコンパートメントの平均滞留時間を実測値から求めなければならないが、同一地域における長期に渡るデータは存在せず、1980年代の秋田市のデータでは食餌試料中のFWTとOBTが平衡に近いために平均滞留時

間を求めることはできない。しかし、穀物は前年に収穫されたものを摂取することを考えると1年程度の平均滞留時間を与えることは問題ないと思われる。また、3年程度の平均滞留時間があれば、1970年代でOBTの比放射能がFWTの数倍となり、図4-1に示されたようなNew Yorkにおけるデータと矛盾しなくなる。そこで、OBT平均滞留時間が1年と3年の場合についてOBT濃度の計算が行なわれている。計算値と秋田市における実測値図4-4に示した。

食餌中の自由水は全て土壌水に由来しているとしているが、食餌中の自由水と有機型水素の代謝分解に伴う水だけではヒトの水摂取量に足りない。そのため、それ以外の水は飲料水として河川水から得ていると仮定し、食餌中の自由水と飲料水の比はHisamatsuの実測値を参考として、0.36 : 0.64 とし、水摂取量はICRP標準人³⁶⁾の値を標準日本人³⁷⁾の体重で補正して用いられた。

4.1.3 人体代謝モデル

検討されたモデルはEtnierらによるいわゆる4コンパートメントモデル(1984)とSaitoによる改良3コンパートメントモデル(1992)である。これらのモデルの概要を図4-5と図4-6に各々示した。4コンパートメントモデルは3つの有機結合型水素(OBH)コンパートメントを含み、その1つには食餌中のOBHが直接移行する。また、450日と長い生物学的半減期を持つコンパートメントが組み込まれている。Trevisら³⁸⁾によると、4コンパートメントモデルは図4-1に示したイタリアのデータを説明できるとしている。Saitoによる改良3コンパートメントモデルは2つのOBHコンパートメントがあり、やはり、食餌中OBHの直接移行が考慮されている。また、生物学的半減期が480日と長いコンパートメントが入れられているが、大きさは4コンパートメントモデルの約1/2である。

4.1.4 計算結果

前述の食餌中³H濃度が4コンパートメントモデルに入れられ、人体中のFWTとOBT濃度が計算されている。食餌中OBTの平均滞留時間を1年と3年とした場合の人体中OBT濃度を各々図4-7と図4-8に示した。これらの図中には人体中OBTが摂取されているトリチウムと平衡になっていると仮定した場合とダイナミックな関係にあるとした場合とをプロットしてある。ダイナミックな計算では、摂取トリチウム量が増加する場合には

平衡値よりもOBT濃度が低くなり、逆に減少する場合には高くなる。食餌中OBT濃度は1960年代から70-80年代にかけて減少している。食餌中OBTコンパートメントの平均滞留時間を1年とした場合、図4-7に示したように、ダイナミックな計算値は平衡値と比較して、最大で1.9倍の濃度となる。食餌中OBTコンパートメントの平均滞留時間を3年と取った際には、図4-8に見られるように、ダイナミックな結果と平衡値との差は少なく、最大で1.5倍である。

次に、Saitoによる改良3コンパートメントモデルの結果を示す。食餌中のOBTコンパートメント平均滞留時間を1年と3年にした場合の計算値を図4-9と図4-10に各々プロットした。これらに見られるように、Saitoのモデルでは平衡値とダイナミックな計算値の差は少なく、食餌中の平均滞留時間が1年の場合には最大で1.4倍、3年の際には1.3倍であった。これは、Saitoのモデルが4コンパートメントモデルより生物学的半減期が長いコンパートメントを含むものの、コンパートメント内の水素量が約1/2であることに由来する。つまり、より平衡に達し易いために差が大きくならなかったものである。

2つのモデルについての計算結果を示したが、これらに見られるように、人体代謝モデルの評価や検証に当たって、フォールアウトトリチウムのデータを用いる際にはダイナミックな計算を行わないと思われ誤差を招くことがある。しかし、ダイナミックな計算のためには適切な環境モデルが、必要であり、今後、環境中でのFWTからOBTへの移行、環境中でのOBTの挙動を含んだモデルの開発が重要と思われる。また、これらの環境モデルのためには信頼性の高い食品・人体中³Hの分析法の検討と相互比較などが望まれる。

参考文献

- 1) National Council on Radiation Protection and Measurements, Tritium in the environment, NCRP-report No. 62, NCRP, 1979.
- 2) Kirchmann, R., Charles, P., Bruwaene, R. V. et al. Distribution of tritium in the different organs of calves and pigs after ingestion of various tritiated feeds. Curr. Topics Radiat. Res. Quarterly, 12, 291-312, 1977.
- 3) Komatsu, K., Okumura, Y., Sakamoto, K., Radiation dose to mouse liver cells from ingestion of tritiated food or water, Health Phys., 58, 625-629, 1990

- 4) Pietrzak-Flis, Z, Radwan, I., Indeka, L., Tritium in rabbits after ingestion of freeze-dried tritiated food and tritiated water, *Radiat. Res.*, 76, 420-428, 1978
- 5) Pietrzak-Flis, Z, Radwan, I., Major, Z, Kowalska, M., Tritium incorporation in rats chronically exposed to tritiated food or tritiated water for three successive generations, *J. Radiat. Res.*, 22, 434-442, 1982.
- 6) Rochalska, M., Szot, Z. The incorporation of organically-bound tritium of food into some organs of the rat. *Int. J. Radiat. Biol.*, 31, 391-395, 1977.
- 7) Takeda, H., Arai, K. Iwakura, T., Comparison of tritium metabolism in rat following single or continuous ingestion of tritium labeled wheat versus tritiated water, *J. Radiat. Res.*, 26, 131-139, 1989
- 8) Takeda, H., Incorporation and distribution of tritium in rats after chronic exposure to various tritiated compounds, *Int. J. Radiat. Biol.*, 59, 843-853, 1991
- 9) Takeda, H., Iwakura, T., Incorporation and distribution of tritium in rats exposed to tritiated rice or tritiated soybean. *J. Radiat. Res.*, 33, 309-318, 1992.
- 10) Etnier E. L.; Travis C. C.; Hetrick D. M. Metabolism of organically bound tritium in man. *Radiat. Res.* 100:487-502; 1984.
- 11) Saito, M., A modified three-compartment model for tritium metabolism in man. *Radiat. Protec. Dosi.* 42, 17-24, 1992.
- 12) Bogen D. C., Henkel C. A., White C., Welford G. A. Tritium intake in New York City. In *Tritium*. Phoenix: Messenger Graphics; TID-CONF-710809, 39-646, 1973
- 13) Bogen D. C.; Welford G. A. Fallout tritium distribution in the environment. *Health Phys.* 30:203-208, 1976.
- 14) Bogen D. C.; Welford G. A., White C. G. Tritium distribution in man and his environment. In *Behavior of Tritium in the Environment*. Vienna: IAEA; STI/PUB/498, 567-574., 1979
- 15) Belloni, P., Clemente, G. F., Di Pietro, S., Ingraio, G., Tritium levels in

- blood and urine samples of the members of the Italian general population and some exposed subjects. *Radiat. Protec. Dosi.*, 4, 109-113, 1983.
- 16) Belloni, P., Clemente, G. F., Di Pietro, S., Ingraio, G.: Radiation protection, European seminar on the risks from tritium exposure, EUR 9065, 51-53, Office for Official Publications of the European Communities, Luxembourg, 1984
 - 17) Clemente G. F., Belloni P., Di Pietro S., Santori G., Santaroni G. P. Tritium and plutonium content of the Italian diet and transfer to man. In *Biological Implications of Radionuclides Released from Nuclear Industries*, Vol. II. Vienna:IAEA, STI/PUB/522, 257-264, 1979.
 - 18) Hisamatsu, S., Takizawa, Y., Abe, T., Katsumata, T. Fallout ^3H ingestion in Akita, Japan. *Health Phys.* 53:287-293, 1987.
 - 19) Hisamatsu, S., Takizawa, Y., Itoh, M., Ueno, K., Katsumata, T. Fallout ^3H in human tissue at Akita, Japan. *Health Phys.* 57:559-564, 1989a.
 - 20) Hisamatsu, S., Takizawa, Y., Katsumata, T., Itoh, M., Ueno, K., Sakanoue, M. Further study on fallout ^3H ingestion in Akita, Japan. *Health Phys.* 57:565-570, 1989b.
 - 21) Hisamatsu, S., Hashimoto, T., Takizawa, Y. Further study of tritium concentration in some European foods. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters.* 146:245-253, 1990.
 - 22) Hisamatsu, S., Ohmura, T., Takizawa, Y., Inoue, Y., Itoh, M., Ueno, K., Sakanoue, M. Tritium level in Japanese diet and human tissue. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles* 156:89-102, 1992a.
 - 23) Hisamatsu, S., Katsumata, T., Takizawa, Y. Tritium concentration in foods and human tissues: Estimation of mean residence times of organically-bound tritium in costal cartilage and sternum. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles* 161:455-463, 1992b.
 - 24) Hisamatsu, S., Katsumata, T., Takizawa, Y. Tritium concentration in Akita City diet. *Health Phys.* 63:393-397, 1992c.
 - 25) International Atomic Energy Agency. Environmental isotope data No. 1: World survey of isotope concentration in precipitation (1953-1963). Vienna:IAEA;

- Technical reports series No. 96; 1969.
- 26) International Atomic Energy Agency. Environmental isotope data No. 2: World survey of isotope concentration in precipitation (1964-1965). Vienna:IAEA; Technical reports series No. 117; 1970.
 - 27) International Atomic Energy Agency. Environmental isotope data No. 3: World survey of isotope concentration in precipitation (1966-1967). Vienna:IAEA; Technical reports series No. 129; 1971.
 - 28) International Atomic Energy Agency. Environmental isotope data No. 4: World survey of isotope concentration in precipitation (1968-1969). Vienna:IAEA; Technical reports series No. 147; 1973.
 - 29) International Atomic Energy Agency. Environmental isotope data No. 5: World survey of isotope concentration in precipitation (1970-1971). Vienna:IAEA; Technical reports series No. 165; 1975.
 - 30) International Atomic Energy Agency. Environmental isotope data No. 6: World survey of isotope concentration in precipitation (1972-1975). Vienna:IAEA; Technical reports series No. 192; 1979.
 - 31) International Atomic Energy Agency. Tritium in some typical ecosystems. Vienna:IAEA; Technical reports series No. 207; 1981.
 - 32) International Atomic Energy Agency. Environmental isotope data No. 7: World survey of isotope concentration in precipitation (1976-1979). Vienna:IAEA; Technical reports series No. 226; 1983.
 - 33) International Atomic Energy Agency. Environmental isotope data No. 8: World survey of isotope concentration in precipitation (1980-1983). Vienna:IAEA; Technical reports series No. 264; 1986.
 - 34) International Atomic Energy Agency. Environmental isotope data No. 9: World survey of isotope concentration in precipitation (1984-1987). Vienna:IAEA; Technical reports series No. 311; 1990.
 - 35) Takahashi, T.; Nishida, M.; Ohno, S.; Hamada, T. Tritium concentration in wine, rain and ground water. Radioisotopes 18: 32-35; 1969.
 - 36) International Commission on Radiological Protection, Report of the Task

Group on Reference Man, ICRP Publication 23, Oxford:Pergamon Press, 1974.

37) Tanaka G., Kawamura H. and Nakahara Y.: Reference Japanese man-I. Mass of organs and other characteristics of normal Japanese, Health Phys.

36, 333-346, 1979.

38) Travis C. C.; Etnier E. L.; Hetrick D. M. Validation of a metabolic model for tritium. Radiat. Res. 100, 503-509, 1984.

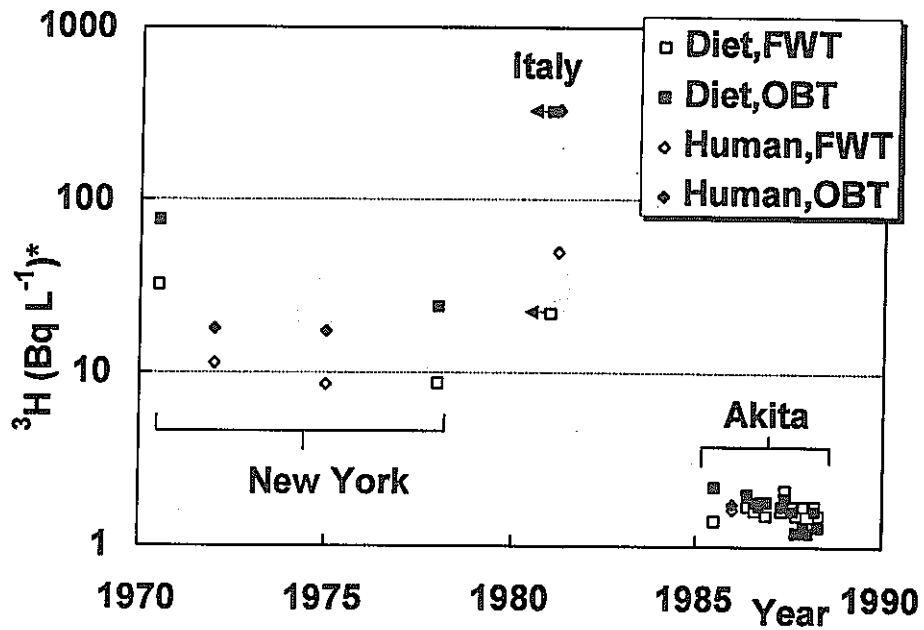
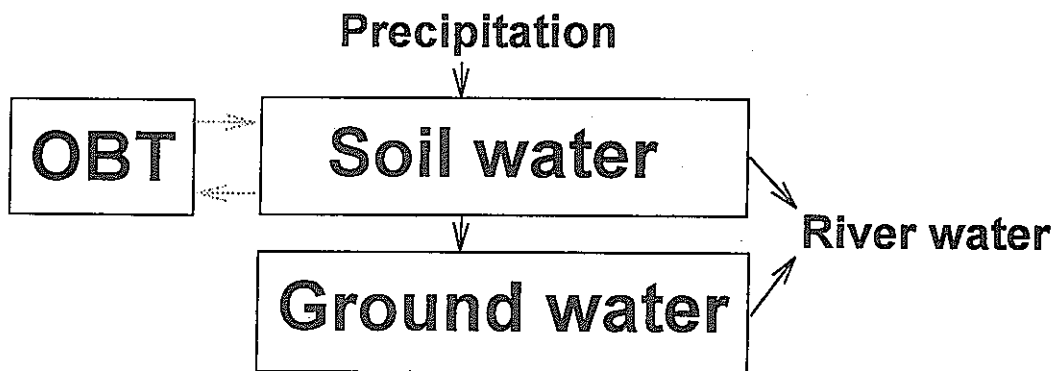


Fig. ^3H concentrations in diet and human soft tissue samples.
* Bq L-combustion water $^{-1}$ for OBT

図4-1 食品と人体組織中の ^3H 濃度 * OBT : Bq L-燃焼水 $^{-1}$



Mean residence time
Soil water = 1 y Ground water = 20 y
Volume ratio of ground water/soil water = 5.6

Fig. Compartiment model for OBT in diet¹⁴⁾

図4-2 食品中OBTのコンパートメントモデル

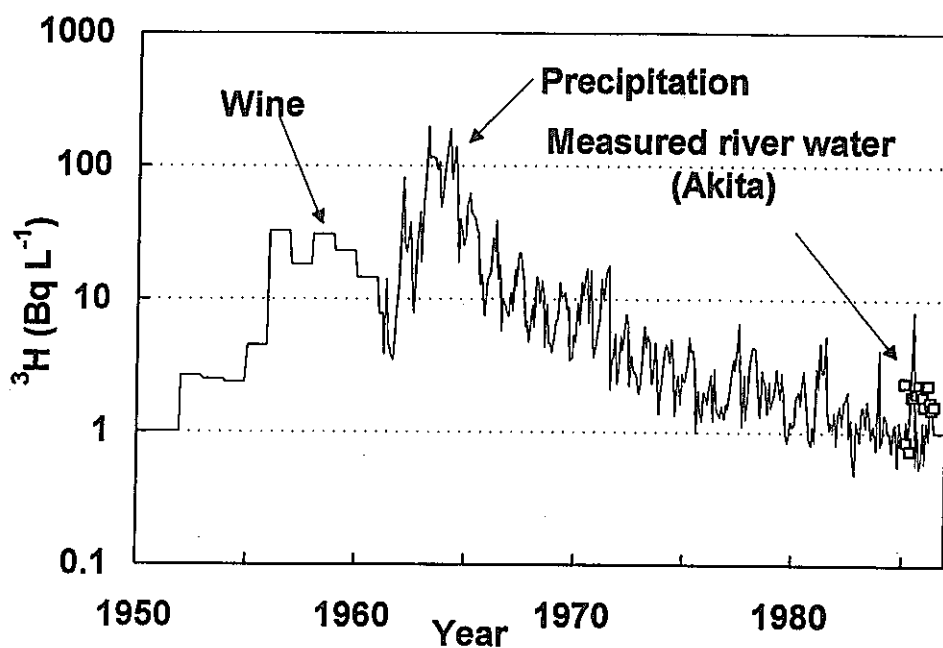


Fig. Tritium concentration of precipitation in Tokyo and Ryori (IAEA) as well as that in wine collected in Japan (Takahashi 1969).

図4-3 東京と稜里における降下物中の³H濃度および日本で収集されたワイン中の³H濃度

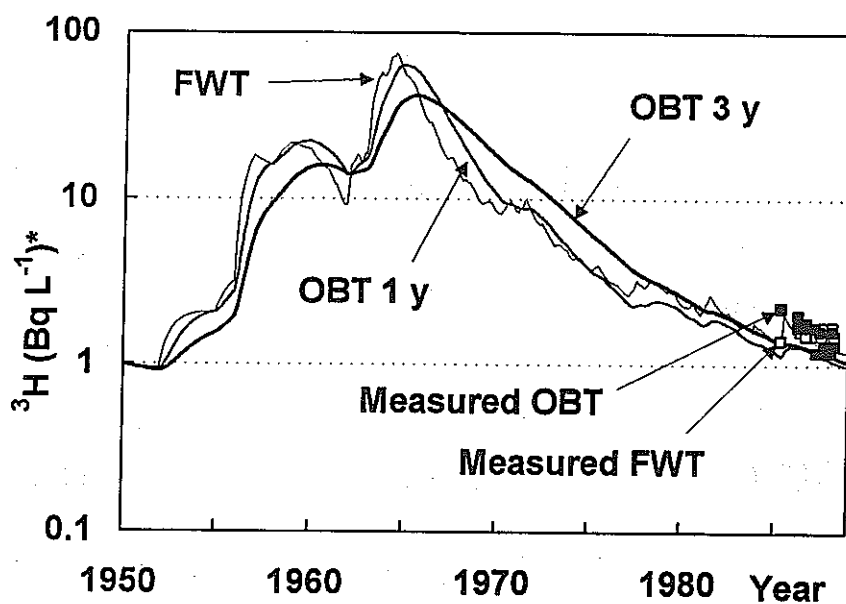


Fig. Estimated ³H concentrations in diet with arbitrary mean residence time of OBT compartment.

* Bq L-combustion water⁻¹ for OBT

図4-4 OBTコンパートメントモデルにおける平均滞留時間による食品中の³H推定濃度

* OBT : B q L-燃焼水⁻¹

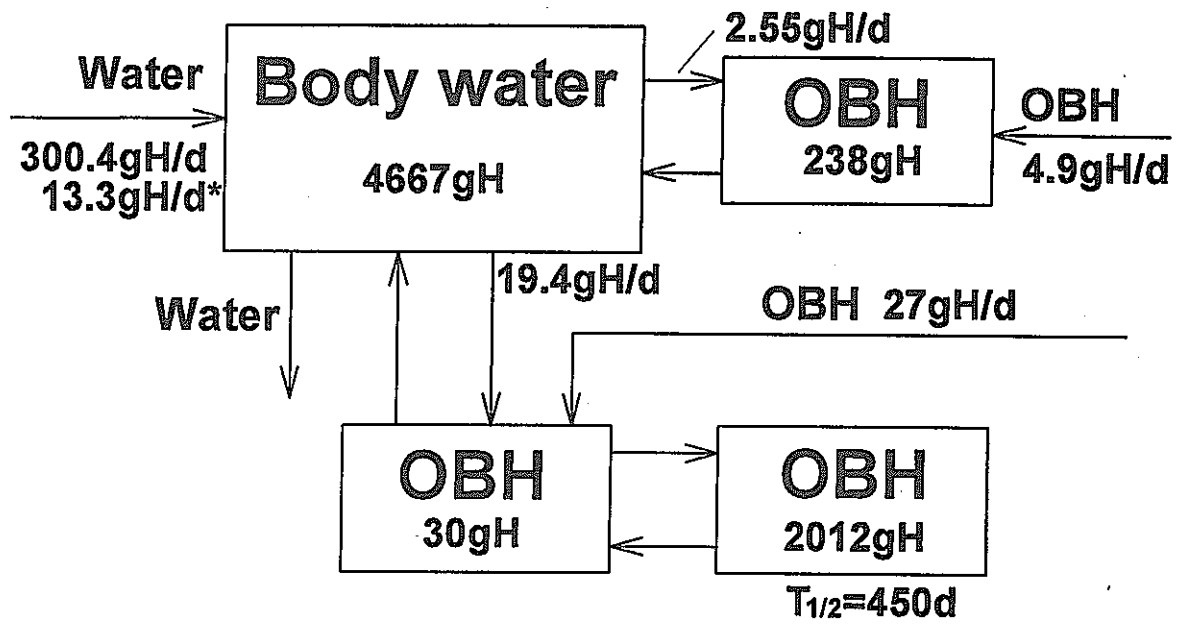


Fig. Four-compartment model by Etnier et al.²⁾.
 * prompt oxidation of dietary OBH

図4-5 Etnier等による4コンパートメントモデル * 食品中OBHの即時酸化

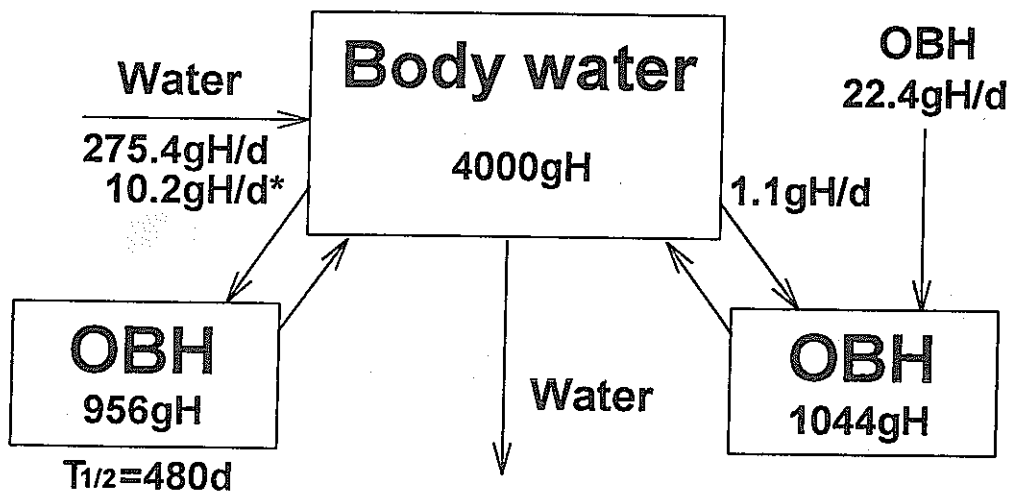


Fig. MTC model by Saito³⁾.
 * prompt oxidation of dietary OBH

図4-6 Saito によるMTCモデル * 食品中OBHの即時酸化

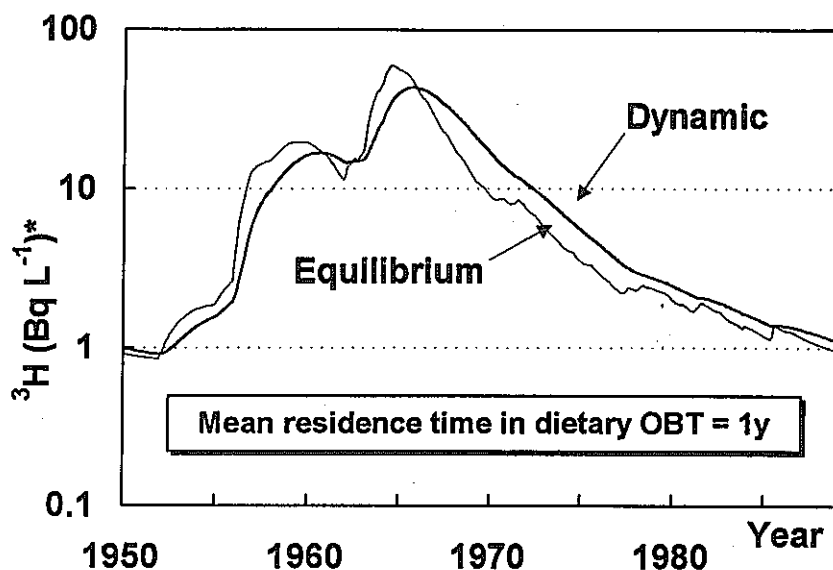


Fig. Estimated OBT concentration in human body with four-compartments model assuming 1 y as a mean residence time of dietary OBT.

* Bq L-combustion water⁻¹

図4-7 食品中OBTの平均滞留時間を1年として見積もった4コンパートメントモデルによる人体中のOBT推定濃度 * Bq L-燃焼水⁻¹

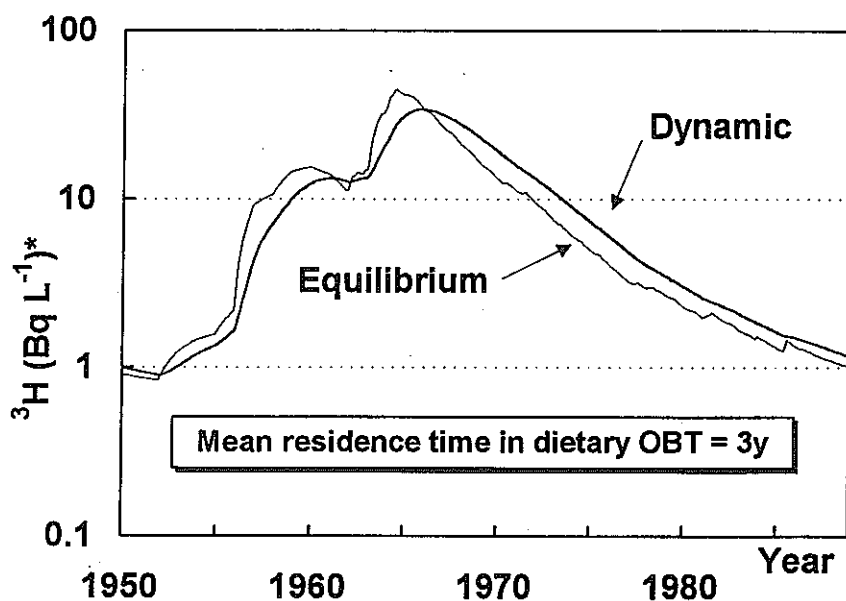


Fig. Estimated OBT concentration in human body with four-compartments model assuming 3 y as a mean residence time of dietary OBT. * Bq L-combustion water⁻¹

図4-8 食品中OBTの平均滞留時間を3年として見積もった4コンパートメントモデルによる人体中のOBT推定濃度 * Bq L-燃焼水⁻¹

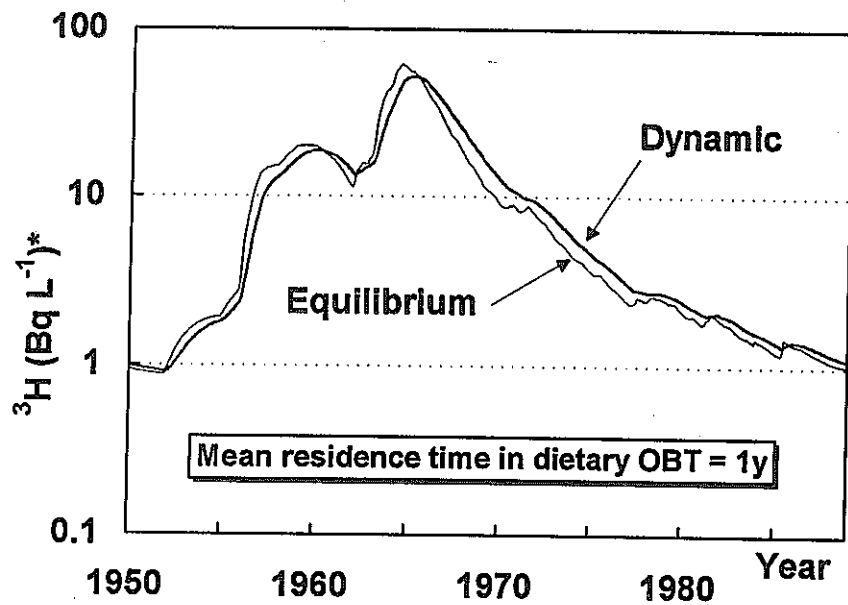


Fig. Estimated OBT concentration in human body with MTC model assuming 1 y as a mean residence time of dietary OBT.

* $\text{Bq L-combustion water}^{-1}$

図4-9 食品中OBTの平均滞留時間を1年として見積もったMTCモデルによる
人体中のOBT推定濃度 * Bq L-燃焼水^{-1}

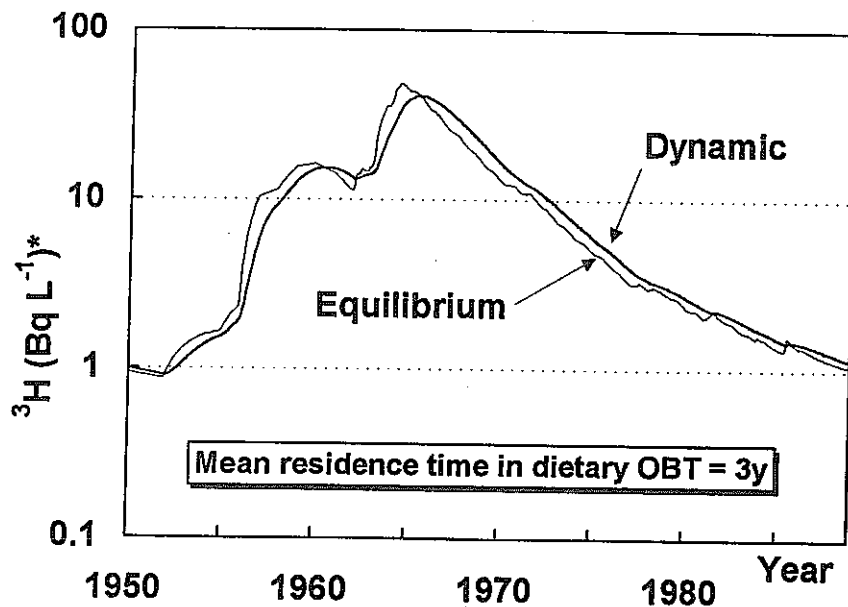


Fig. Estimated OBT concentration in human body with MTC model assuming 3 y as a mean residence time of dietary OBT.

* $\text{Bq L-combustion water}^{-1}$

図4-10 食品中OBTの平均滞留時間を3年として見積もったMTCモデルによる
人体中のOBT推定濃度 * Bq L-燃焼水^{-1}

4.2 二酸化炭素吸収剤を用いる環境中の炭素-14測定法

4.2.1 はじめに

^{14}C (半減期5730年) は純ベータ線放出核種であることから、その測定はもっぱら液体シンチレーションカウンターを用いて行われている。液体シンチレーションカウンターを利用して環境試料中の ^{14}C を測定するためには、試料中の炭素を放射能測定に適した化学形に変えることが必要である。現在、用いられている化学形はいくつかあるが、液体シンチレーション計測に最も有利な化学形はベンゼンであろう。ベンゼンに導入される炭素はベンゼン一分子あたり6個と多く、また ^{14}C を高計数効率で測定できる。そして、検出限界を規定する要因の一つであるバックグラウンド計数が低いことも有利な点である。そのため、ベンゼン合成法による ^{14}C 計測は、高い測定精度が求められる ^{14}C 年代測定に用いられている。しかし、ベンゼン合成には時間と熟練を要することから、数多くの試料を分析する必要がある場合はベンゼン合成法は必ずしも適当とは言えない。また、環境モニタリングなど、ベンゼン計測で得られる測定精度を必要としない場合もあると考えられる。一般的に分析精度は分析の目的に応じて設定されるべきもので、その目的に見合う精度を有する分析法を我々は選択して利用すればよい。

ここでは筆者が行った二酸化炭素吸収剤を用いる環境中の ^{14}C 測定法¹⁾の概要を述べ環境試料へ応用した例²⁾を紹介する。二酸化炭素吸収法はベンゼン合成法に比べると測定精度は劣っているが試料調製は格段に容易である。現在の ^{14}C レベルの評価を目的とすれば二酸化炭素吸収法による ^{14}C の測定精度は十分なものである。

4.2.2 実験

(1) 二酸化炭素吸収剤

二酸化炭素はアミン系の物質と反応してカルバメイトを作り化学的に固定される³⁾。代表的な二酸化炭素吸収試薬としてモノエタノールアミンやフェネチルアミンがあるが、これらの試薬はトルエンベースのシンチレータと混和しないので、放射能測定試料とするためにはメタノールなどを加える必要がある。従って、上記の試薬に二酸化炭素を吸収させて放射能測定を行うためには、二酸化炭素の吸収量やメタノールの添加量など基礎的な条件をあらかじめ調べておくことが必要となる。しかし、 ^{14}C 測定のために市販されている二酸化炭素吸収試薬と専用のシンチレータを利用すると、予備実験の必要が

なく、だれでも一定の精度を持つ放射能測定試料の調製が可能となる。ここでは、パッカー社から発売されている二酸化炭素吸収試薬のCARBO-SORB Eと専用のシンチレータのPERMAFLUOR Eを使用した。この試薬は1 mlあたり57.6mgの二酸化炭素を吸収することができる。

(2) 試料の前処理

試料中の炭素はあらかじめ二酸化炭素に変換し炭酸カルシウムとして回収しておく。植物試料は図4-11の装置で燃焼し、発生した二酸化炭素は2連のアルカリ溶液に吸収させる。二酸化炭素を吸収したアルカリ溶液は、塩化アンモニウムを加えpHを10.5に調整してから、塩化カルシウムを加え炭酸カルシウムの沈殿を作る⁴⁾。炭酸カルシウムの沈殿はろ過、乾燥してデシケータに保存する。貝、大理石などの試料については、酸分解して発生した二酸化炭素をアルカリ溶液に吸収させ、その後は植物と同じ方法で炭酸カルシウムの沈殿として回収する。大気中の二酸化炭素は、直接大気をアルカリ溶液に通して吸収させる。いずれにしても、試料中の炭素は一度二酸化炭素に変換する。この操作はベンゼン合成法でも同じであり、試料の複雑なマトリックスから炭素を取り出し精製する有効な方法である。

(3) 二酸化炭素吸収装置と吸収操作

二酸化炭素吸収剤への二酸化炭素の固定は化学量論的である。すなわち吸収剤が二酸化炭素を吸収する前後の重さから、固定された炭素量を決定することができる。重量計測により固定された二酸化炭素を求める場合、吸収操作中に重量測定に誤差を生じるようなこと、例えば水分などの不純物の混入や吸収剤の損失などは避けなければならない。そこで図4-12に示すような吸収装置を考案した。そして以下に述べるような操作により放射能測定試料を調製した。

二酸化炭素吸収剤60mlを窒素雰囲気下で200mlの丸底フラスコに入れフラスコごと重量を測定する。試料から調製した炭酸カルシウム(28.8g)と加熱脱気したイオン交換水180mlを入れた三つ口の300ml丸底フラスコをリービッヒ冷却管(1~2℃の水を循環)、コールドトラップ(ドライアイス)、シリカゲル管(直径7mm、長さ5cm)を介して二酸化炭素吸収剤を入れた200mlの丸底フラスコに接続する。三つ口の一つには炭酸カルシウムを分解させるための H_3PO_4 を入れた分液ロートを取り付ける。液体窒素で

200mlの丸底フラスコを冷却し二酸化炭素吸収剤を凍らせたあと、三つ口に接続したコック A から真空ポンプで系内の気体を排気する。二酸化炭素吸収剤が室温に戻ったら分液ロートのリン酸を少しずつ滴下して炭酸カルシウムを分解し二酸化炭素を発生させる。マグネチックスターラーで二酸化炭素吸収剤と炭酸カルシウム懸濁液をかくはんしながら二酸化炭素の分解と吸収を同時に進める。コック A に取り付けられたゴム風船の膨らみ具合を見ながらリン酸の滴下速度を調節し、吸収装置内の圧力が高くないよう注意する。二酸化炭素の吸収は発熱反応であり反応が進むに連れて二酸化炭素吸収剤は熱くなっていく。炭酸カルシウムの分解は炭酸カルシウム懸濁液が透明になった時点をもって終点とする。吸収が終わり二酸化炭素吸収剤が室温に戻ったら 200ml 丸底フラスコを装置からはずし再び重量を測定する。シンチレーター溶液 60ml を 200ml 丸底フラスコに加えよく混合してから、その溶液 100ml をあらかじめ重さを測定したテフロン製バイアルに入れ、再び重量を測定して放射能測定用試料とする。

上に述べた条件で二酸化炭素を吸収させた場合、二酸化炭素吸収剤の重さは約 12 g 増加することになるので、mg の精度で重量を測定すれば誤差は 0.008% 程度である。導入した炭素量は重量増加から十分評価できる。

(4) 計数効率とバックグラウンド計数率

^{14}C 標準物質である NBS シュウ酸 (NBS SRM4490) を分解して発生させた二酸化炭素を上にも述べた手法で二酸化炭素吸収剤に吸収させた。NBS シュウ酸の分解は過マンガン酸の硫酸溶液で行った。バックグラウンド試料はあらかじめ酸処理により表面をきれいにした大理石から調製した。表面を洗った大理石を酸で分解し発生した二酸化炭素をアルカリ溶液に吸収させ、そして炭酸カルシウムとして回収した。この炭酸カルシウムから植物試料と同じ方法でバックグラウンド試料を調製した。

アミン系の物質は液体シンチレーション計測ではクエンチャーである。すなわち、スペクトルの波高を低エネルギー側に移行させ計数効率の低下をもたらす。図 4-13 に二酸化炭素吸収剤に導入する二酸化炭素量とその時の ^{14}C のエネルギースペクトルの関係を示す。図では飽和量の二酸化炭素を吸収した場合を 100% とし、全く吸収していない場合を 0% としている。飽和度が 0 から 100% に増加するに連れ、 ^{14}C のエネルギースペクトルは高エネルギー側に移行している。このことは、二酸化炭素を吸収してアミンからカルバメイトへ化学形を変えることで、クエンチングが弱くなってきていることを示

している。二酸化炭素吸収法ではより多くの二酸化炭素を吸収剤に導入することが、供試料量を増すばかりでなく、液体シンチレーション計測の測定条件を良くする方向に働くことになる。

図4-14に NBSのシュウ酸を用いて決定した計数効率と外部標準線源比 (ESCR) の関係を示す。外部標準線源比の増加に伴って計数効率は増加しているが、この計数効率の増加は二酸化炭素吸収剤の飽和率の増加に対応している。このような計数効率と外部標準線源比の対応は、試料の計数効率を外部標準線源比を用いて決定できることを示している。図4-14にバックグラウンド計数率と外部標準線源比の関係を示す。バックグラウンド計数率は外部標準線源比が低い部分 (二酸化炭素の飽和率が小さく、計数効率が低い部分) では、外部標準線源比の増加と共に大きくなっていく。これは、上に見られた計数効率と二酸化炭素吸収剤の飽和率の関係と同じで、二酸化炭素の吸収量の増加に連れてクエンチングが減少するためであるが、ある外部標準線源比以上ではほぼ一定の値を示している。しかし、二酸化炭素吸収剤のロットが違う場合、この領域でのバックグラウンド計数率は異なっている。これは二酸化炭素吸収剤に含まれている炭素が ^{14}C を含んでいるためと考えられ、その量がロットごとに異なるためと推定される。従って、バックグラウンド計数率はロットごとに定める必要があることがわかる。

放射能測定は低バックグラウンド液体シンチレーションカウンター (アロカ社 LB-II) で行ったが、試料の計数値を安定させるため試料調製が終わってから4日間以上カウンター内で冷却してから、一試料につき1,000分間測定を行う。計数効率は上に述べたように試料の外部標準線源比と NBS標準試料からあらかじめ作成した補正曲線から決定する。

(5) 二酸化炭素吸収法の信頼性と検出限界

貝殻 (1991年産) から得た炭酸カルシウムを用いて、異なった飽和率を持つ試料を調製し ^{14}C 濃度を評価した。図4-15に示すように放射能は飽和率が違っていても計数誤差内で一致し、異なった二酸化炭素吸収量で測定しても再現性のある結果を得られることがわかる。前にも述べたように、二酸化炭素の飽和率は高い方が供試料量が多くなり、しかもクエンチングが少なくなることから、実際には90%以上の飽和率で ^{14}C を測定する。

飽和率95%のときの供炭素量は2.7gであり、計数効率はおおよそ50%となる。飽和率

95%のときのバックグラウンド計数率を8 cpmとすれば、現在の環境レベルの ^{14}C (250mBq/g-炭素) を1000分間液体シンチレーションカウンターで測定したときの計数誤差は2.5mBq/g-炭素である。約1%の相対標準偏差で環境中の ^{14}C を測定できる。仮に二酸化炭素吸収剤のバックグラウンド計数率が2倍の16cpmになったとしても、計数誤差は3 mBq/g-炭素であり、現在の ^{14}C レベルを評価するには十分な測定精度である。

4.2.3 環境試料の測定

図4-16に大気中の二酸化炭素に含まれている ^{14}C 濃度を示す。自然界で ^{14}C は大気中の窒素と2次宇宙線との核反応で恒常的に生成し、二酸化炭素として広く分布している。大気二酸化炭素中の ^{14}C 濃度は1960年代の前半には大気圏内核実験の影響で天然レベルの約2倍まで増加したが、現在のレベルは核実験以前より5-6%高いことが図よりわかる。大気中の二酸化炭素は光合成により植物に取り込まれるので、植物は大気二酸化炭素中の ^{14}C のモニタリングに使用できる。この場合、 ^{14}C 濃度は植物の成長期間の平均値と考えることができる。 ^{14}C を二酸化炭素として排出している原子力施設のモニタリングに植物を利用することを考え、原子力発電所周辺と一般環境で植物を採取し ^{14}C 濃度を分析した。原子力発電所は中国電力の島根原子力発電所で、比較のための一般環境は島根県太田市と福岡市である(図4-17)。

図4-18に測定結果を示す。図中に同一試料について2つの分析値があるもの(ヨモギ、アカマツ、クロマツ)は、植物の燃焼から放射能測定までを別個に行ったものであり、本手法の再現性を現している。いずれの場合も得られた結果は計数誤差内で一致している。

原子力発電所周辺で採取した植物の ^{14}C 濃度の平均は 285.0 ± 5.2 mBq/g-炭素で、太田市と福岡市の結果を合わせた平均は 263.2 ± 1.8 mBq/g-炭素で、その差は約20mBq/g-炭素であった。一般環境の ^{14}C 濃度と考えられる本邦産の米⁵⁾や本邦産のワイン⁶⁾は、それぞれ 257.7 ± 3.2 mBq/g-炭素と 260.5 ± 2.3 mBq/g-炭素と報告されている。これらの値と比較しても太田市と福岡市で採取した植物の ^{14}C 濃度は一般環境レベルだと言える。原子力発電所周辺で採取した植物は明らかに施設の影響を受けている。

原子力発電所から放出される ^{14}C の化学形は、沸騰水型原子力炉では二酸化炭素、加圧水型原子炉では主に炭化水素である。これは、原子炉内で生成した ^{14}C が置かれている化学的な環境の違いに原因があるとされている。島根原子力発電所は沸騰水型の原子

炉であることから、 ^{14}C は主に二酸化炭素として放出されているので周辺の植物に固定されたと考えられる。1994年5月と11月に佐賀県の玄海原子力発電所周辺で採取した松葉の ^{14}C 濃度はそれぞれ $254 \pm 2 \text{ mBq/g-炭素}$ と $255 \pm 2 \text{ mBq/g-炭素}$ であった（ベンゼン合成法で測定を行った）。玄海原子力発電所は加圧水型原子炉であることから、 ^{14}C は主に炭化水素として環境放出されていると思われる。二つの松葉試料の ^{14}C 濃度は一般環境の植物のレベルと同じで有意な濃度上昇は観察されていない。国連科学委員会の報告⁷⁾には、加圧水型原子炉と沸騰水型原子炉から環境放出されている ^{14}C は、1980-1984の平均でそれぞれ $345 \pm 80 \text{ GBq/(GW} \cdot \text{y)}$ と $330 \pm 110 \text{ GBq/(GW} \cdot \text{y)}$ と記載されている。両タイプによる ^{14}C の放出量に大きな違いはないことから、玄海原子力発電所からも島根原子力発電所と同程度の ^{14}C は放出されていると考えるべきであろう。玄海原子力発電所周辺の松葉に ^{14}C の濃度増加が起こっていないのは、大気中の炭化水素を植物が利用しないためである。

参考文献

- 1) N. Momoshima, H. Kawamura, Y. Takashima, J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 173, 323-329 (1993).
- 2) 百島則幸、川村秀久、高島良正、江角周一、保健物理 30, 121-126 (1995).
- 3) 百島則幸、長半減期放射性核種の定量法に関する調査研究 (I)、原子力安全技術センター、12-19 (1993).
- 4) 科学技術庁編、放射性炭素分析法、日本分析センター (平成5年度)。
- 5) S. Shibata, E. Kawano, Appl. Radiat. Isot., 45, 815-816 (1994).
- 6) 井上義和、岩倉哲男、工藤美和子、放射能調査研究報告書 NIRS-R-21、7-11 (1992).
- 7) UNSCEAR, Sources, effects and risks of ionizing radiation, New York, p. 145 (1988).

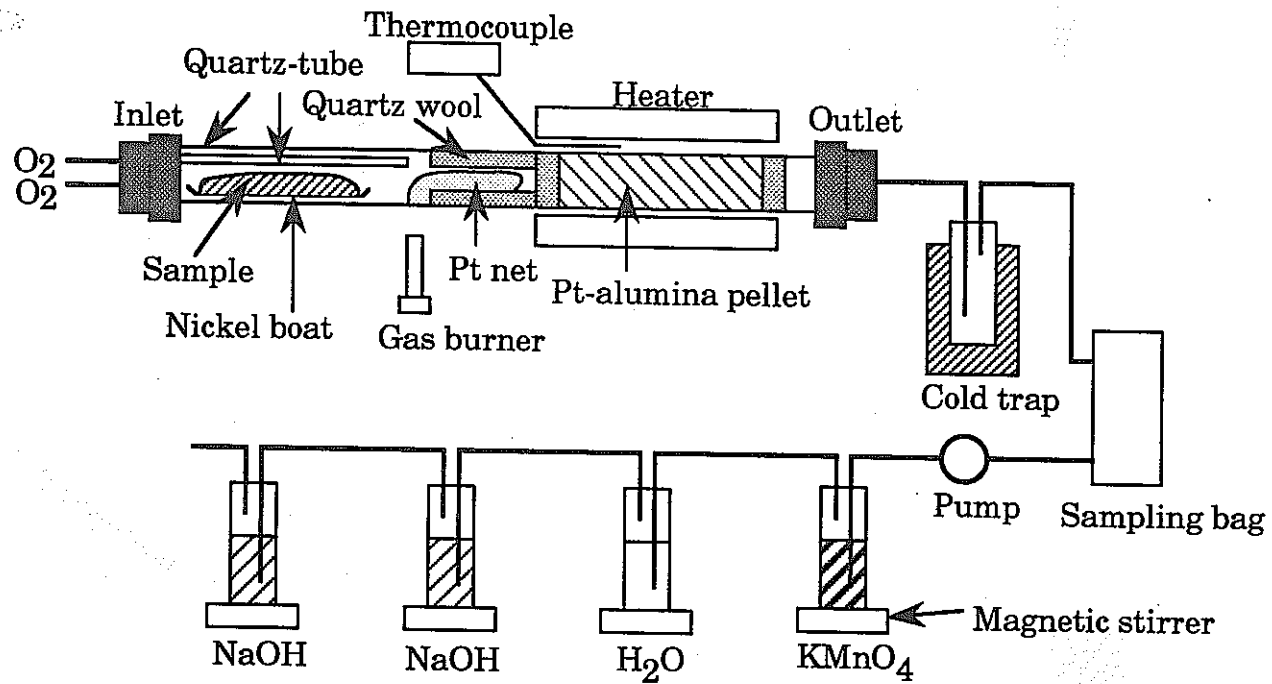


図4-11 植物試料の燃焼装置

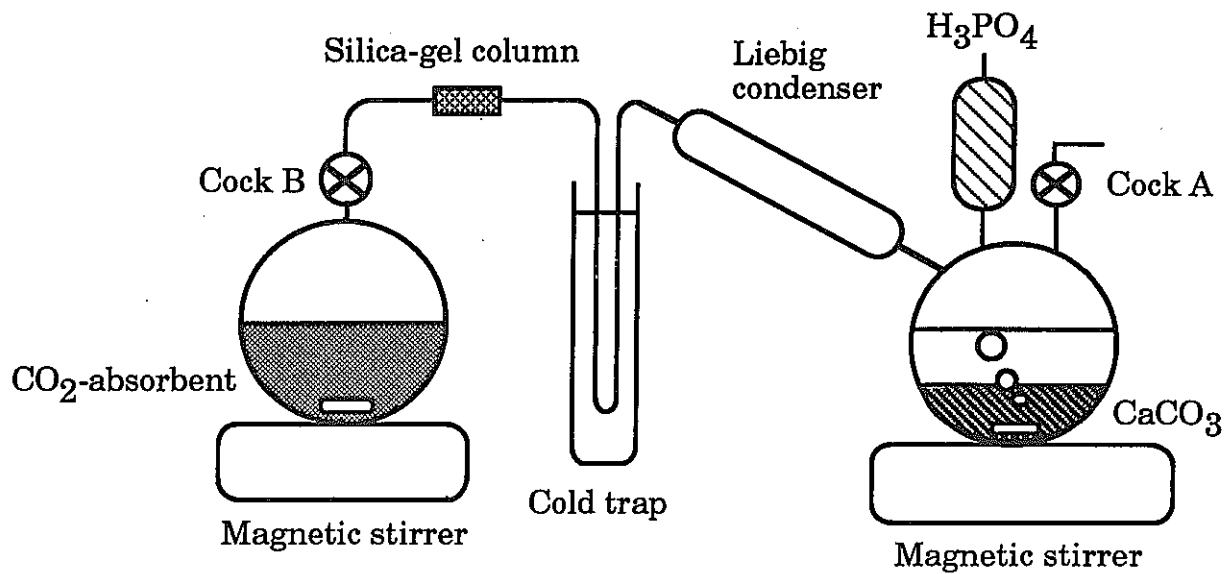


図4-12 二酸化炭素吸収装置

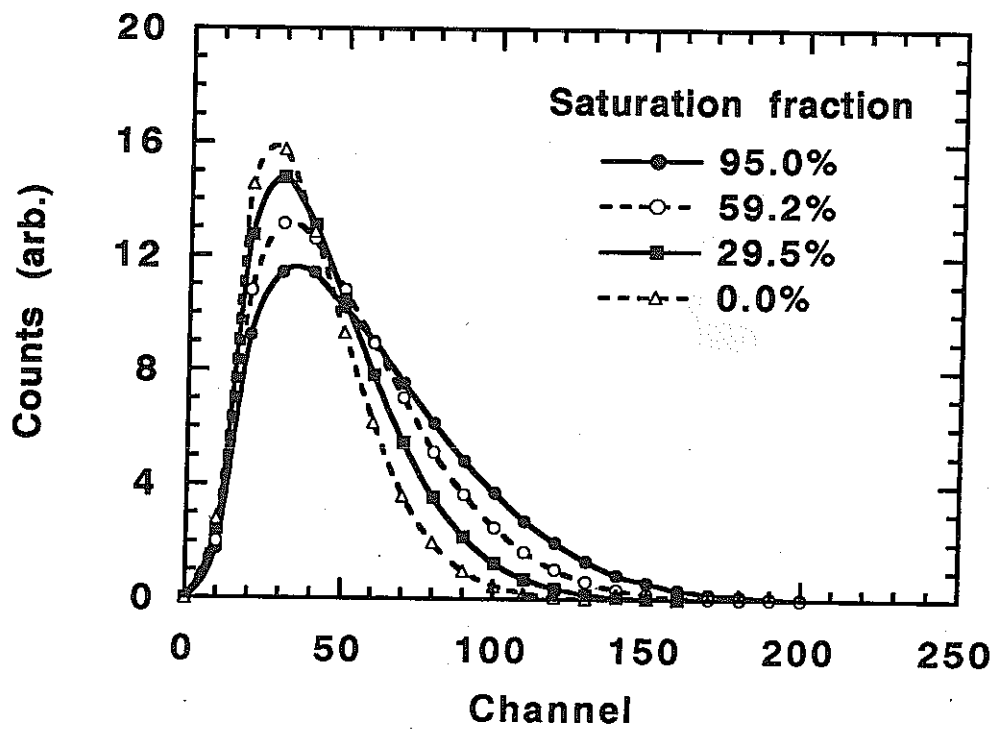


図4-13 炭素-14のエネルギースペクトルと二酸化炭素飽和度の関係

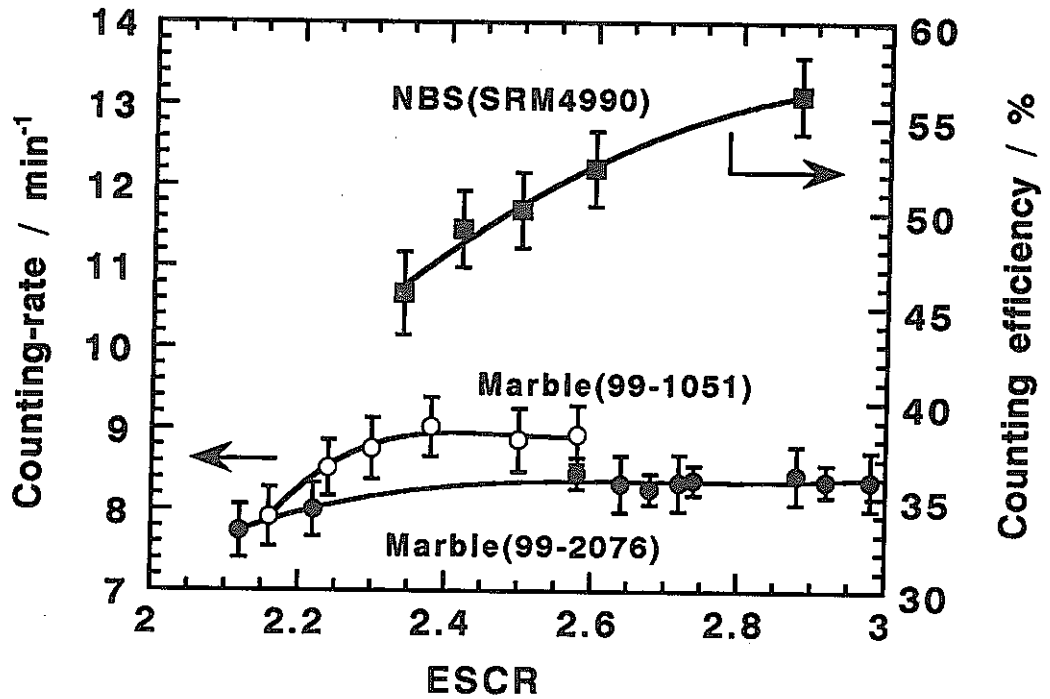


図4-14 炭素-14の計数効率及びバックグラウンド計数率と二酸化炭素飽和度の関係

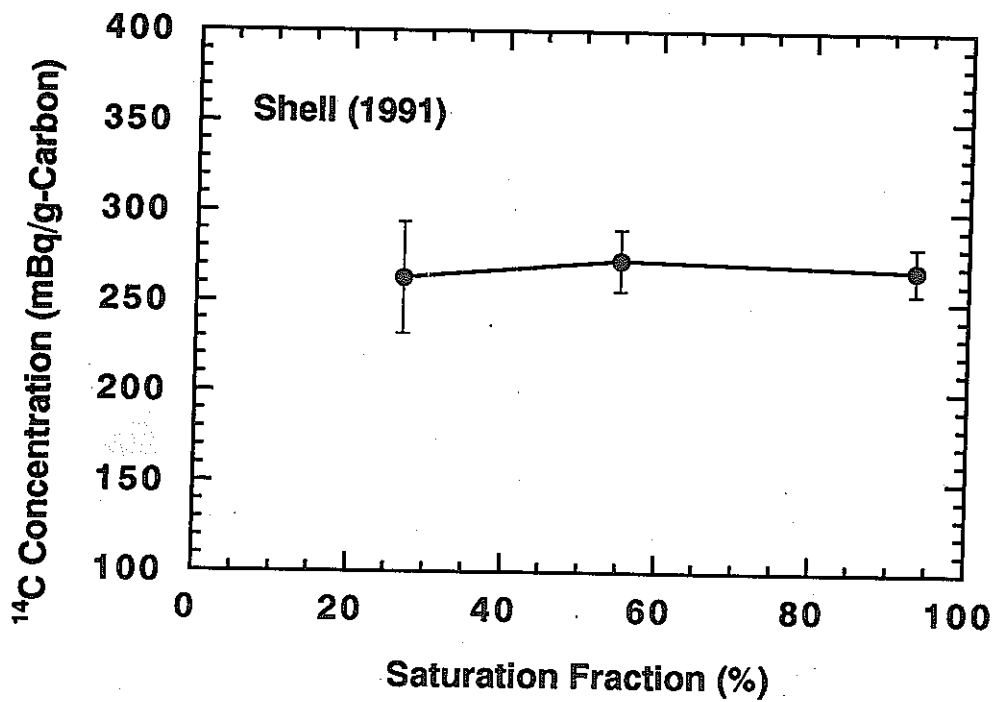


図4-15 二酸化炭素飽和度が異なる貝試料の炭素-14濃度

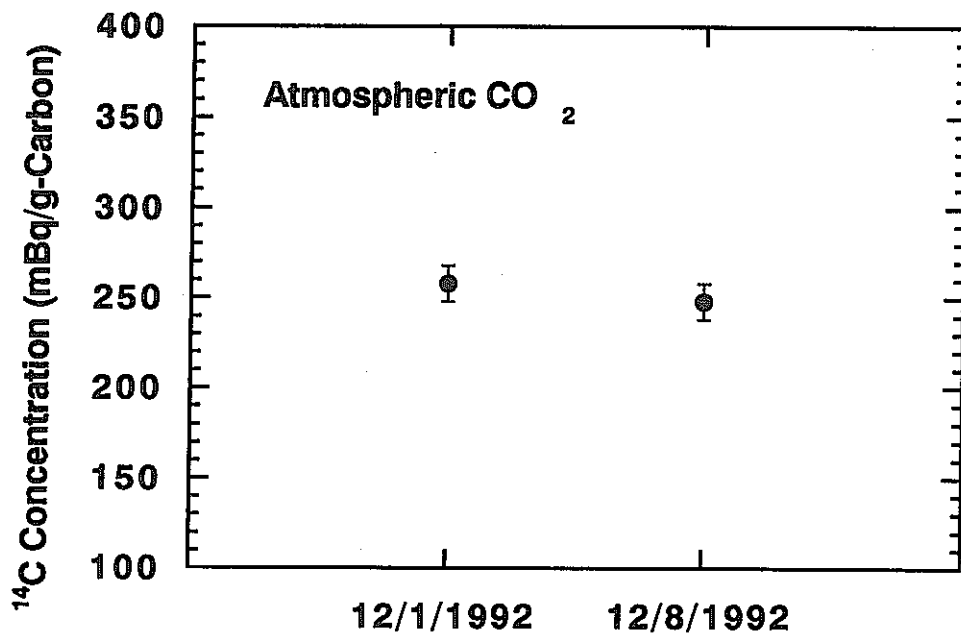


図4-16 大気中二酸化炭素の炭素-14濃度

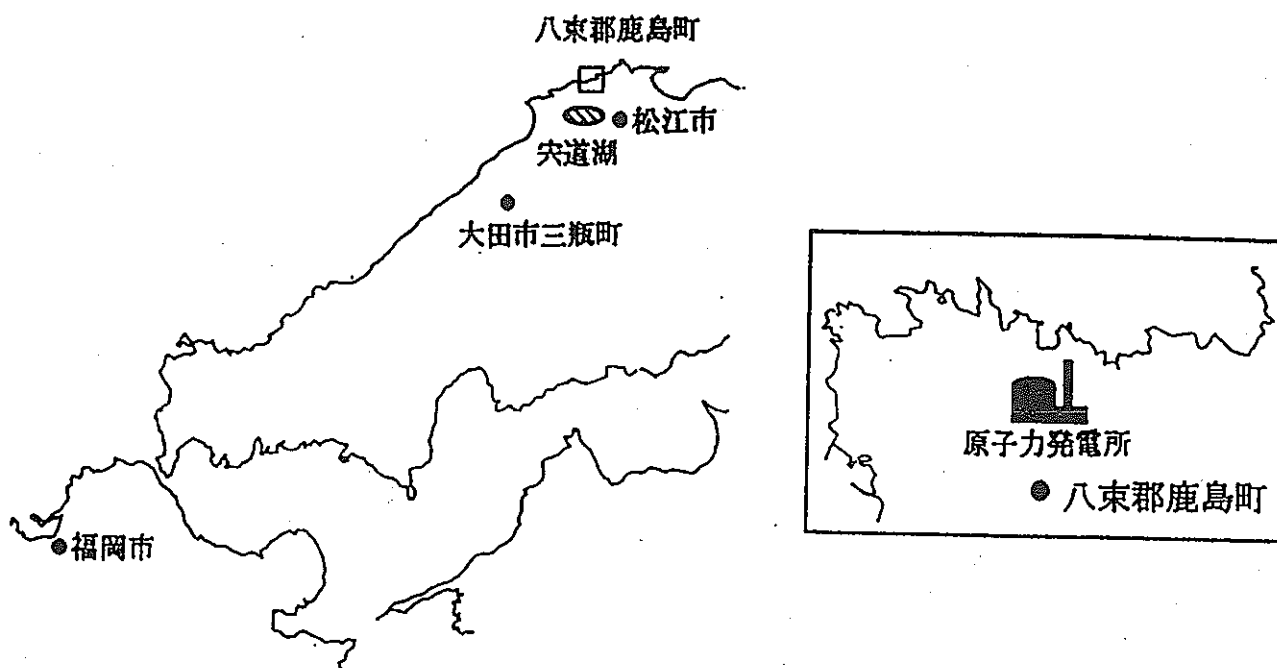


図4-17 植物試料の採取地点。原子力発電所周辺（鹿島町）と一般環境（太田市、福岡市）

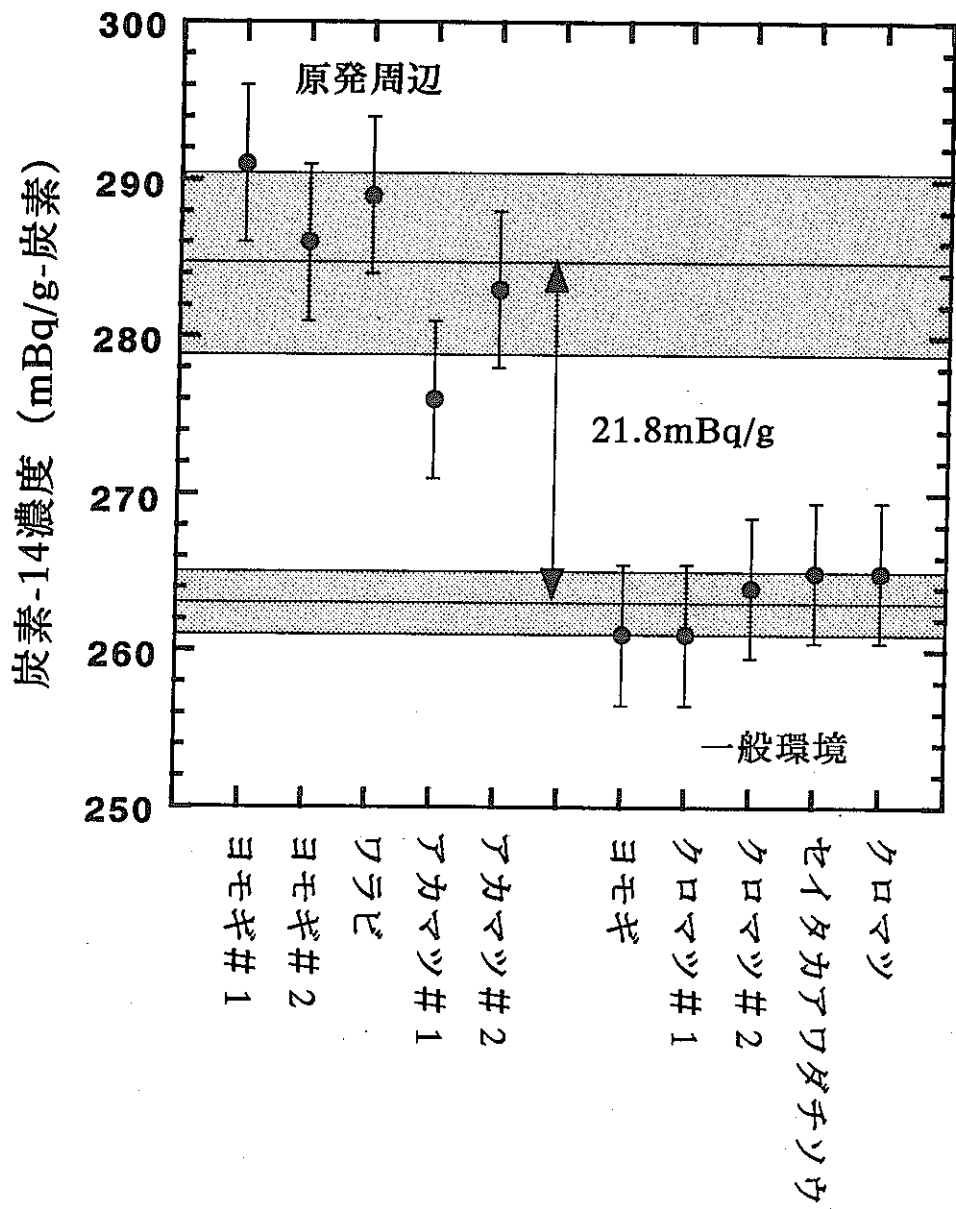


図4-18 原子力発電所周辺と一般環境で採取した植物中の炭素-14濃度

4.3 ^{99}Tc 分析のための $^{95\text{m}}\text{Tc}$ トレーサーの製造

4.3.1 はじめに

テクネチウム (Tc) は、周期律表上ではモリブデンとルテニウムの上に位置する原子番号43番の元素で同位体はすべて放射性で安定核種は存在しない。これらのテクネチウム同位体の半減期は、宇宙における元素合成から現在までの経過時間に対して相対的に短いため、当時生成したテクネチウムはすべて壊変している。現在、環境中には1960年代の核実験でグローバルフォールアウトとして放出された ^{99}Tc (半減期21.4万年) が、その長い半減期のゆえにほとんど減衰することなく存在している。一方、地殻中にはウランの自発核分裂により生成する天然起源の ^{99}Tc があるがその寄与は極めて低い。近年問題となっているのは原子力発電所の運転により核燃料棒中に蓄積している ^{99}Tc である。 ^{99}Tc の核分裂収率は約6%で ^{90}Sr や ^{137}Cs と同じ程度であるので燃料棒には比較的多くの ^{99}Tc が含まれていることになるが、半減期が長いため放射能としての寄与は ^{90}Sr や ^{137}Cs より低い。 ^{99}Tc は核燃料再処理過程で施設から環境へ一部放出される¹⁾ことから環境モニタリングが必要な長寿命放射性核種である。

^{99}Tc は純 β 線放出核種であるので、これまで低バックグラウンドGMカウンター²⁾や低バックグラウンド β 線スペクトロメトリー³⁾で測定されてきた。テクネチウムには安定同位体が存在しないので収率トレーサーは常に大きな問題であり、研究者により様々な方法が取られてきた⁴⁾。最近、誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS) による ^{99}Tc の測定が行われるようになり⁵⁾、そのための収率トレーサーが必要となってきた。最適な収率トレーサーは半減期61日の $^{95\text{m}}\text{Tc}$ である。この放射性核種は204keVの γ 線を放出するので γ 線スペクトロメトリーで ^{99}Tc の回収率を評価することができる。本報告では、 $^{95\text{m}}\text{Tc}$ の製造と精製法について述べる。

4.3.2 実験

(1) 製造方法

$^{95\text{m}}\text{Tc}$ は原子炉で作ることはできず、適当なターゲットに荷電粒子を照射して製造することが必要である。ターゲットにはニオブ (Nb) とモリブデン (Mo) が候補としてあげられるが、それらの同位体組成を表4-1に示す。Nbはモノアイソトピックであるが、Moには6種類の同位体が存在している。これまで報告されている $^{95\text{m}}\text{Tc}$ を生成する核反

応を表4-2 に示す⁶⁾。ここで重要なことは製造した ^{95m}Tc に ^{99}Tc の汚染がないことである。Mo をターゲットとした核反応では ^{99}Tc が同時に生成してくるので、 ^{95m}Tc を ^{99}Tc 分析の収率トレーサーとして使用するためには Nb をターゲットとした核反応で製造する方が望ましい。図4-19に Bond と Jha⁷⁾ よって報告されている $^{93}\text{Nb}(\alpha, xn)^{97-x}\text{Tc}$ 反応の核反応断面積を示す。照射する α 粒子のエネルギーが高くなると複合核から放出される中性子の数が多い反応が優勢となってくるが、中性子を2個放出する反応は25-30MeVで最も高い核反応断面積を示している。このとき質量95の同位体は ^{95m}Tc と ^{95}Tc が生成する。

(2) 照射

純度99.9%、厚さ0.1mmの金属ニオブフォイル(レアメタリック社)を一辺約1cmの正方形に切り取り、それらを4枚を重ねてアルミ製の照射ホルダーに固定し、40MeVに加速した α 粒子を東京大学原子核研究所のSFサイクロトロンで照射した。 ^{95m}Tc を生成する核反応は25-30MeVで最も大きい、なるべく収率をあげるため α 線のエネルギーは40MeVとした。Tcに原子番号の近いZr(原子番号40)の阻止能⁸⁾を用いて40MeVの α 粒子の飛程を計算すると0.3mmとなり、4枚重ねの3枚目で粒子はすべて止まると考えられる。照射は約1.5 μC の電流密度で約21時間行い、トータル電流は107mCであったNb板はビームの入射方向に近い方から1枚目、2枚目と呼ぶことにする。照射試料は約20日間冷却し短寿命核種の減衰を待ってから ^{95m}Tc の分離精製を行った。

(3) ^{95m}Tc の分離精製

4枚のNb板は γ 線スペクトルを測定してから化学分離に供した。濃硝酸とフッ酸の混合溶液にNb板を溶解させた後、溶解液に濃アンモニア水を加えニオブの沈殿を生成させた(沈殿は Nb_2O_5 と思われる)⁷⁾。このとき大部分の ^{95m}Tc は過テクネチウム酸として溶液に留まる。ニオブ沈殿を遠心分離で除いた上澄みは、メチルエチルケトン溶媒抽出で精製してからH型の陽イオン交換樹脂(Dowex 50WX8)に2回通した。溶出液は蒸発乾固し、その残留物を1Nの精密分析用硝酸に溶解して ^{95m}Tc 溶液とした。

4.3.3 結果と考察

図4-20-aと図4-20-bに4枚重ねて照射したNb板のそれぞれの γ 線スペクトルを示す。

ビーム入射面から4枚目のNb板に放射能が検出されていないことから、阻止能から推定したように α 粒子は3枚目までのNb板で止まったと結論される。各 γ 線ピークのエネルギーから同定した核種名を γ 線スペクトルに示す。照射終了から20日以上経過しているため短半減期の核種は見いだされていない。半減期61日の ^{95m}Tc 以外に半減期4.35日の ^{99}Tc が1~3枚目のNb板に確認され、その他半減期10.1日の ^{92m}Nb のピークが1枚目と2枚目に見られる。同定された核種の γ 線ピークエネルギーとその放出率を表4-3に示す。これらの3核種について最も高い放射能を示したNb板の強度を1としたときの相対的な生成放射能強度比を図4-21に示す。 ^{95m}Tc は204keV、 ^{99}Tc は778keV、 ^{92m}Nb は934keVの γ 線ピークを使用した。ここでは図4-19と比較できるようにNb板の順は左側を4枚目として描いている。Nb板の放射能の最大は ^{95m}Tc は2枚目、 ^{99}Tc は3枚目、 ^{92m}Nb は1枚目にあり図4-19の励起関数と一致している。

Ge半導体検出器で定量した精製後の ^{95m}Tc の量は386kBqであった。この溶液を1N硝酸で希釈して調製した溶液をICP-MSで測定したところ、 ^{99}Tc に相当する質量数99のピーク強度は希釈用の1N硝酸と同じで ^{99}Tc の存在は確認されなかった。本来この核反応では質量99の核種は生成しないはずで、ICP-MSの測定からもこのことが確認された。

参考文献

- 1) UNSCEAR, Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, New York(1982).
- 2) N. Matsuoka, T. Umata, M. Okamura, N. Shiraishi, N. Momoshima, and Y. Takashima, J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 140, 57-73 (1990).
- 3) E. Holm, J. Rioseco, and M. Garcia-Leon, Nucl. Instru. Meth., 223, 204-207 (1984).
- 4) 百島則幸, KURRI-TR-362, 66-70 (1991).
- 5) 百島則幸、長半減期放射性核種の定量法に関する調査研究-III、原子力安全技術センター, 77-86 (1995).
- 6) C. M. Lederer and V. S. Shirley, Table of Isotopes 7th Edition, John Wiley & Sons, New York (1978).
- 7) P. Bond and S. Jha, Phys. Rev. C, 2, 1887-1897(1970).
- 8) L. C. Northcliffe and R. F. Schilling, Nucl. Data Tab., A7, 233-463 (1970).

表4-1 ニオブとモリブデンの同位体組成

元素	質量	%
Nb	92	100
Mo	92	14.8
	95	15.9
	96	16.7
	97	9.6
	98	24.1
	100	9.6

表4-2 ^{95m}Tc を生成する核反応

標的核	核反応
Nb	$^{93}\text{Nb}(\alpha, 2n)^{95m}\text{Tc}$
Mo	$^{95}\text{Mo}(p, n)^{95m}\text{Tc}$
	$^{94}\text{Mo}(^3\text{He}, d)^{95m}\text{Tc}$
	$^{94}\text{Mo}(d, n)^{95m}\text{Tc}$
	$^{94}\text{Mo}(p, \gamma)^{95m}\text{Tc}$

表4-3 γ 線スペクトルに検出された放射性核種の γ 線エネルギーとその放出率

核種	エネルギー (keV)	放出率 (%)
^{95m}Tc (61 d)	204.1	61.9
	582.1	29.3
	786.2	8.5
	820.6	4.61
	835.1	26.1
	1039.3	2.72
^{96}Tc (4.28 d)	778.2	99.8
	812.5	82
	849.9	98
	1126.9	15.2
^{92m}Nb (10.15 d)	934.5	99.2

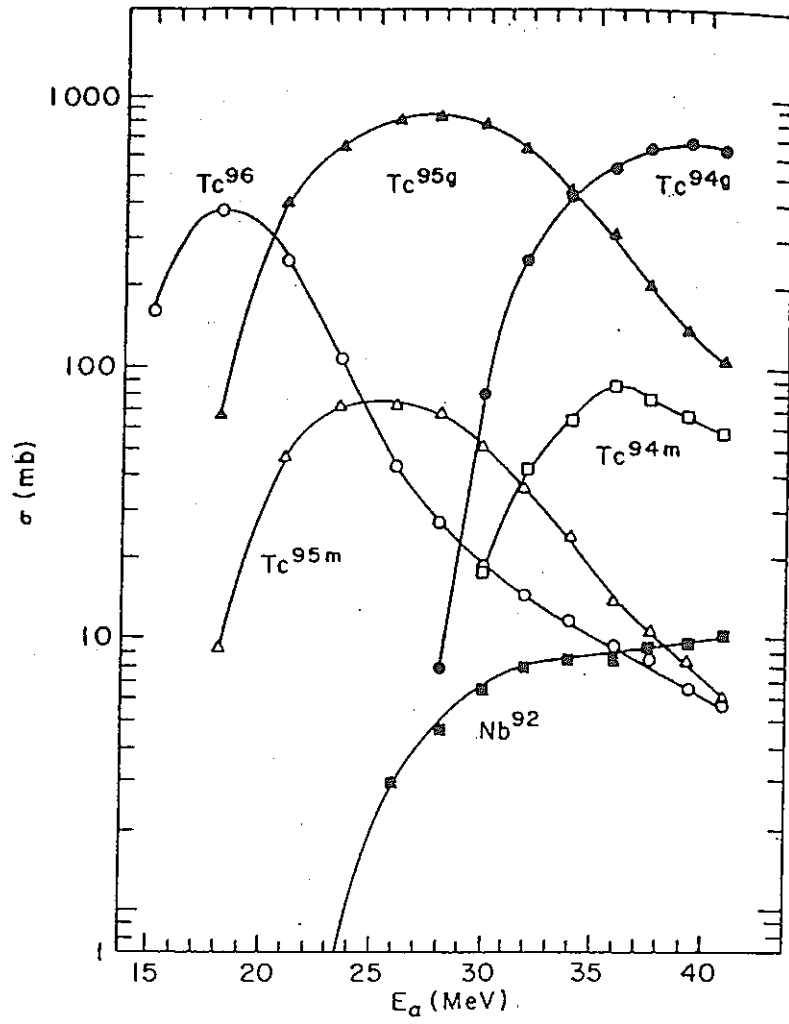


図4-19. $^{93}\text{Nb}(\alpha, xn)^{97-x}\text{Tc}$ 反応の励起曲線

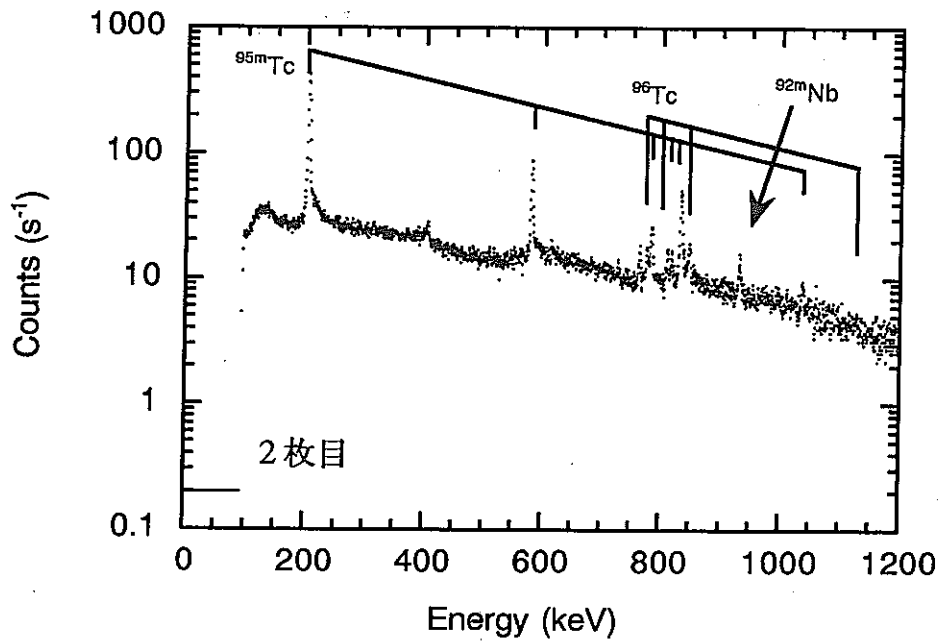
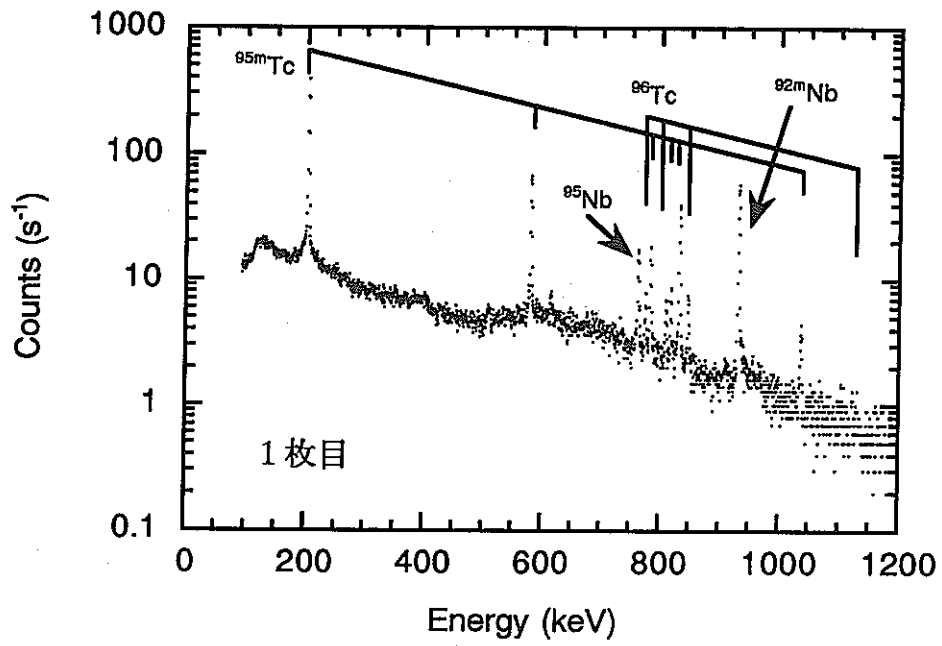


図4-20-a 40MeVの α 線で照射したNbの γ 線スペクトル。
ビームの入射方向から1枚目と2枚目のNb板 (厚さいずれも0.1mm)

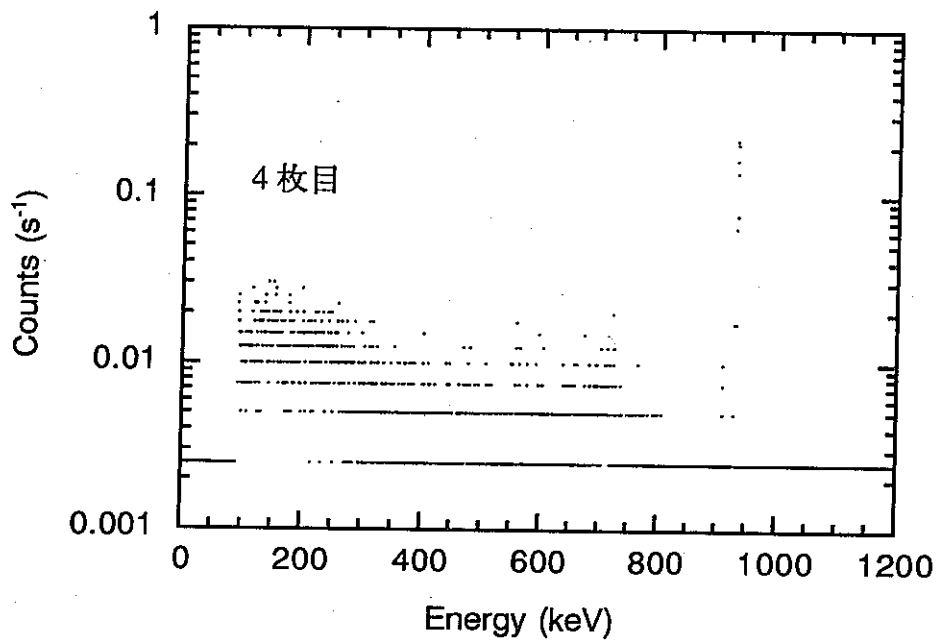
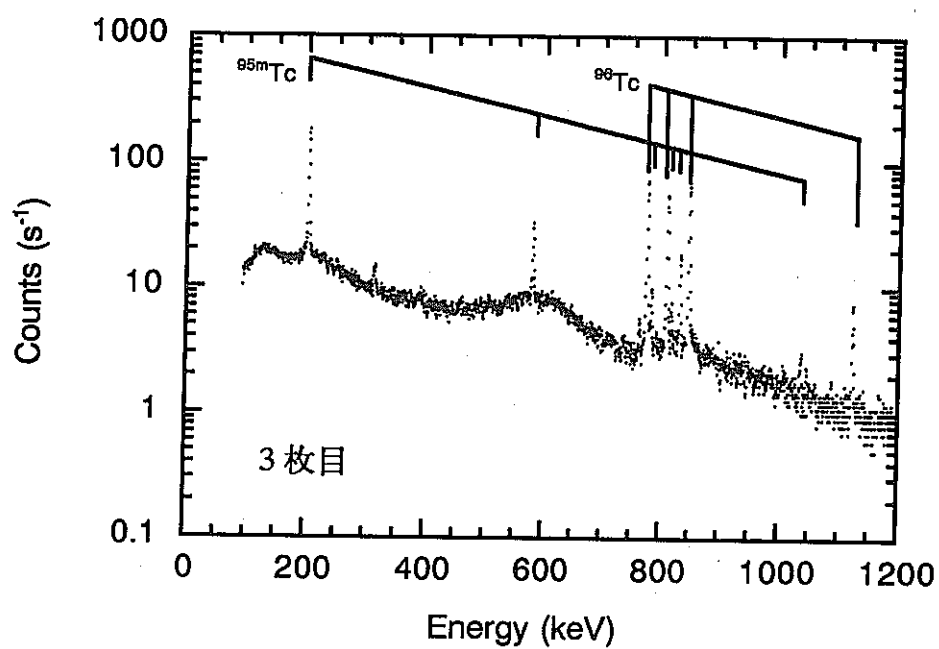


図4-20-b 40MeVの α 線で照射したNbの γ 線スペクトル。
 ビームの入射方向から3枚目と4枚目のNb板 (厚さいずれも0.1mm)

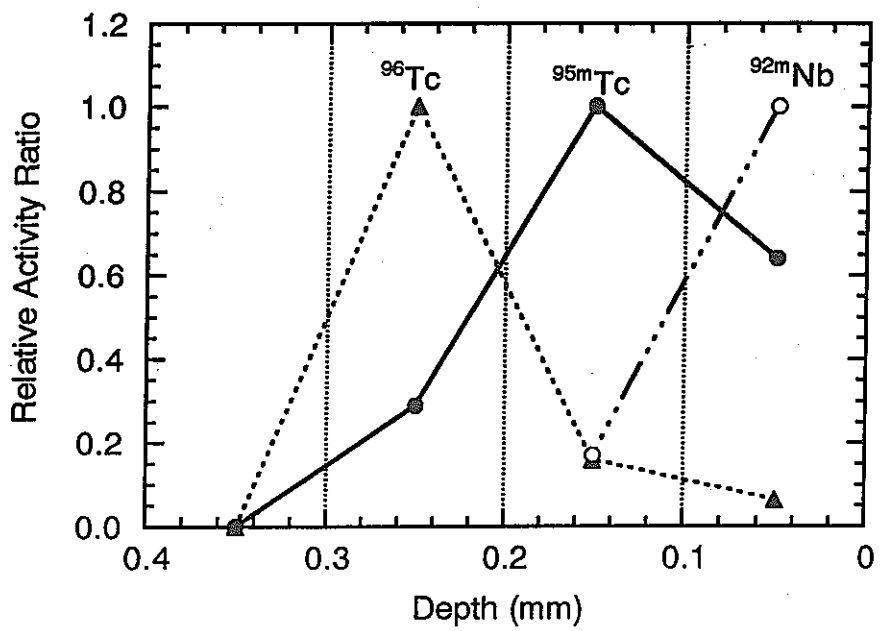


図4-21 核種の相対的な生成量

4.4 放射性降下物の最近の状況

茨城県つくば市で観測された ^{90}Sr と ^{137}Cs について

Recent Deposition of ^{90}Sr and ^{137}Cs

4.4.1 はじめに

気象研究所地球化学研究部では、およそ40年にわたり、放射性降下物の研究を実施してきたが、その研究目的は、核実験および原子力災害に対処し、放射線防護に必要な観測データを国民に提供すること、ならびに放射能がどのように輸送されるのかを知ること—すなわち、大気輸送諸過程についての知見を得ることにある（たとえば、葛城（1986））。

最近では、 ^{90}Sr および ^{137}Cs の降下量はきわめて低レベルとなり、検出限界ぎりぎりのレベルで推移しており、また、その季節変動パターンも従来とは異なった様相を示してきている。これに伴い、再浮遊の重要性が議論されるようになってきたが、はたして成層圏フォールアウトが無視し得るかどうかははっきりとした報告はない(Playford et al., 1990; 1991; 上野ら, 1994; 石川, 1994)。本報告では、1990年代にはいってよりの茨城県つくば市で観測された結果および、その由来についての検討結果を述べる(Igarashi et al, in press)。

4.4.2 研究の方法

(1) 試料および分析法

放射能測定では、検出限界以下とならないように、必ず定量値が得られるように努めており、その概略を以下に述べる(Hatori-Otsuji et al.; in press)。原則として毎月1日に、気象研観測露場に設置したプラスチック製大型水盤（1 m²×2または4 m²）に捕集された降下物を、純水で洗浄して採取した。これを化学処理を加えずに蒸発濃縮して固体状として、直径約6 cmのプラスチック容器に充填する。そして、Ge半導体 γ 線スペクトロメーターにより試料から放出される661keVの γ 線の強度を測定し、 ^{137}Cs を定量した。測定時間は試料中の ^{137}Cs 量に依存するが、数十万秒から2百万秒（数日～数週間）である。次いで、試料中の有機物を硝酸などで分解し、溶液化して化学分離を行った。溶液の一部を分取し、ICP-AES, MSにより、安定な元素を分析した。残りの溶液中の ^{90}Sr を、安定Srを担体として、シュウ酸塩沈殿法、発煙硝酸沈殿法など6種類の沈殿分離を組み合わせた放射化学分離により精製し、測定の妨害となる天然の放射能な

どを除いた。最終的には、 ^{90}Sr を炭酸ストロンチウムとして回収、固定し、放射能測定用の試料を調製した。数週間放置して ^{90}Sr と ^{90}Y とが放射平衡に達して放射能が $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ となった後に、低バックグラウンド2 π ガスフロー検出器でその β 線を測定して定量した。測定時間は1000分で、3～5回繰り返し測定を行った。

(2) 放射能分析の精度管理

後述のように、人工放射能の降下量は漸次減少して、この間、検出限界近くのほぼ一定の水準で推移しており、データの信頼性を確保するうえで、分析に於ける品質管理の必要性が増している。特に、 γ 線を放出しない ^{90}Sr などの β 放射体や、プルトニウムなど α 放射体の核種分析では、妨害核種を除く放射化学分離が要求される。実際的なアプローチとしては、いわゆる標準試料 (reference material) を用いて、自らの分析値が保証値 (真値) と一致するか否か検討するのが、一般的である。しかし、我が国では、環境放射能分析用の標準試料はほとんど調製されてこなかった。そこで筆者らは、当研究部で長年にわたって保管されてきた、日本各地14地点で1963-79年に実際に捕集された降下物を有効に活用し-合併・混合して標準試料を調製し、推奨値を得るために関係各機関に依頼しintercomparison を実施して、われわれの分析値の精度ならびに確度を確認することとした(Hatori-Otsuji et al.; in press)。なお、このintercomparisonには、これまでに動燃事業団安全管理部、日本分析センター、米国 EMLなど16機関の参加を仰いだ。

図4-22に調製した試料の組成を示す。表4-4 に気象研を含む各機関よりこれまでに得た報告値を示す。特に、 ^{137}Cs の濃度につき報告が多く行なわれた。各機関の報告値は極めて良い一致を見ており (図4-23)、参加各機関が半導体検出器を用いた γ 放射体の分析について、高レベルの技術水準を持つことが示された。このことから、本試料は標準試料として用い得る程度に均一であり、 ^{137}Cs につき参照値を設定できた。一方、 ^{90}Sr 、Pu同位体についての報告は、能力のある特定の機関に限定され、参照値の設定までに至っていない。

以上のような作業の結果、気象研の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 分析データは、各機関の分析値の平均に近く、現在の分析法を信頼してよいと考えられる。また、分析法を変更した場合でも、標準物質の分析に立ち戻ればよく、分析法の信頼性は、将来とも一定程度担保できたものと考えている。

4.4.3 最近の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 降下量

(1) 年間降下量の変動と月間降下量の季節変動

図4-24に気象研観測露場で得られた、1957年よりの年間の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 降下量を示す。1980年に気象研究所は、東京都杉並区高円寺より、茨城県つくば市に移転した。放射性降下物の量は緯度に大きく依存するが、東京とつくばの距離はおおよそ60kmであるので、この観測記録は一応、連続したものとみなせる。なお、この連続性はPu同位体の観測結果について確認されている (Aoyama, 1988; Aoyama et al., 1987; 1991; Hirose et al., 1987; 1990; Katsuragi, 1983; Katsuragi & Aoyama, 1986)。

1960年代初頭に実施された大気圏内核実験により、放射性降下物の量は著しく増大し、その後も中国核実験の度に増加した様子が見て取れる。大気圏内核実験は1980年を最後に中止されたので、降下量は漸くに低下したが、1986年のチェルノブイリ事故により、大量の ^{137}Cs が日本にももたらされた。1990年代に入ると、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 降下量は極めて低レベルで検出限界ぎりぎりにまで低下した。このレベルは、最大の降下量を記録した1963年と比べると4桁も低く、また、 ^{137}Cs について言うと、チェルノブイリ事故時の1986年より約3桁低い。しかし、年間の降下量はその後減少せず、 ^{90}Sr について約150 mBq/m²、 ^{137}Cs について約350mBq/m² でほぼ横ばいとなって推移する状態にある。なお、この放射能のレベルは人体の被曝にとってはまったく取るに足らない。

図4-25及び表4-5 に1990年より1994年までに観測された月間の降下量変動を示す (Igarashi et al, in pressおよびunpublished data)。1990年より1993年まで ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 降下量は春季に最も増大した。春季の降下量増大は、成層圏と対流圏大気の大規模な混合が活発化することによる、いわゆるスプリングピークに相当するようにも考えられる。

しかし、極大の月が2度ある年もあり、1980年代とは異なる季節変動傾向を示している。1994年になると、 ^{137}Cs の月間降下量は、あきらかに従来と異なる様相を呈した。

結論から言ってしまうと、成層圏フォールアウトを現在の放射性降下物の支配要因とすることはもはや妥当ではなく、あらたにその支配要因を探る必要がある。

(2) 放射性降下物をもたらす過程

放射能を地表にもたらす過程は、その経路と起源により、大まかには3つに区別できよう。核実験、事故直後には対流圏を直接経由して (T)、その翌年以降には成層圏に

到達し滞留していた部分（S）が地表にもたらされる。放射性降下物は圧倒的にこの2つの過程でもたらされる。しかし、これらの過程で運ばれる放射能の量が減少するにしたがって、もうひとつの過程が重要となってくる。すなわち、地表に降下した放射能が土壌粒子とともに再浮遊する過程（R）である。実際の降下量（D）はこれら3つの過程でもたらされる量の和となる。

$$D = T + S + R$$

この3者について予想される特徴を、減衰時間、放射能と相当する安定体との比（r/s比）、 $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比につき、表4-6にまとめた。以下では、表4-6に示した特徴について考察を進め、現在の放射性降下物の支配要因を明らかにする（Igarashi et al, in press）。

(3) 降下量の減衰についての考察

まず最初に減衰時間について考える。エアロゾルの対流圏での滞留半減期は1箇月程度と思われ（たとえば、Rangarajan, 1992）、核実験、事故などで放出された放射能の対流圏フォールアウトは、その翌年には1/1000以下となって無視できる量となる。

ところで、成層圏フォールアウトの滞留半減期は約1年である（Katsuragi, 1983; Katsuragi & Aoyama, 1986; Hirose et al., 1987）。短期の変動を無視するために、これを ^{137}Cs の年間降下量変動についてあてはめた（図4-26）。1980年10月の中国核実験以後の数年に注目すると、82年以後の年間降下量（D）は、

$$D_{82+t} = S_{82+t} = D_{82} \times \exp \{ (-\ln 2 / S_T) \times t \}$$

と表わすことができる。ここで、添え字は年をあらわし、tは経過時間を、 S_T は成層圏での滞留半減期を示す。計算により得られる滞留半減期は約1.1となる。

ところで、1986年のチェルノブイリ事故で放出された ^{137}Cs の一部は成層圏にも入ったと考えられるので（Aoyama, 1988）、1990年代に観測された降下量の少なくとも一部は、成層圏由来と見られる。仮に全量が成層圏由来とすれば、その減少の仕方はカーブフィットで得られた1.1年の減衰時間に従わなくてはならない。図4-26に示すように、対流圏フォールアウトが無視できる1987年より、1.1年の減衰曲線をのばすと、1990年代の予測された ^{137}Cs 降下量は、実際の降下量よりも明らかに下回ってしまい、どうしても、もう一つの因子である再浮遊（R）を考慮する必要がでてくる。

問題はその量をどのように見積もるかである。とりあえず、値がほぼ一定となった19

90年代の降下量の平均値を再浮遊量 (R) として、1987～89年の降下量 (D) について計算すると、

$$D_{87+t} = S_{87+t} + R = D_{87} \times \exp \{ (-\ln 2 / S_T) \times t \} + R$$

となって、成層圏滞留半減期として約0.89年が得られた (図4-27)。同様の計算を1982～85年の降下量について行くと、約0.84年の滞留半減期が得られた。1986年のチェルノブイリ事故の前後で成層圏滞留半減期の値が一致することから、現在の放射性降下物はそのほとんど全量が再浮遊によってもたらされているとした、最初の仮定は正しかったと考えられる。このことから、再浮遊による降下量への寄与は、少なくとも1980年代初期から無視できない程度になり、また、その量はおおよそ1990年代の年間降下量と同じと考えて差し支えないことがわかった。

(4) r/s比についての考察

現在の放射性降下物は成層圏に由来しないことを、さらに r/s比により確認する。r/s比は、純物質での比放射能に相当するが、環境物質を対象にしているのでこの用語を用いる。核反応で生成した放射性同位体には、相当する安定同位体はほとんど付随しない。大気圏内の核爆発では周囲の物質が巻き上げられるが、量的には少ないと思われる。一方、再浮遊では、放射性同位体は、土壌粒子に付着しており安定な元素により希釈された状態にある。従って、定性的には、r/s比は成層圏フォールアウトで大で、再浮遊では小と考えられる。もし、春季の降下量の増大が、成層圏フォールアウトに由来するのであれば、放射能は土壌中の安定体に希釈されていないから、r/s比が増大するはずである。

1991～93年の降下物について求められた⁹⁰Sr/安定Sr比および¹³⁷Cs/安定Cs比(r/s比)を図4-28に示す。r/s比は何らかの原因で変動するが、春季の降下量極大に対応したr/s比の増大は見られなかった。従って、現在降下している放射能のほとんどは成層圏由来ではなく、土壌よりの舞い上がり起源であることがあらためて示された。

(5) 再浮遊の起源は？

次なる疑問は、この再浮遊土壌粒子はどこから運ばれてくるかである。これには、¹³⁷Cs/⁹⁰Sr比が手がかりを与えられると思われる。図4-29に1990～93年の各月での¹³⁷Cs/⁹⁰Sr比をプロットした。同比は1～5程度の範囲で変動した。1960～70年代にもたらされた放射性降下物中での同比は約1.6であり、両核種の物理半減期はともに約30年なので、

降下した当時の組成が保持される環境下では、この比は現在でも 1.6 である (たとえば、Playford et al., 1990; 1992)。先に述べた標準試料中でもこの比は 1.6 で保たれていることを確認している (Otsuji-Hatori et al., in press)。

地表に降下した放射性核種は、土壤粒子に吸着するが、降水により徐々に地下方向に溶脱・移行していく。移行速度は核種の属する元素の化学的性質に依存し、 ^{90}Sr と ^{137}Cs を比べると、 ^{90}Sr の方が早く溶脱され、 ^{137}Cs の方が長く地表面近くに残留する。したがって、日本の表層土壤での $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比は 1.6 よりも大きくなっており (表4-7)、 $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比は最大で 10 程度に達する (NIRS, 1992; 1993)。

だれもが観測地点近傍の土壤粒子が、再浮遊の主要な起源であると考えらるであろう。そうであるならば、降下物中の $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比は常に 1.6 より大で、かつ、土壤での比に近くなければならない。しかし、 $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比はそうした証拠を示さない。今一度、 $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比をよく眺めると、1.6 前後と 2.7 前後に分布を持つように思える。これを頻度分布でみると図4-30のようになり、二峰分布をもつことは確からしい。単純化しすぎるきらいはあるが、この頻度分布からして、二つないしはそれ以上の起源の異なる再浮遊により、現在の放射性降下物は構成されていると言える。そのうちの片方、 $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比 1.6 の再浮遊は、日本の表層土壤粒子によるとは思われない。

従来、日本の研究者のみならず、観測地点近傍の土壤粒子が、再浮遊の主要な起源であるとみなされてきた。したがって局所的な影響に関心をもった報告が繰り返されてきた (石川、1994; 石川ら、1995; 上野ら、1994)。ところで、表土粒子の発塵は風の強い乾燥した季節に盛んになると思われるが、つくば市での ^{90}Sr と ^{137}Cs の降下量の季節変動は、日本での気候の変化に必ずしも対応しない。太平洋側で風の強い乾燥した季節というのは、冬であろう。 ^{90}Sr と ^{137}Cs の降下量と月間降水量を比較すると図4-31のようになるが (unpublished data)、降水量と降下量との間には逆相関はなく、表土が乾燥していても必ずしも降下量が大とはならないことがわかる。

われわれは、発生源として日本国内を考えるのではなく、物質輸送の観点から注目される大陸黄砂がむしろ重要だとにらんでいる (図4-32)。黄砂は春季に頻繁に、また秋季にも視認される現象であり (図4-33)、日本列島での 1 m^2 あたりの年間降下量も数 g 以上である (名古屋大学水圏科学研究所, 1991)。最近の観測によれば、黄砂粒子は、春季・秋季には常時上空に飛来しているらしい。また、黄砂の発生源の一つとされるタクラマカン砂漠には、核実験場として使用されてきたロプノールがある。砂漠地帯では

降水量が小さいので $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比1.6が保持されてもおかしくはない。

上記の仮説を支持すると思われるひとつの報告が、熱帯の国ベトナムより出されている。Pham et al. (1994) は、北緯 12° 、海拔1500mのグラット市で大気中の放射性Cs濃度及び降下量を1985年より1991年まで連続観測した。それによると、ドライフオールアウトが主となる冬季-12月及び1月に放射性Csの濃度、降下量ともに極大となった(図4-34)。この時季には、モンスーンが活発化し大規模な高気圧が発達するので、風送塵を多量に含む北半球中緯度の気塊が輸送されると考えられる。

最近、金沢大学の中西らの研究グループは、大気中の超ウラン元素の起源を風送塵に求め、分粒した大気浮遊塵に含まれるAmおよびPuを分析し、小粒経部分にこれらの放射性核種が多く含まれることを見出ししている(柴ら、1995)。小粒経のエロゾルが大気中を運搬されやすいことはよく知られており、大気中の人工核種の起源を探るうえで重要な手がかりとなろう。

4.4.4 おわりに

現在、放射能だけでなく種々の安定な元素の降下量などの情報をあわせて検討し、上記の仮説の検証を試みているが、現時点までに明確な結論を得ていない。これまで3年間、安定元素の降下量を分析してきたが、経年変動を見るのには不十分である。しかしながら、放射能という眼で土壌粒子の輸送を眺めているという認識をもつことは重要であろう。

いろいろと述べたように、現在観測されている放射性降下物は、日本国内で発塵した表土粒子が主体というよりは、もっと大規模なアジア地域での表土粒子の輸送に関係しているように考えられた。今後、観測を継続してさらに時系列データを蓄積するとともに、大陸砂漠地域の表土を分析するなどして、土壌粒子の発生源につき検討・解明を進めていく。また、降下量の変動要 — なぜ年間降下量の経年変化が見られないのかなどについても、さらに気象条件などをも加えて検討する。

参考文献

- 1) M. Aoyama. (1988). Evidence of stratospheric fallout of caesium isotopes from the Chernobyl accident. *Geophys. Res. Lett.*, 15, 327-330.
- 2) M. Aoyama, K. Hirose, & Y. Sugimura. (1987). Deposition of gamma-emitting nuclides in Japan after the reactor-IV accident at Chernobyl. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 116, 291-306.
- 3) M. Aoyama, K. Hirose, & Y. Sugimura. (1991). The temporal variation of stratospheric fallout derived from the Chernobyl accident. *J. Environ. Radioactivity*, 13, 103-115.
- 4) M. W. Carter & A. A. Moghissi. (1977). Three decades of nuclear testing. *Health Phys.*, 33, 55-71.
- 5) M. Hatori-Otsuji, Y. Igarashi and K. Hirose. (in press) Preparation of a Reference Fallout Material for Activity Measurements., *J. Environ. Radioactivity*.
- 6) K. Hirose, & Y. Sugimura. (1984). Plutonium in the surface air in Japan. *Health Phys.*, 46, 1281-1285.
- 7) K. Hirose, M. Aoyama & Y. Sugimura. (1990). Short and long term effects of Chernobyl radioactivity on deposition and air concentrations in Japan.
- 8) IAEA-SM-306/129 Vol.1, 141-149, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria.
- 9) K. Hirose, M. Aoyama, Y. Katsuragi & Y. Sugimura. (1987). Annual deposition of Sr-90, Cs-137 and Pu-239, 240 from the 1961-1980 nuclear explosions: A simple model. *J. Meteor. Soc. Jpn.*, 65, 259-277.
- 1 0) Y. Igarashi, M. Otsuji-Hatori and K. Hirose. (in press). Recent Deposition of ^{90}Sr and ^{137}Cs Observed in Tsukuba., *J. Environ. Radioactivity*.
- 1 1) Y. Katsuragi (1983). A study of ^{90}Sr fallout in Japan. *Pap. Met. Geophys.*, 33, 277-291.
- 1 2) Y. Katsuragi & M. Aoyama. (1986). Seasonal variation of Sr-90 fallout in Japan through the end of 1983. *Pap. Met. Geophys.*, 37, 15-36.
- 1 3) Y. Katsuragi, K. Hirose & Y. Sugimura. (1982). A Study of plutonium fall

- out in Japan. Pap. Met. Geophys., 33, 85-93.
- 1 4) Y. Katsuragi. (1983). A study of ^{90}Sr fallout in Japan. Pap. Met. Geophys., 33, 277-291.
- 1 5) NIRS (1992). Radioactivity Survey Data in Japan No.96, NIRS-RSD-96, National Institute of Radiological Sciences, Chiba.
NIRS (1993). Radioactivity Survey Data in Japan No.100, NIRS-RSD-100, National Institute of Radiological Sciences, Chiba.
- 1 6) Z. H. Pham, T. B. Nguyen, Y. Truong, T. B. Vuong & T. N. Nguyen. (1994) Variations of Caesium Isotopes in Air and Fallout at Dalat, South Vietnam, 1986-91., J. Environ. Radioactivity.
- 1 7) K. Playford, G. N. J. Lewis & R. C. Carpenter. (1990). Radioactive fallout in air and rain: Results to the end of 1989, AEA-EE-0227, United Kingdom Atomic Energy Authority.
- 1 8) K. Playford, G. N. J. Lewis & R. C. Carpenter. (1992). Radioactive fallout in air and rain: Results to the end of 1990, AEA-EE-0362, United Kingdom Atomic Energy Authority.
- 1 9) C. Rangarajan. (1992). A study of the mean residence time of the natural radioactive aerosols in the planetary boundary layer, J. Environ. Radioactivity, 15, 193-206.
- 2 0) I. Roelandts. (1989). Environmental reference materials, Spectrochim. Acta, 44B, 925-934.
- 2 1) 石川陽一. (1994) 放射性降下物測定における再舞い上がりと地域代表性の問題. JCAC, 24, 63-69, Japan Chemical Analysis Center.
石川陽一、小川武、嵯峨京時、森泰明、関根勉、吉原賢二. (1995). フォールアウト起源 ^{137}Cs の局地的再浮遊. 第39回放射化学討論会講演要旨集.
- 2 2) 上野隆、天野光、小林義威. (1994). 東海村における降下物の放射化分析と ^{137}Cs の降下量に占める再浮遊の評価, 保健物理, 29, 17-22.
- 2 3) 葛城幸雄. (1986). 死の灰のゆくえ 放射能を追って30年. 新草出版.
- 2 4) 柴由美子、ハクM. A.、中西孝. (1995). 風送塵中のPu-239, 240とAm-241. 第39回放射化学討論会講演要旨集.

25) 名古屋大学水圏科学研究所 (1991) : 大気水圏の科学-黄砂. 古今書院.



表4-4 放射性降下物標準試料に含まれる核種濃度報告値 (mBq/g)

機関	試料数	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	^{239,240} Pu	²³⁸ Pu	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra
A	5	298 ± 3	186 ± 3	6.32 ± 0.10	0.25 ± 0.03		
B	5	304 ± 11					
C	5	328 ± 11					
D	5	314 ± 6					
E	5	342 ± 11	248 ± 7	7.23 ± 0.54	0.40 ± 0.08		
F	5	314 ± 9					
G	5			6.41 ± 0.15	0.27 ± 0.01		
H	5	290 ± 9					
I	4*	305 ± 3				661 ± 15	15 ± 2
Ja	5	319 ± 6					
Jb	5	305 ± 11					
K	5	293 ± 12					
L	5	308 ± 11	186 ± 21	6.48 ± 0.67	0.29 ± 0.05	714 ± 64	
M	5	332 ± 5	213 ± 17				
気象研	5 (16)#	309 ± 6	198 ± 8	6.49 ± 0.30	0.14 ± 0.08		
Average		312 ± 15	206 ± 26	6.59 ± 0.37	0.27 ± 0.1	688 ± 26	15 ± 2

誤差は、データセットに対する不偏標準偏差を表わす。

* I試料破損、²²⁶Raについては、I試料が検出限界以下。

#括弧内の数字は、¹³⁷Csについての試料数。

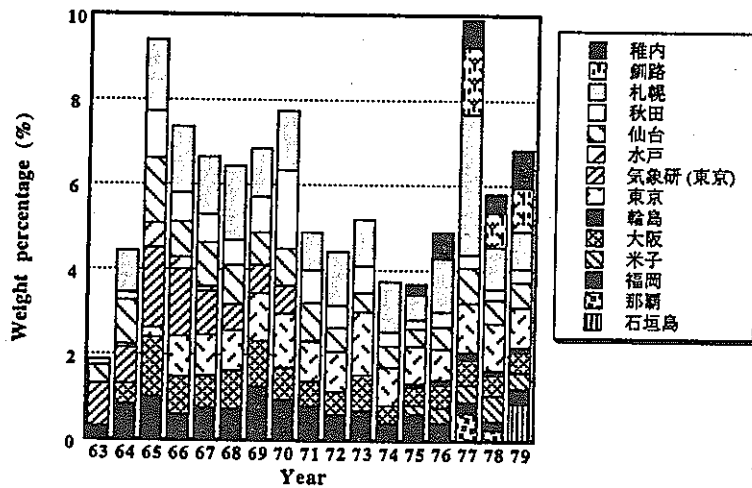


図4-22 標準試料を構成する各地点降下物の重量割合

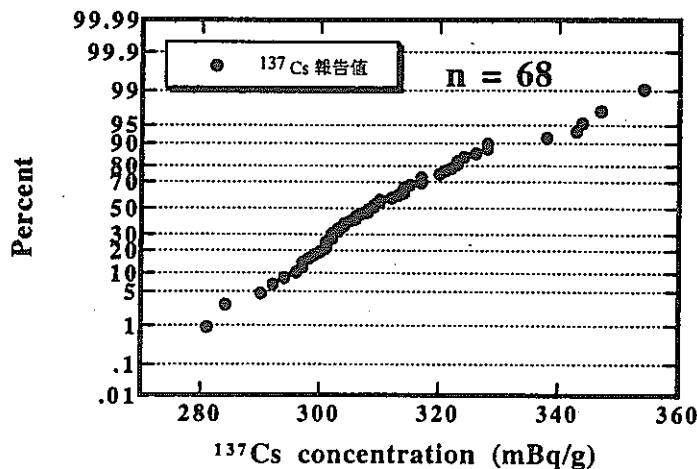


図4-23 ¹³⁷Cs濃度報告値の分布 (正規確率プロット)

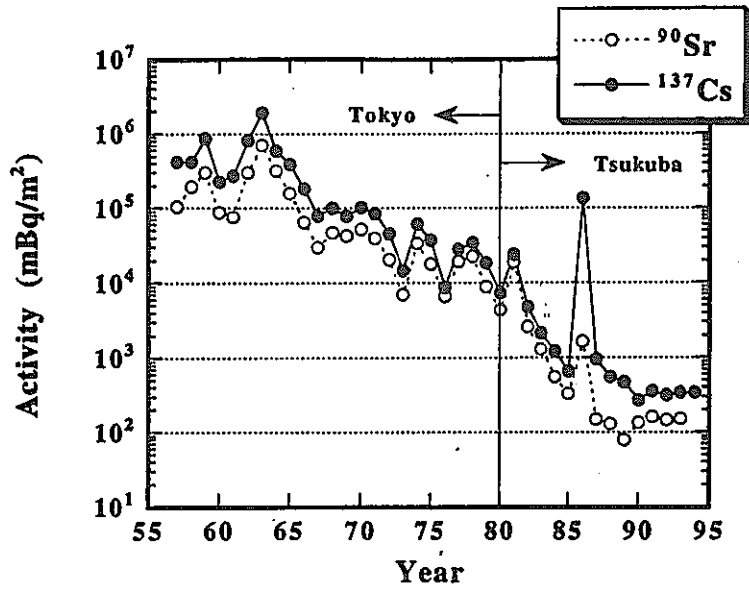


図4-24 気象研究所における放射性降下物の経年変動

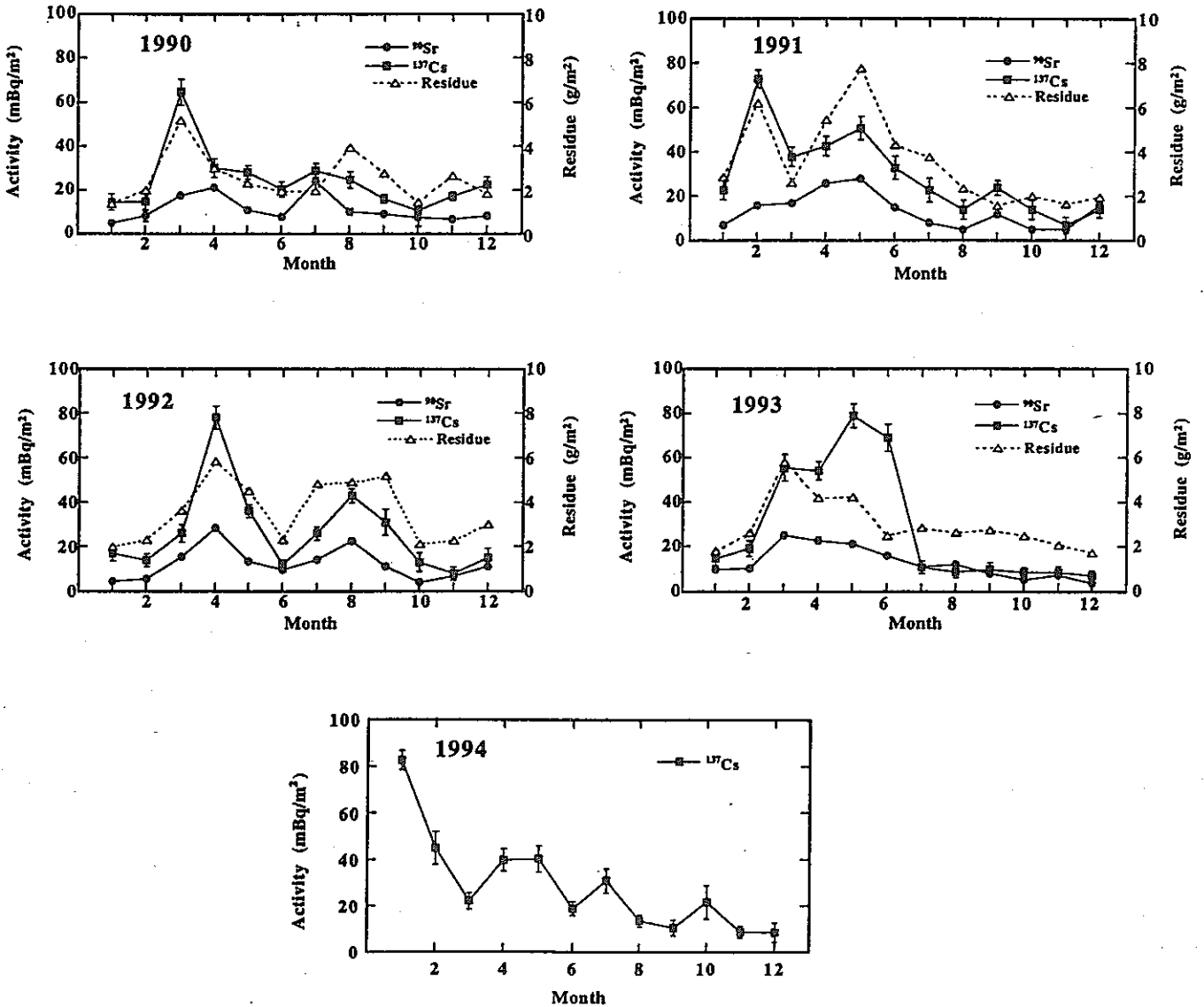


図4-25 1990年代における放射性降下物の月間降下量

表4-5 放射性降下物の月間降下量

Month	$^{90}\text{Sr}(\text{mBq}/\text{m}^2)^*$	$^{137}\text{Cs}(\text{mBq}/\text{m}^2)^{**}$	$^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$	Residue (g/m^2)
1990 Jan	4.9 ± 0.3	15 ± 4	3.0 ± 0.8	1.4
Feb	8.2 ± 2.4	15 ± 4	1.8 ± 0.7	2.0
Mar	17.5 ± 1.0	65 ± 6	3.7 ± 0.4	5.2
Apr	21.2 ± 1.0	30 ± 4	1.4 ± 0.2	3.0
May	10.9 ± 1.2	28 ± 3	2.6 ± 0.4	2.3
Jun	7.9 ± 0.5	20 ± 3	2.6 ± 0.5	1.9
Jul	23.9 ± 4.7	29 ± 3	1.2 ± 0.3	2.0
Aug	10.0 ± 1.5	25 ± 4	2.5 ± 0.5	3.9
Sep	9.1 ± 0.9	16 ± 2	1.8 ± 0.3	2.8
Oct	7.5 ± 4.0	11 ± 2	1.4 ± 0.8	1.4
Nov	6.7 ± 0.8	17 ± 2	2.6 ± 0.4	2.7
Dec	8.4 ± 0.8	23 ± 4	2.7 ± 0.5	1.8
1991 Jan	7.3 ± 0.7	23 ± 4	3.2 ± 0.7	2.9
Feb	15.9 ± 0.5	74 ± 4	4.7 ± 0.3	6.2
Mar	16.7 ± 0.4	38 ± 4	2.3 ± 0.3	2.6
Apr	26.1 ± 0.9	43 ± 4	1.6 ± 0.2	5.5
May	27.5 ± 0.4	51 ± 5	1.9 ± 0.2	7.8
Jun	15.2 ± 0.8	33 ± 5	2.2 ± 0.4	4.4
Jul	8.3 ± 0.2	23 ± 5	2.7 ± 0.7	3.8
Aug	4.7 ± 0.4	14 ± 4	3.0 ± 1.0	2.4
Sep	11.7 ± 0.8	24 ± 3	2.0 ± 0.3	1.6
Oct	5.3 ± 0.5	14 ± 4	2.6 ± 0.9	2.0
Nov	4.6 ± 0.2	7 ± 4	1.5 ± 0.8	1.7
Dec	15.6 ± 1.3	13 ± 4	0.9 ± 0.2	2.0
1992 Jan	4.4 ± 0.3	17 ± 3	3.8 ± 0.8	2.0
Feb	5.4 ± 0.2	14 ± 3	2.6 ± 0.5	2.3
Mar	15.5 ± 0.8	26 ± 4	1.7 ± 0.3	3.6
Apr	28.5 ± 0.2	78 ± 5	2.7 ± 0.2	5.9
May	13.5 ± 0.2	36 ± 3	2.7 ± 0.2	4.5
Jun	9.6 ± 0.6	12 ± 2	1.3 ± 0.2	2.3
Jul	14.1 ± 0.1	26 ± 3	1.8 ± 0.2	4.8
Aug	22.7 ± 1.2	43 ± 3	1.9 ± 0.2	4.9
Sep	11.2 ± 0.5	31 ± 6	2.8 ± 0.5	5.2
Oct	4.0 ± 0.1	13 ± 4	3.3 ± 1.1	2.1
Nov	6.9 ± 0.3	8 ± 3	1.2 ± 0.4	2.3
Dec	11.0 ± 0.4	15 ± 4	1.4 ± 0.4	3.0
1993 Jan	9.9 ± 0.7	15 ± 3	1.5 ± 0.3	1.8
Feb	10.5 ± 0.3	19 ± 4	1.8 ± 0.3	2.6
Mar	25.2 ± 0.6	56 ± 6	2.2 ± 0.2	5.8
Apr	23.0 ± 1.4	54 ± 4	2.4 ± 0.2	4.2
May	21.5 ± 0.4	79 ± 5	3.7 ± 0.3	4.2
Jun	15.9 ± 0.6	69 ± 6	4.3 ± 0.4	2.5
Jul	11.1 ± 0.4	11 ± 3	1.0 ± 0.3	2.9
Aug	12.1 ± 0.2	9 ± 3	0.7 ± 0.2	2.7
Sep	8.0 ± 0.4	10 ± 3	1.2 ± 0.4	2.8
Oct	5.3 ± 0.2	9 ± 2	1.6 ± 0.4	2.5
Nov	7.5 ± 0.2	9 ± 2	1.2 ± 0.3	2.1
Dec	3.9 ± 0.7	7 ± 2	1.9 ± 0.6	1.7
1994 Jan		83 ± 4		
Feb		45 ± 7		
Mar		22 ± 4		
Apr		40 ± 5		
May		40 ± 6		
Jun		19 ± 3		
Jul		31 ± 5		
Aug		14 ± 3		
Sep		11 ± 3		
Oct		22 ± 7		
Nov		9 ± 2		
Dec		9 ± 4		

* Errors are from triplicated activity measurements.

**Errors are from one Poisson standard deviation.

表4-6

放射性降下物をもたらす各過程の定性的特徴			
過程	減衰時間	r/s比	$^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$
成層圏	約1年 成層圏滞留半減期	高い	単一
再浮遊	長い 物理壊変などによる 表土からの喪失	低い	複数?
対流圏 事故による小放出	約1ヵ月	成層圏過程よりも高い	単一

表4-7 関東地方の表層土 (0-5cm) の ^{90}Sr , ^{137}Cs 濃度とその比

Sampling place	Date	^{90}Sr (mBq/g dry)	^{137}Cs (mBq/g dry)	$^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$
Tochigi	1990, Jul	15 ± 0.40	45 ± 0.7	3.0 ± 0.1
Kanagawa	1990, Jul	9.9 ± 0.35	52 ± 0.8	5.3 ± 0.2
Gunma	1990, Oct	0.78 ± 0.074	3.4 ± 0.21	4.4 ± 0.5
Chiba	1991, Mar	0.13 ± 0.046	1.6 ± 0.15	12.3 ± 4.5
Ibaraki	1991, Mar	4.2 ± 0.21	43 ± 0.7	10.2 ± 0.5
Tokyo	1991, Jun	0.51 ± 0.10	3.8 ± 0.24	7.5 ± 1.5
Chiba	1991, Aug	0.20 ± 0.043	2.6 ± 0.18	13.0 ± 2.9
Kanagawa	1991, Aug	5.0 ± 0.24	16 ± 0.5	3.2 ± 0.2
Gunma	1991, Aug	1.3 ± 0.09	2.9 ± 0.19	2.2 ± 0.2
Average		4.1	5.2	19

Data are cited from Radioactivity Survey Data in Japan.

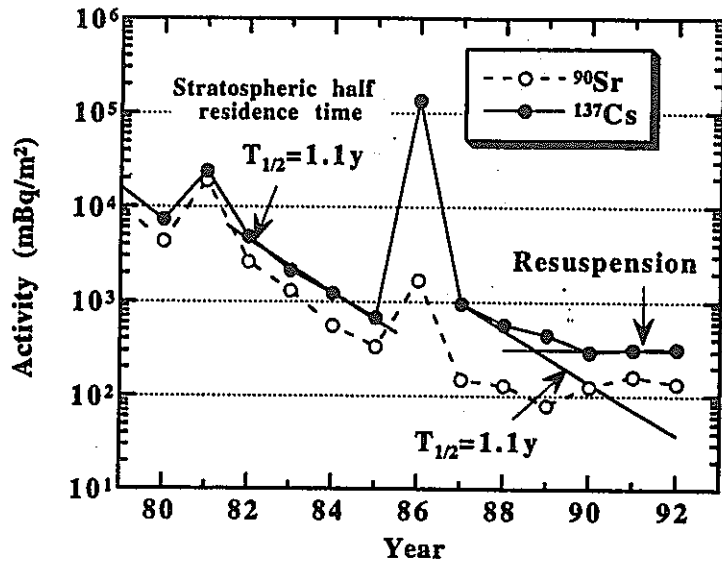


図4-26 成層圏滞留半減期と降下量予測

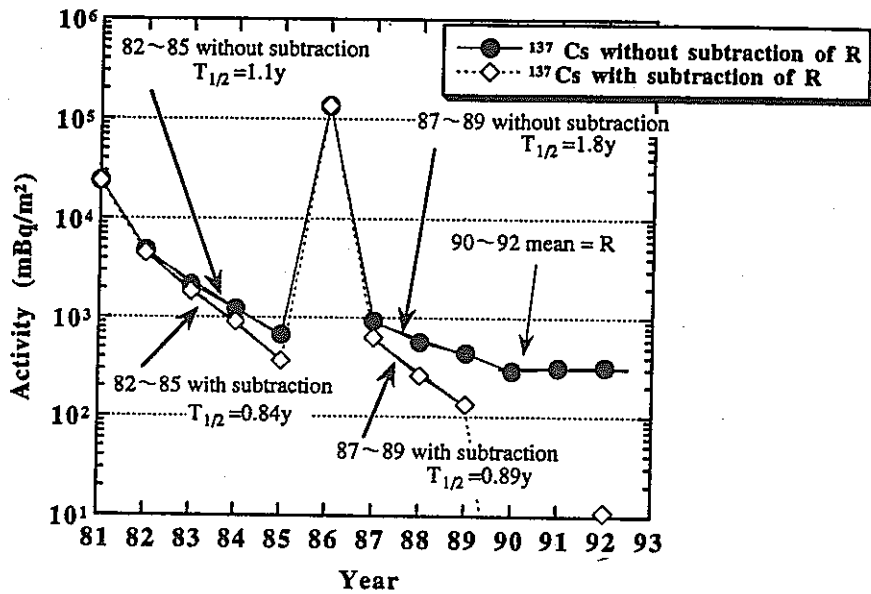


図4-27 降下量に対する成層圏フォールアウトと舞い上がりの寄与

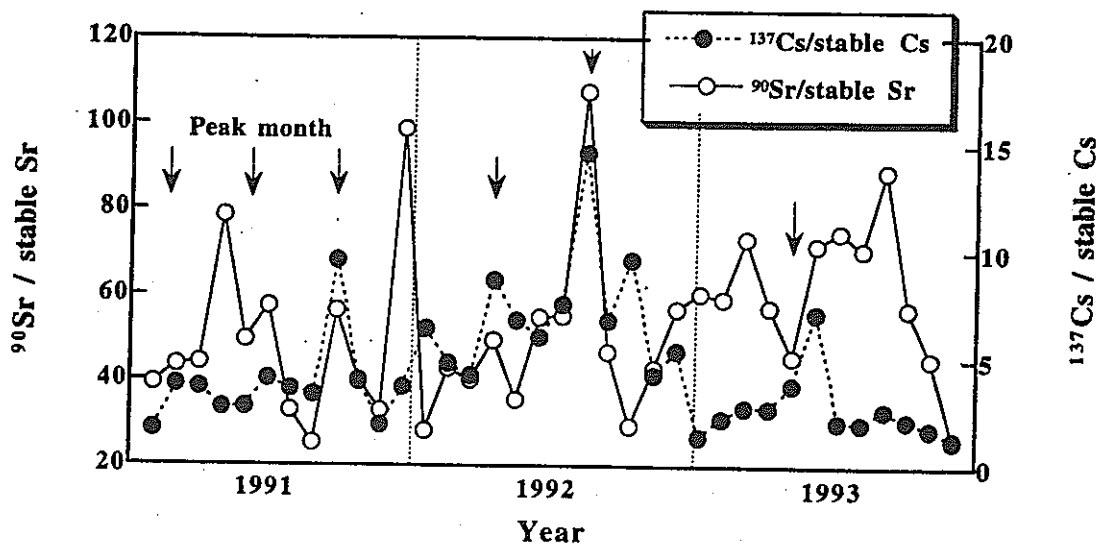


図4-28 r/s比の変動

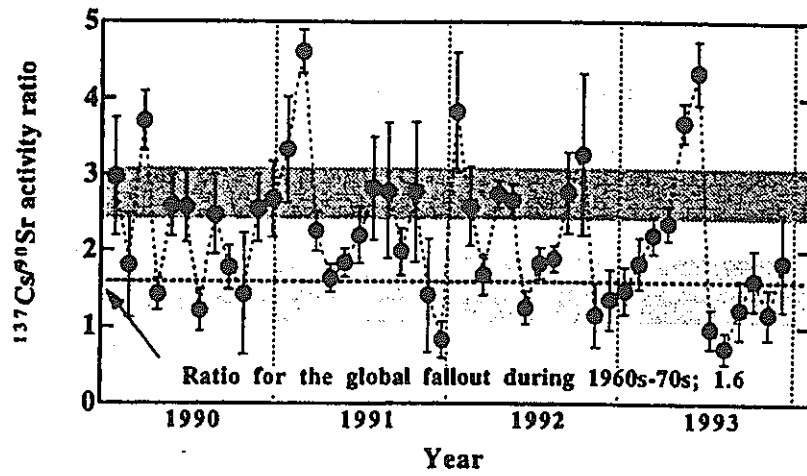


図4-29 降下物中の $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比の変動

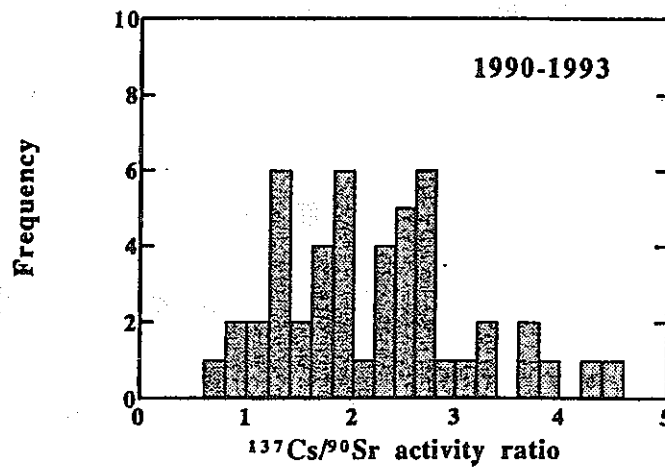


図4-30 降下物中の $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 比頻度分布

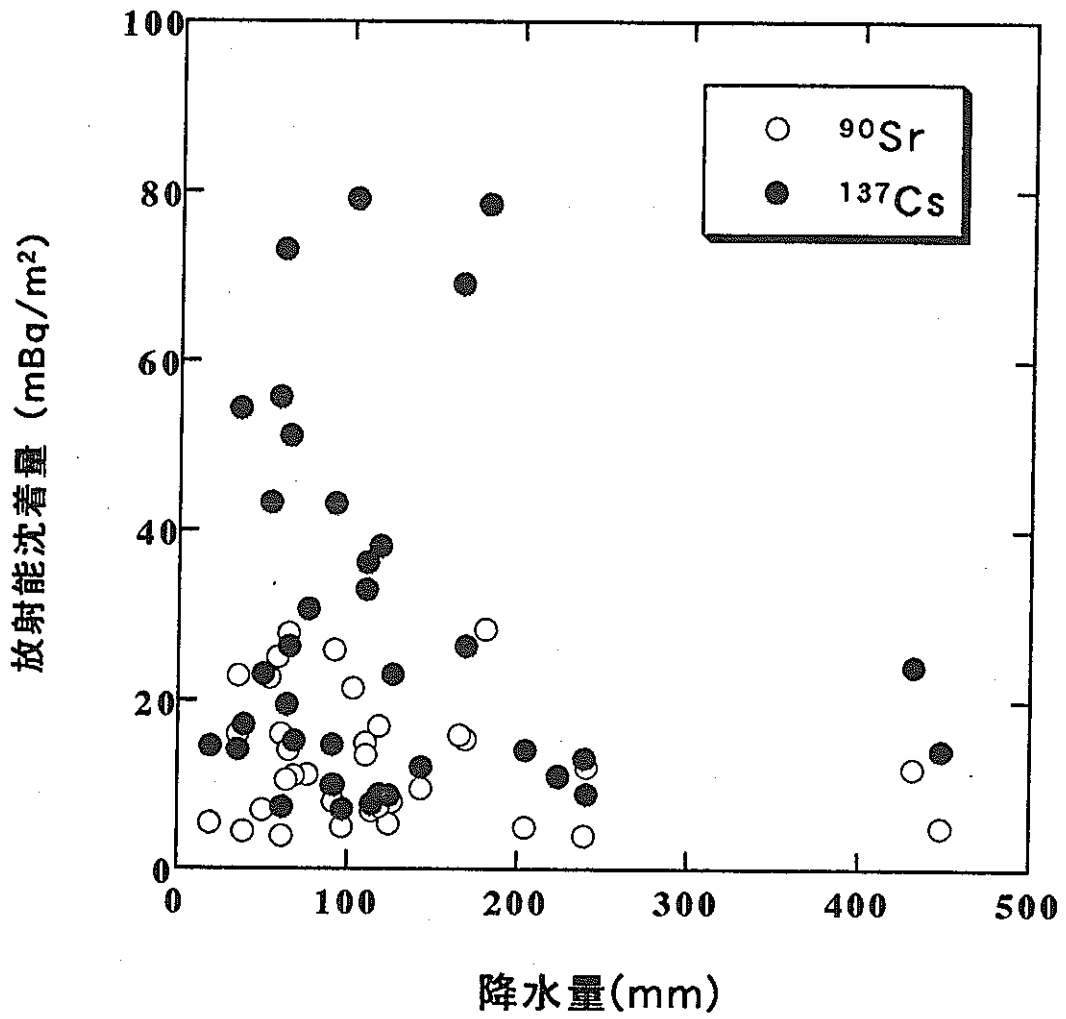


図4-31 降水量と放射能沈着量との関係

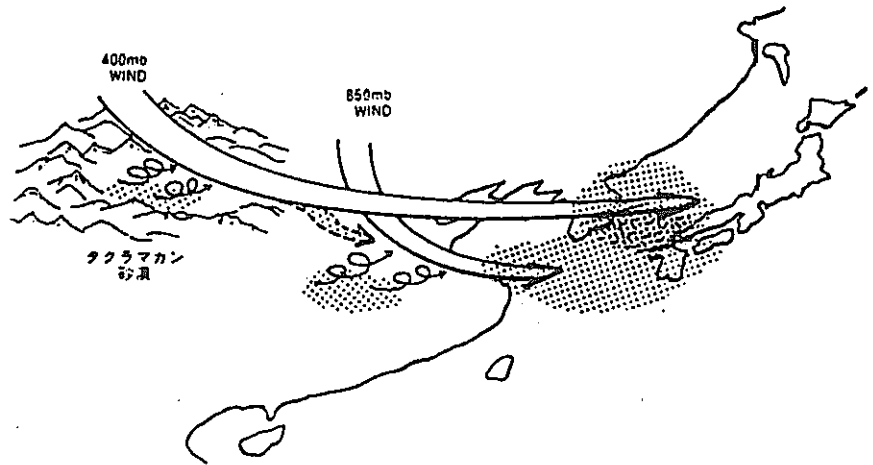


図4-32 黄砂を含んだ大気の移動

(名大水圏科学研究所編 「大気水圏の科学-黄砂」より引用)

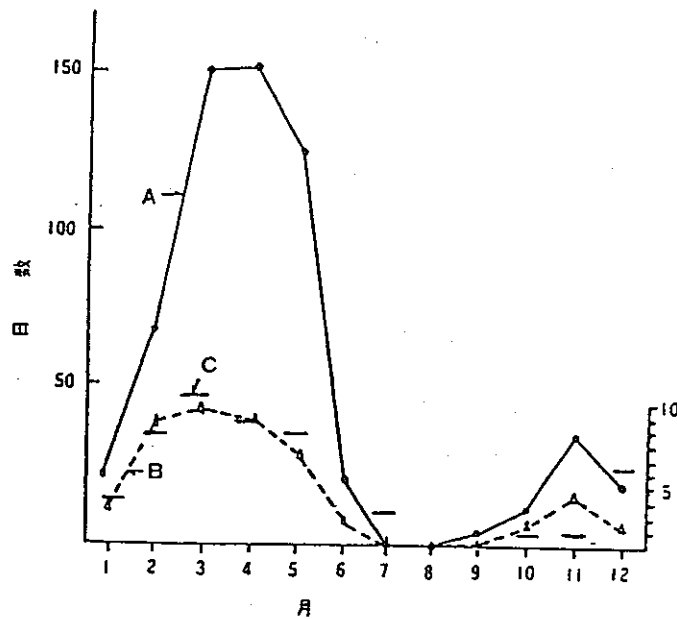


図4-33 日本における黄砂現象発現頻度の季節変化

- A) 1914 ~79 年 65 年間の日本における月別発生日数 (実線)
 - B) 1952 ~79 年の沖縄における 27 年間の 26 回の黄砂現象 (任意尺度、破線)
 - C) 古文書に現われた黄砂現象で確からしいもの (回数、右側尺度)
- (名大水圏科学研究所編 「大気水圏の科学-黄砂」より引用)

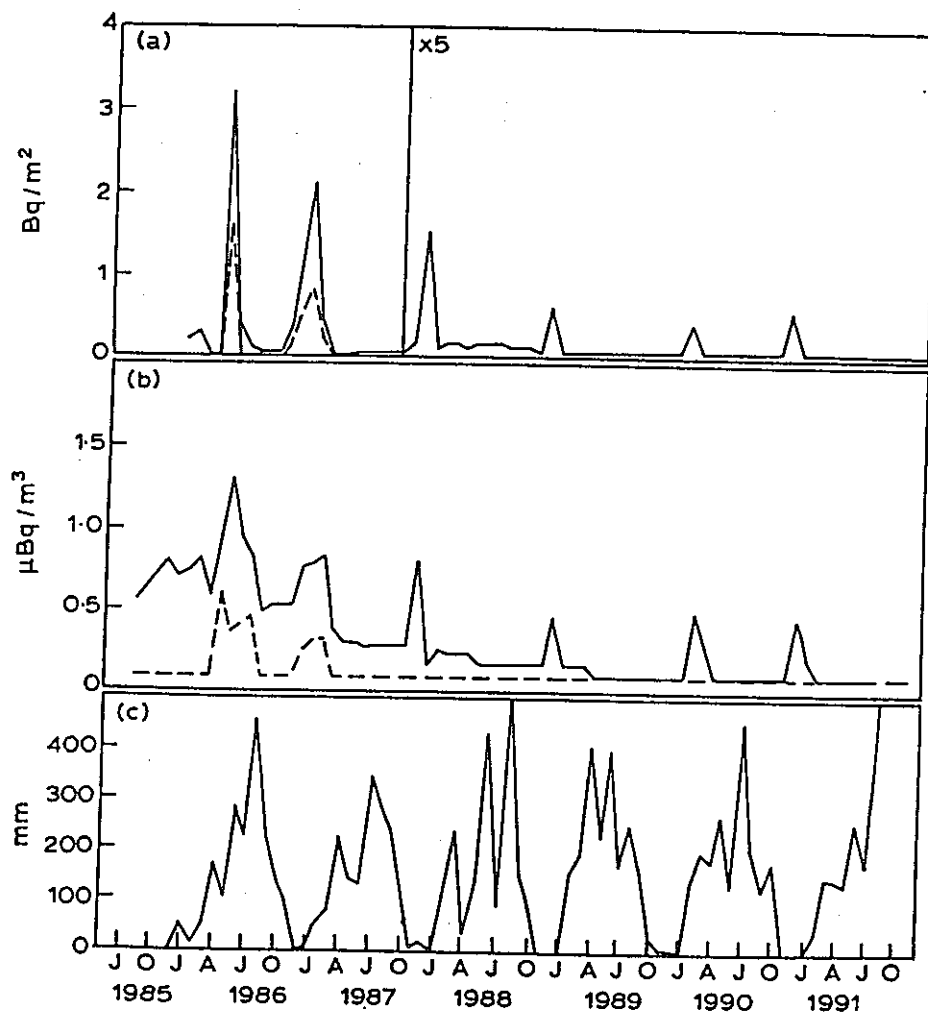


Fig. 1. Monthly variations of caesium isotope concentrations in fallout and air at Dalat, 1986-91. (a) Cs-137 (—), Cs-134 (· · · · · ·) in fallout. (b) Cs-137 (—), Cs-134 (· · · · · ·) in air. (c) Monthly precipitation.

図4-34 ベトナム ダラット市における降下物および大気中の放射性セシウム同位体の
月間変動 (a) 降下量 (b) 大気中濃度 (c) 月間降水量

4.5 プルトニウム-241

現在の環境中には、種々の人工的な汚染源からのプルトニウム(94番元素:Pu)同位体、主に ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Pu が広く分布存在している(図4-35,表4-8)。局地的な汚染地域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る(表4-9)。環境試料中のプルトニウム分析では、 α 線放射体の ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu (後者の ^{239}Pu と ^{240}Pu は α 線エネルギーが接近していてSi検出器による α 線スペクトロメトリーでは弁別不可能なので両者の和 $^{239,240}\text{Pu}$ として定量される)が主に測定され、 β 線放射体の ^{241}Pu についてはほとんど測定されない。

^{241}Pu は、軟 β 線($E_{\max} = 20.8 \text{ keV}$, $T_{1/2} = 14.4 \text{ y}$)を放出するので、それ自身放射線影響の面からは重要ではないが娘核種 ^{241}Am (α , $T_{1/2} = 433 \text{ y}$)、さらに ^{237}Np (α , $T_{1/2} = 2.14 \times 10^6 \text{ y}$)との関連で注目されている。核実験時には表4-9に示すごとくプルトニウム同位体の中で放射能的に最も多く存在している。

4.5.1 化学分離・測定法

環境試料中の ^{241}Pu 測定は、化学分離・精製が必須であり、その後①ステンレス板上に電着したPu線源を1~2年間放置して ^{241}Pu から成長してくる ^{241}Am を α 線スペクトロメトリーで測定して間接的に ^{241}Pu を定量する方法(成長 ^{241}Am 測定法)、②液体シンチレーションカウンターで ^{241}Pu の β 線を直接測定する方法、および③電着したPu線量を用いて、ガスフローカウンターで測定する方法がある。最もよく用いられている方法は、最近発達の著しい低バックグランド液体シンチレーションカウンターを用いる方法である。

液体シンチレーションカウンターを用いて、比較的簡便に ^{241}Pu を測定できる五十嵐ら¹⁾の方法を記す。環境試料中のPuをまず、化学収率補正用のトレーサーとして、一定量の ^{242}Pu を添加した後、科学技術庁編「プルトニウム分析法」に準じて化学分離・精製を行う。得られたPuフラクションを2等分し、一方を蒸発乾固後1N HCl 5mlに溶解し、乳化シンチレーター(インスタゲル)95mlと共に100mlのテフロン容器に入れて低バックグランド液体シンチレーションカウンター(Aloka, LB-1)で測定を行う。2等分したもう一方のPuフラクションは蒸発乾固後、ステンレス板上にPuを電着し、

α 線スペクトロメトリーを行う(図4-36)。液体シンチレーションカウンターでは、 ^{241}Pu の β 線と ^{238}Pu , 239 , ^{240}Pu 及びトレーサーとして添加した ^{242}Pu の α 線を計測する。表4-10に測定条件を示す。 ^{241}Pu の β 線はHチャンネルで、 α 線はPチャンネルで行う。計数効率 ϵ はPu標準液を用いて決定したがHチャンネルでの ^{241}Pu の計数効率 ϵ はエネルギーが似ている ^3H の計数効率と同一であった。液体シンチレーションカウンターのみの測定からは ^{241}Pu の絶対量を算出することは化学収率が100%でないかぎり不可能である。それ故、液体シンチレーションカウンターと α 線スペクトロメトリーより得られるデータから $^{241}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$ 放射能比(R)をまず下記式より算出し、 α 線スペクトロメトリーで求めた $^{239, 240}\text{Pu}$ 濃度をそれに乗ずることにより ^{241}Pu 放射能の絶対量を求めることができる。

$$R = \frac{\text{CLSC}(\beta)}{\text{CLSC}(\alpha)} \cdot \frac{\text{ELSC}(\alpha)}{\text{ELSC}(\beta)} \cdot \frac{\alpha(\text{Total})}{\alpha(^{239, 240}\text{Pu})}$$

$\text{CLSC}(\beta)$ = LSCでの ^{241}Pu 計数率

$\text{CLSC}(\alpha)$ = LSCでの全 α 計数率

$\text{ELSC}(\beta)$ = LSCでの ^{241}Pu 計数効率

$\text{ELSC}(\alpha)$ = LSCでの α 線計数効率

$\alpha(\text{Total})$ = α 線スペクトロメトリーでの全 α 線計数率

$\alpha(^{239, 240}\text{Pu})$ = α 線スペクトロメトリーでの $^{239, 240}\text{Pu}$ の計数率

$$^{241}\text{Pu放射能} = R \times ^{239, 240}\text{Pu放射能}$$

$$^{239, 240}\text{Pu放射能} = \alpha\text{線スペクトロメトリーにより算出}$$

上記の方法と多少異なる方法としてPu電着線源を直接バイアル容器に入れ、シンチレーターを加えて液体シンチレーションカウンターで計数する方法が報告されている⁴⁾。この方法は多少計数効率 ϵ が下がる点 ϵ は否めないが、Puフラクションを2等分しなくてもよいので放射能的には多くあり、迅速のように思える。この場合も上記したようにまず α 線スペクトロメトリーで全 α 、あるいは $^{239, 240}\text{Pu}$ 計数率 ϵ を求め、その後液体シンチレーションカウンターで計測する。低バックグランド液体シンチレーションカウンター

Quantulus1220™ を用いて実験を行った際のスペクトルおよび FOM (Figure of Merit) を図4-37と表4-11にそれぞれ示しておく。

4.5.2 測定例

(a) Holmら²⁾は1961年から1975年にかけて採取したスウェーデンの Lichen (地衣類) 中の²⁴¹Pu を他の Pu 同位体²³⁸Pu, ²³⁹, ²⁴⁰Pu と共に分析した。²⁴¹Pu は、²³⁸Pu および²³⁹, ²⁴⁰Pu 測定用に作製した電着線源を2～3年保存し、²⁴¹Pu から成長する²⁴¹Amをα線スペクトロメトリーで定量することで間接的に評価した。主な結果を図4-38と図4-39に示す。同様な手法を用いて Holm らは地中海の未口過海水および懸濁物中の²⁴¹Pu の測定も行った³⁾。

(b) 五十嵐ら¹⁾は上記した方法を用いて福井県若狭湾周辺の環境試料中の²⁴¹Pu/²³⁹, ²⁴⁰Pu 放射能比を測定した。表4-12に福井県美浜町の丹生湾から年代別に採取した堆積物について、液シン測定法と成長²⁴¹Am 測定法で求めた²⁴¹Pu/²³⁹, ²⁴⁰Pu 放射能比の結果を示す。両方法での測定値はよく一致していることがわかる。図4-40に陸土および海底土中のこの比の経年変化を示すが、この比がほぼ²⁴¹Pu の物理的半減期 (14.4 y) で減少している。また土壌や堆積物の他に松葉やホンダワラ関連についての試料およびチェルノブイリ原発事故関連で降下物試料についても²⁴¹Pu/²³⁹, ²⁴⁰Pu 比を測定しており、その結果を表4-13および表4-14にそれぞれ示した。なお、参考のために Buzinnyらのチェルノブイリ原発事故関連の試料についての結果を表4-15および表4-16に示しておく。

(c) フィンランドの Paateroら⁵⁾はチェルノブイリ原発事故との関連でフィンランドの Lichen-Carpet や peat 試料中の²⁴¹Pu を五十嵐らの方法とほぼ同じ方法で測定した (図4-41, 4-42)。表4-17, 4-18 に主な結果を示すが²⁴¹Pu/²³⁹, ²⁴⁰Pu 放射能比は現在一般環境で見い出せる2～3に比べて数十倍高い。

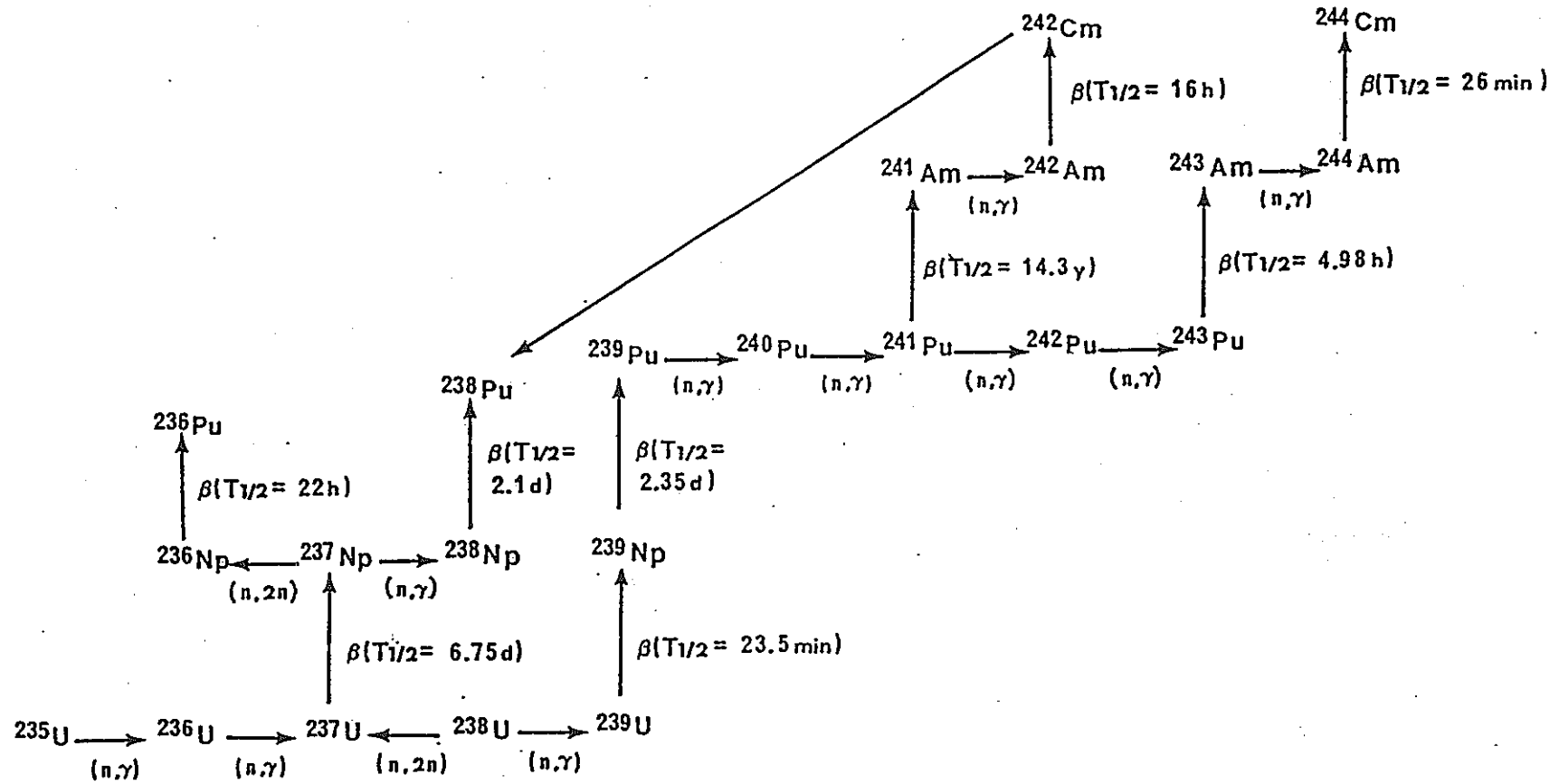
(d) イギリスのセラフィールド再処理工場からの放射性廃液で汚染されているアイリッシュ海の沿岸堆積物中の²⁴¹Pu を桑原ら⁶⁾は五十嵐らの方法で測定した。表層堆積物の採取地点を図4-43に、測定結果を表4-19と表4-20に示した。表層堆積物の

$^{241}\text{Pu}/^{239},^{240}\text{Pu}$ 放射能比は、地点間での差はそれほどなく17~21の範囲にあった。

以上いくつかの測定例を述べてきたが、環境試料中の $^{241}\text{Pu}/^{239},^{240}\text{Pu}$ 放射能比はPu汚染源によって非常に異なるので、この比による検討がPu汚染源の由来を知る上で参考になる。

参考文献

- 1) 五十嵐修一, 山本政儀, 伊藤希一郎: 環境試料中の $^{241}\text{Pu}/^{239},^{240}\text{Pu}$ 放射能比の定量, 福井県衛生研究所年報, 26, 60-64 (1987).
- 2) H. Holm, R. B. R. Persson: Radiochemical studies of ^{241}Pu in Swedish reindeer lichens, Health Phys., 33, 471-473 (1977).
- 3) R. Fukai, E. Holm, S. Ballastra: ^{241}Pu in the Mediterranean Sea, in Isotope marine chemistry, Uchida Rokakuho Pub. Co., Ltd., Tokyo Japan, p.1-8 (1980).
- 4) M. Buzinny, I. Los, N. Tsigankov, S. Soroka: Monitoring of ^{241}Pu in Soil of Ukraine, (Paper to be presented to LSC 94 in Glasgow 8-12 August 1994).
- 5) J. Paatero, T. Jaakkola: Determination of the ^{241}Pu deposition in Finland after the Chernobyl accident, Radiochim. Acta, 64, 139-144 (1994).
- 6) J. Kuwabara, M. Yamamoto, D. J. Assinder, K. Komura, K. Ueno: Sediment profile of ^{237}Np in the Irish Sea - Estimation of the total amount of ^{237}Np discharged from Sellafield, Radiochim. Acta, 1996 (in press).



Formation scheme of transuranium elements

図4-35 超ウラン元素の生成スキーム

表4-8 環境中の 超ウラン元素の推定存在量 (1988年1月 現在)

Estimated amounts of long-lived radionuclides
in the environment in January 1988

Nuclides	Content			Activity ratio
	(kg)	(TBq)	(kCi)	
^{99}Tc	270	170	4.6	1×10^{-2}
^{129}I	57	0.4	0.01	3×10^{-5}
^{237}Np	2000	52	1.4	4×10^{-3}
$^{238}\text{Pu}^*$	1.4	890	24	7×10^{-2} (3×10^{-2})**
^{239}Pu	3400	7700	210	} 1
^{240}Pu	680	5700	150	
^{241}Pu	14	52000	1400	4
^{241}Am	32	4100	110	3×10^{-1}

*: Represents 16 kCi from SNAP-9A and 8 kCi from weapons tests.

** : Value in the northern hemisphere.

表4-9 環境中で検出される（可能性がある）超ウラン元素諸核種

Transuranium elements detected in the environment

Isotope	Half-life	Mode of decay	E_{α} (MeV)
^{237}Np	$2.14 \times 10^6 \text{ y}$	α	4.788, 4.771
^{239}Np	2.36 d	β^-	
^{238}Pu	87.7 y	α	5.499, 5.456
^{239}Pu	24110 y	α	5.157, 5.144
^{240}Pu	6550 y	α	5.168, 5.124
^{241}Pu	14.4 y	β^-	
^{242}Pu	$3.76 \times 10^5 \text{ y}$	α	4.901, 4.856
^{241}Am	433 y	α	5.486, 5.443
^{242}Am	16.0 h	β^- , EC	
$^{242}\text{Am}^m$	141 y	IT	
^{242}Cm	163 d	α	6.113, 6.069
^{243}Cm	28.5 y	α	5.785, 5.741
^{244}Cm	18.1 y	α	5.805, 5.763

Data from C.M Lederer, V.S. Shirley, Eds., Table of Isotopes, 7th Ed., J. Wiley & Sons, New York (1978).

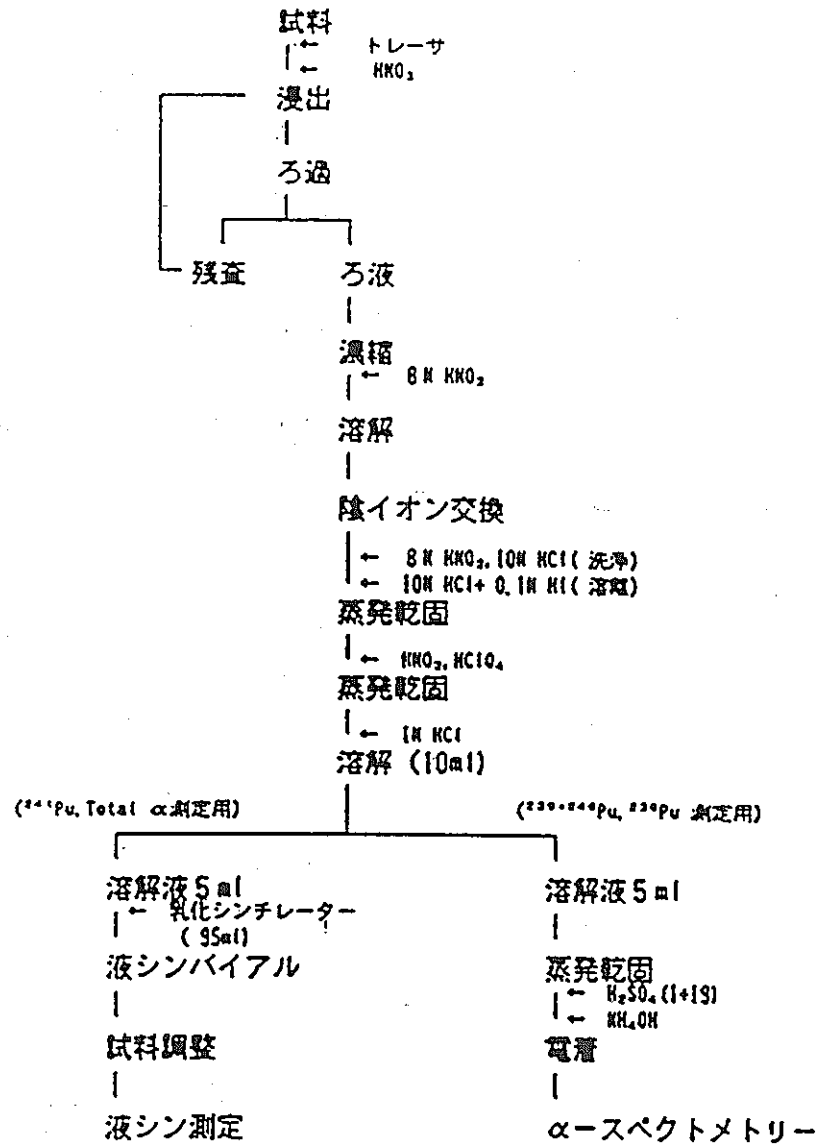


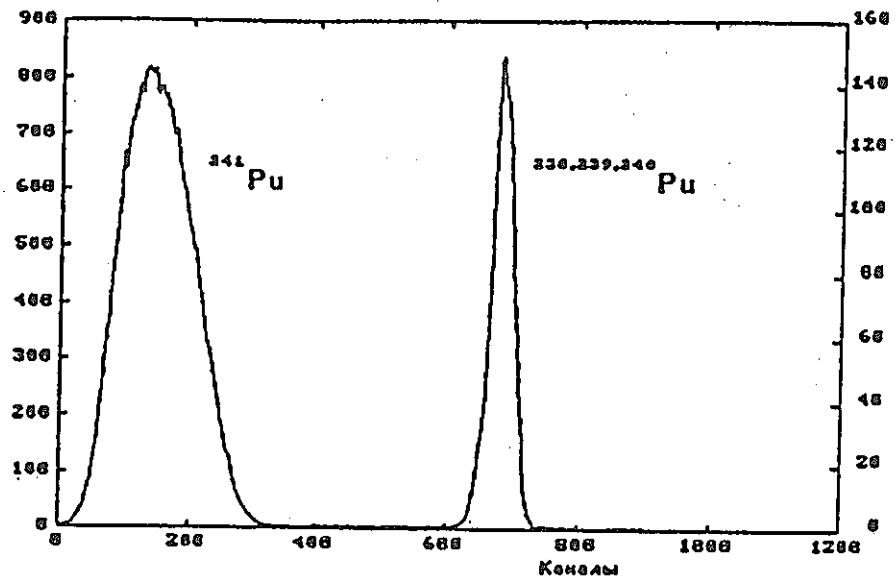
図4-36 プルトニウム (^{241}Pu) 定量の分析・測定スキーム

表4-10 液体シンチレーションカウンターによる β (^{241}Pu) と α 計測条件

液体シンチレーションカウンターの計測条件 (^{241}Pu , Total α 測定)

チャンネル	H	C	P
ゲイン	0.5×100	0.5×10	0.5×1
ウィンドウ	50 ~ 600	60 ~ 750	150 ~ 640
バックグランド (cpm)	5	18	8
計数効率 (%)			
β ^{241}Pu	23.9		
^3H	24.0	0.17	0
α ^{239}Pu	0	0.38	97.0
検出限界値 (pCi)	0.8		0.3

* 使用機器: Aloka LB-1
 測定条件: 100ml テフロンバイアル (1N HCl 溶液 5ml + 乳化シンチレーター 95ml)
 計測時間: 500 分



α - and β - spectra of chemical separated (extracted) plutonium in hot particle N217506.

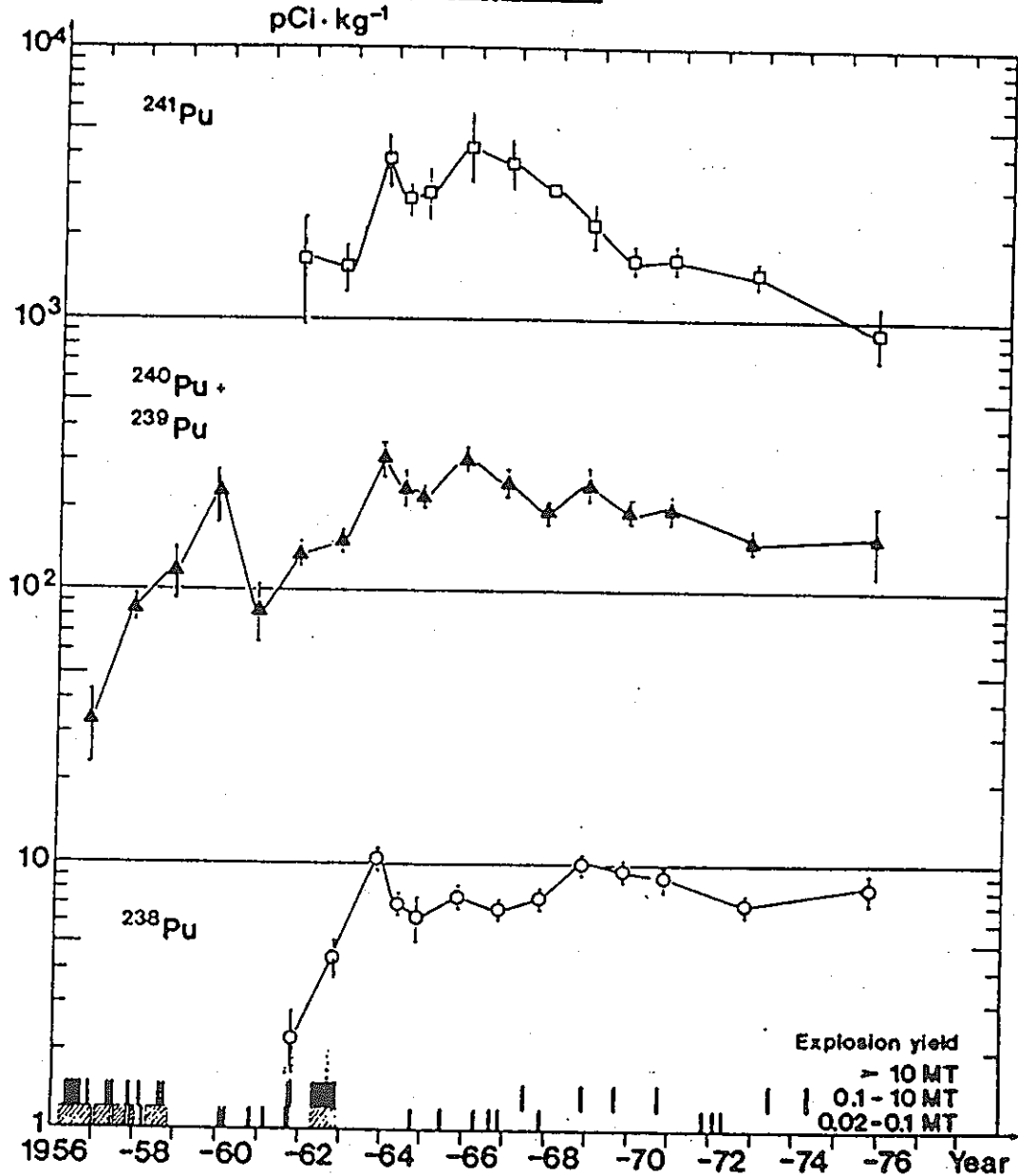
図4-37 チェルノブイリ原発事故由来のhot particle 中の化学分離・精製したPuフラクションについての β (^{241}Pu)と α -スペクトル(液シン: QuantulusTM)

表4-11 Pu 電着線源を用いての液シン測定の実率、BG および FOM の比較

Performances for ^{241}Pu on metal plate counting.

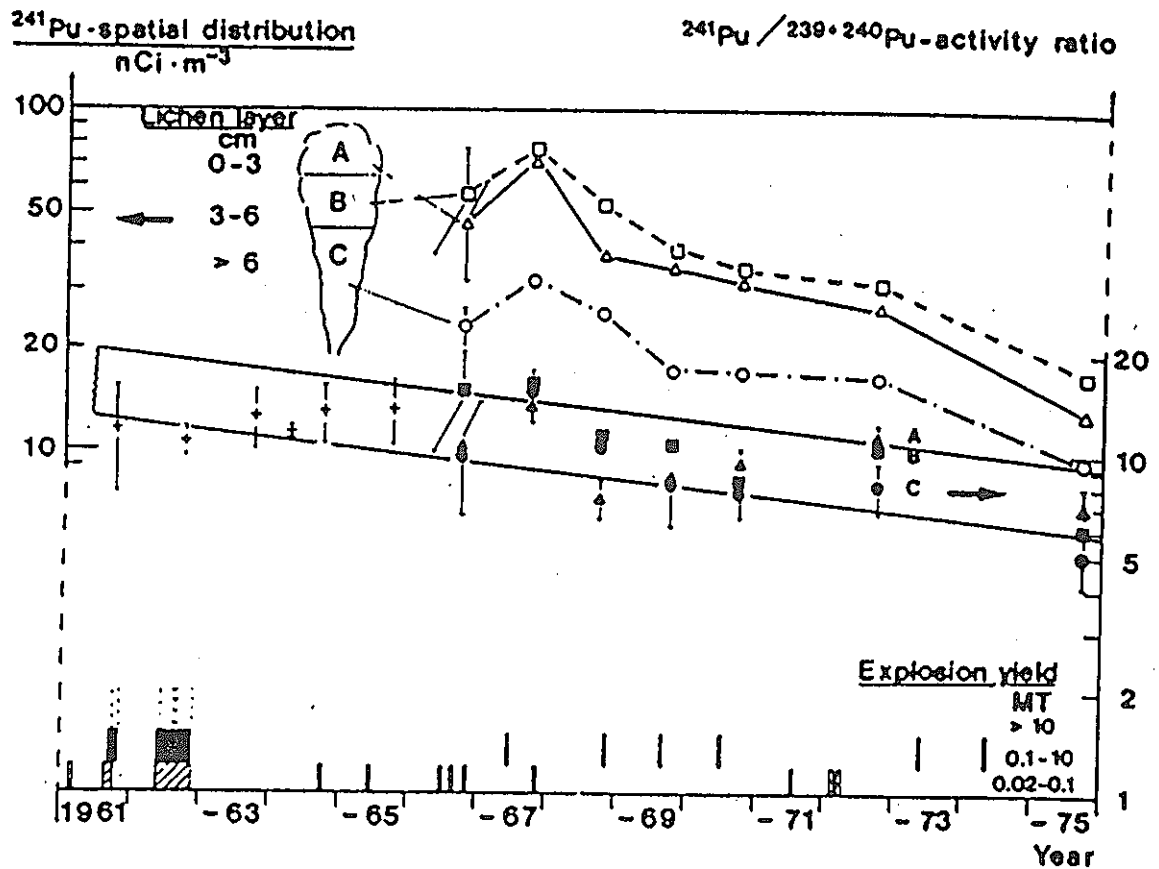
Vial	Efficiency (E)	Background (B) CPM	FOM (E^2 / B)
3 ml	9.5%	0.32	282
7 ml	15%	0.55	409
15 ml	16%	0.67	382
20 ml	18%	0.98	331

Pu-activity concentrations in dry lichen



The activity concentration of the various plutonium isotopes found in lichen carpets collected at different places in Scandinavia during 1956–1975. The uncertainty limits indicate 1 S.E.

図4-38 スカンジナビアの種々の地域で採取した地衣類 (Lichen) の Pu 同位体濃度の経年変化



^{241}Pu activity concentration and $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ activity ratio in the different layers. A (0–3 cm), B (3–6 cm) and C (6–12 cm) of the *Cl. alpestris* carpet sampled during 1966–1975. The values before 1966 are averaged for the whole lichen carpets. The uncertainty limits indicate 1 S.E. The delimited area is the $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ activity ratio in the fallout of the 1961–1962 nuclear weapons tests.

図4-39 地衣類の各層での ^{241}Pu 濃度と $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比の推移

表4-12 海底土、陸土中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度と $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比
 (液シンおよび成長 ^{241}Am 測定法の比較)

試料	採取地点	採取年月日	$^{239,240}\text{Pu}$ 濃度	$^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比 ^{*1}	
				液シン計測法	成長 ^{241}Am 測定法
海 底 土	丹生湾 (美浜町)	S. 39. 11. 10	39±3	12.0±2.0	12.4±2.0
		46. 3. 17	196±14	7.9±0.2	8.4±1.4
		48. 11. 1	128±8	6.5±0.3	8.9±1.4
		49. 11. 6	97±7	7.3±0.3	7.4±1.3
		51. 11. 17	159±10	6.6±0.3	7.9±1.2
		52. 7. 20	153±8	6.1±0.3	6.5±1.2
		53. 4. 19	103±6	5.7±0.3	6.5±1.0
		57. 10. 21	95±5	5.5±0.2	
	浦底湾 (敦賀市)	60. 4. 25	36±2	3.9±0.3	
		61. 4. 23	58±3	3.9±0.3	
陸 土	冠山 (武生市)	53. 11. 26	340±15	5.3±0.1	5.4±0.6
		60. 10. 27	330±14	4.2±0.1	
	奥越高原 (勝山市)	57. 7. 13	235 21	5.3±0.1	
		61. 7. 18	181 12	4.0±0.1	

*1: 試料採取時に補正した値

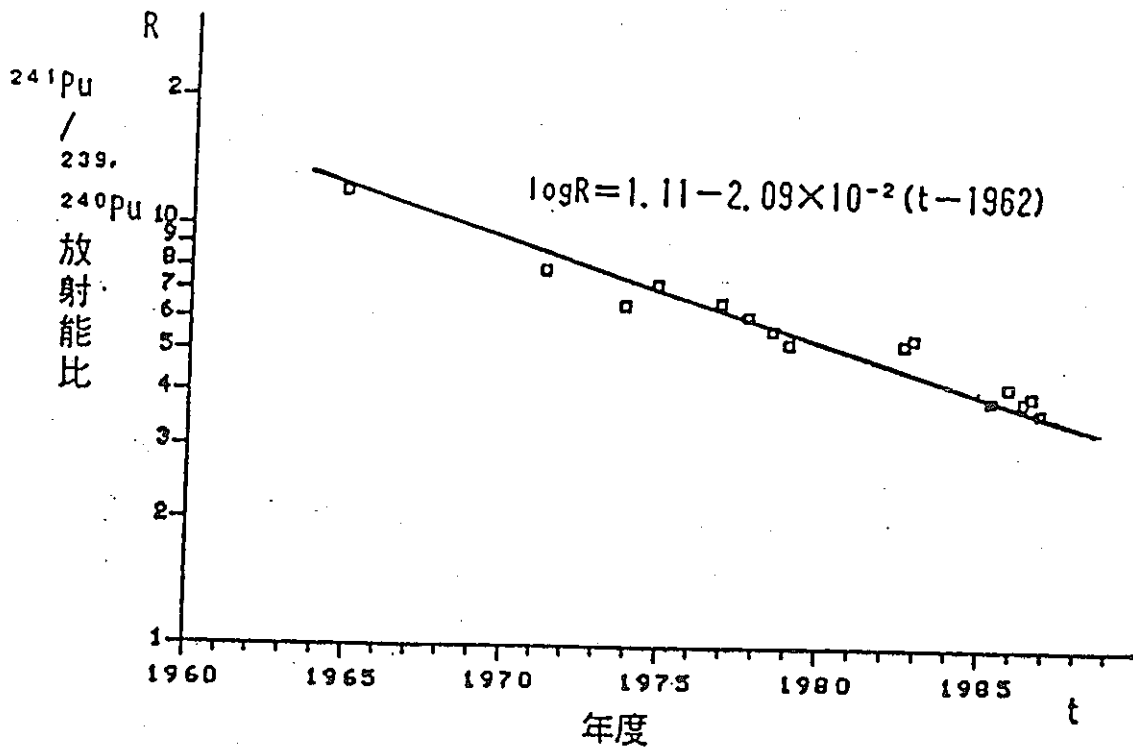


図4-40 陸土および海底土についての $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比の経年変化

表4-13 松葉、ホンダワラ中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度および $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比

試料	採取地点	採取年月日	$^{239,240}\text{Pu}$ 濃度		$^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比 ^{*1}	
			(pCi/kg生)		液シン計測法	成長 ^{241}Am 測定法
松葉	福井市	S. 50. 6. 24	1.62±0.08		8.2±0.3	
		53. 9. 3	1.73±0.07		10.4±0.5	
		54. 11. 4	0.41±0.03		9.6±1.9	
		56. 11. 6	0.39±0.03		14.8±4.7	
		60. 4. 26	0.05±0.006		—	
(参考)			(pCi/m ²)			
降下物	福井市	53. 3月	7.91±0.34			12.0±1.6
		53. 4月	2.60±0.14			12.6±1.6
		53. 12月	1.10±0.05			10.2±1.5
		54. 2月	2.11±0.10			11.0±0.9
ホンダワラ	敦賀市 美浜町	61. 6. 12	1.03±0.09		4.44±0.78	
		61. 6. 11	1.00±0.09		4.22±1.02	

*1 : 試料採取時に補正した値

表4-14 チェルノブイリ原発事故関連試料中のPu濃度および放射能比

試料	採取期間	$^{239+240}\text{Pu}$		
		(pCi/m ²)	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
福井 降下物	S. 61. 4 ~6	0.13 ±0.02	0.19 ±0.07	
	7 ~S. 62. 3	0.21 ±0.02	0.05 ±0.02	
石川 降下物	S. 61. 5	0.10 ±0.02	0.24 ±0.07	
広域* 降下物	S. 61. 4 ~S. 62. 3	0.20 ±0.01	0.11 ±0.02	18 ± 2
広域* 浮遊じん	S. 61. 5. 2 ~ 6. 6	(9.2±1.1)×10 ⁻⁷ (pCi/kg 生)	0.28 ±0.07	
松葉	S. 62. 2. 21	0.04 ±0.004	0.09 ±0.03	14 ± 4

* : 広域試料は福井県内の5地点での集合試料である。

表4-15 キエフ周辺で採取した土壌からの hot particle 中のPu 同位体の濃度

Plutonium isotopes activities in some of the hot particles collected from the soil samples, recalculated at accidental moment (April 26, 1986), Bq

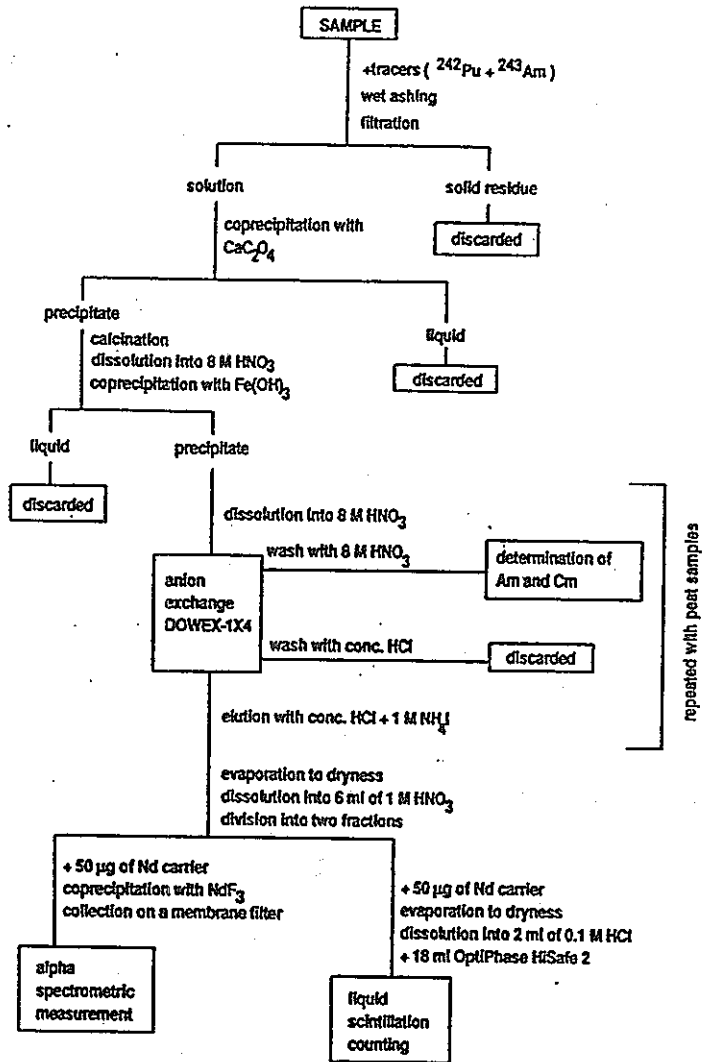
N	²⁴¹ Pu	²³⁸ Pu+ ²³⁹ Pu+ ²⁴⁰ Pu	β/α
1	110.4	2.0	54.7
2	1041.0	18.2	57.0
3	0.85	0.02	56.2
4	484.1	8.4	57.3
5	19.5	0.26	73.1
6	43.8	0.71	61.1
7	183.3	2.9	62.5
		Average	60.2

表4-16 キエフ周辺で採取した植物中のPu 同位体の濃度 (1986年での値)

Plutonium isotope activities in 1986 grown plant ash samples, (Bq·kg⁻¹).

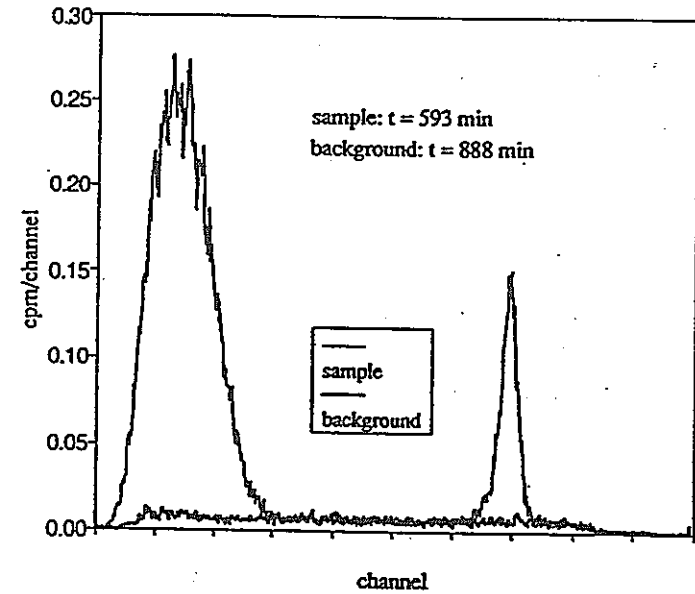
N	Sample	Date	²⁴¹ Pu	^{238,239,240} Pu	β/α
435	leaves	03.05.86	5312	130.5	40.7
438	grass	03.05.86	4585	136.0	33.7
3299	pine	25.07.86	206	16.1	12.8
3300	leaves (lime tree)	28.07.86	1768	40.6	43.6
3306	grass	28.07.86	387	10.4	37.3
3476	pine	11.08.86	1015	89.5	17.9
3580	leaves (lime tree)	26.08.86	2614	255.5	10.2
				Average	28.0

DETERMINATION OF Pu-241



Separation of ²⁴¹Pu from peat and lichen samples.

図4-41 ピートおよび地衣類(Lichen)からの ²⁴¹Pu 分離・精製



Liquid scintillation spectra of plutonium and background.

図4-42 液シン (Quantulus 1220) によるPu および BG スペクトル

表4-17 地衣類の²⁴¹Pu 放射能濃度 (1986年5月)

Table 1. The ²⁴¹Pu activity concentrations in lichen (Bq kg⁻¹ dry weight and Bq m⁻²) 1 May 1986. The error indicated is the combined 1 σ counting error from liquid scintillation counting and α spectrometry. The letters L and U before the sample number indicate lower and upper parts of the lichen and the letter K indicates litter separated from the sample

Sample No./year	Location °N, °E	²⁴¹ Pu Bq kg ⁻¹	²⁴¹ Pu Bq m ⁻²	$\frac{^{241}\text{Pu}}{^{239,240}\text{Pu}}$
L401/87	Huittinen	10.6 ± 0.9	6.5 ± 0.6	41 ± 9
U401/87	61.2, 22.8	40.6 ± 1.5	47 ± 2	80 ± 20
L414/87	Kalanti	121 ± 3	77 ± 2	78 ± 7
U414/87	60.8, 21.5	96 ± 3	78 ± 3	115 ± 15
L421/87	Sotkamo	88 ± 3	45.1 ± 1.4	75 ± 6
U421/87	64.0, 28.8	118 ± 4	90 ± 3	92 ± 6
10/87	Inari	<1.4	<2	
	69.1, 27.1			
L439/88	Huittinen	84 ± 5	45 ± 3	90 ± 6
U439/88	61.2, 22.8	19 ± 2	13.1 ± 1.3	98 ± 12
L434/88	Kalanti	168 ± 10	48 ± 3	80 ± 6
U434/88	60.8, 21.5	204 ± 11	88 ± 5	89 ± 7
K434/88		82 ± 6	148 ± 12	37 ± 4

表4-18 チェルノブイリ原発事故からの ²⁴¹Pu/^{239,240}Pu 放射能比、²⁴¹Pu 蓄積量 および 2059年における ²⁴¹Am/^{239,240}Pu 放射能比の推定

No.	Location	$\frac{^{241}\text{Pu}}{^{239,240}\text{Pu}}$	S	²⁴¹ Pu Bq m ⁻² from Chernobyl	$\frac{^{241}\text{Am}(2059)}{^{239,240}\text{Pu}}$
10	Kankaanpää	55 ± 4	0.968	412 ± 22	1.90
11	Kankaanpää	72 ± 8	0.986	150 ± 13	2.41
15	Punkalaidun	35 ± 9	0.926	42 ± 11	1.32
16	Köyliö	19.4 ± 1.4	0.829	197 ± 14	0.84
18	Loimaan mlk	46 ± 10	0.953	49 ± 10	1.62
19	Janakkala	9.4 ± 0.5	0.599	23 ± 2	0.54
20	Riihimäki	47 ± 7	0.955	27 ± 3	1.66
21	Hankasalmi	9.7 ± 0.7	0.612	20 ± 2	0.55
22	Leivonmäki	3.9 ± 0.4		0.0	0.38
25	Viitasaari	48 ± 5	0.958	134 ± 13	1.70
26	Pihtipudas	47 ± 4	0.956	187 ± 11	1.67
37	Juva	4.4 ± 0.3	0.096	1.7 ± 1.1	0.40
40	Joutseno	11.8 ± 0.9	0.689	8.5 ± 0.9	0.61
41	Rautjärvi	3.8 ± 0.3		0.0	0.38
42	Punkaharju	3.8 ± 0.2		0.0	0.38
44	Taipalsaari	4.9 ± 0.8	0.195	1.6 ± 1.4	0.41
45	Valkeala	11.4 ± 1.1	0.679	51 ± 6	0.61
46	Haukivuori	15.0 ± 1.1	0.765	13.9 ± 1.2	0.71
47	Mikkelin mlk	4.9 ± 0.5	0.190	3 ± 2	0.41
51	Tuupovaara	3.9 ± 1.1		0.0	0.38
52	Pyhäselkä	4.6 ± 0.9	0.142	2 ± 3	0.40
54	Rautavaara	21 ± 3	0.843	84 ± 12	0.88
56	Suonenjoki	82 ± 11	0.993	42 ± 5	2.70
57	Pielavesi	23 ± 3	0.864	140 ± 20	0.95
60	Kiuruvesi	53 ± 6	0.965	240 ± 20	1.84
61	Kiuruvesi	14.1 ± 1.1	0.747	82 ± 8	0.68
62	Kiuruvesi	28.1 ± 1.0	0.895	144 ± 5	1.10
64	Sonkajärvi	34 ± 3	0.921	250 ± 20	1.27
65	Ilomantsi	4.9 ± 0.4	0.198	5 ± 2	0.41
95	Vimpeli	12.2 ± 0.7	0.701	23 ± 2	0.63
99	Jalasjärvi	37 ± 3	0.931	171 ± 11	1.36
100	Peräseinäjoki	59 ± 4	0.973	110 ± 7	2.00
110	Köyliö	22 ± 3	0.855	79 ± 11	0.92
111	Loimaa	4.6 ± 0.7	0.143	1.4 ± 1.4	0.40
135	Kerimäki	5.0 ± 0.2	0.215	6.4 ± 1.4	0.42
136	Mikkelin mlk	4.6 ± 0.3	0.143	2.5 ± 1.1	0.40
140	Lieksa	4.5 ± 0.5	0.125	10 ± 9	0.40
143	Valtimo	33 ± 3	0.918	350 ± 30	1.25
144	Rautavaara	35 ± 10	0.923	350 ± 90	1.29
148	Pielavesi	22.7 ± 1.5	0.860	227 ± 15	0.94
149	Keitele	40 ± 3	0.939	156 ± 12	1.45
152	Keitele	26.2 ± 1.3	0.885	109 ± 6	1.04
168	Kauhava	6.9 ± 0.4	0.436	27 ± 4	0.47
201	Kitee	4.6 ± 0.5	0.144	1.4 ± 1.1	0.40
202	Lieksa	4.0 ± 0.7		0.0	0.39

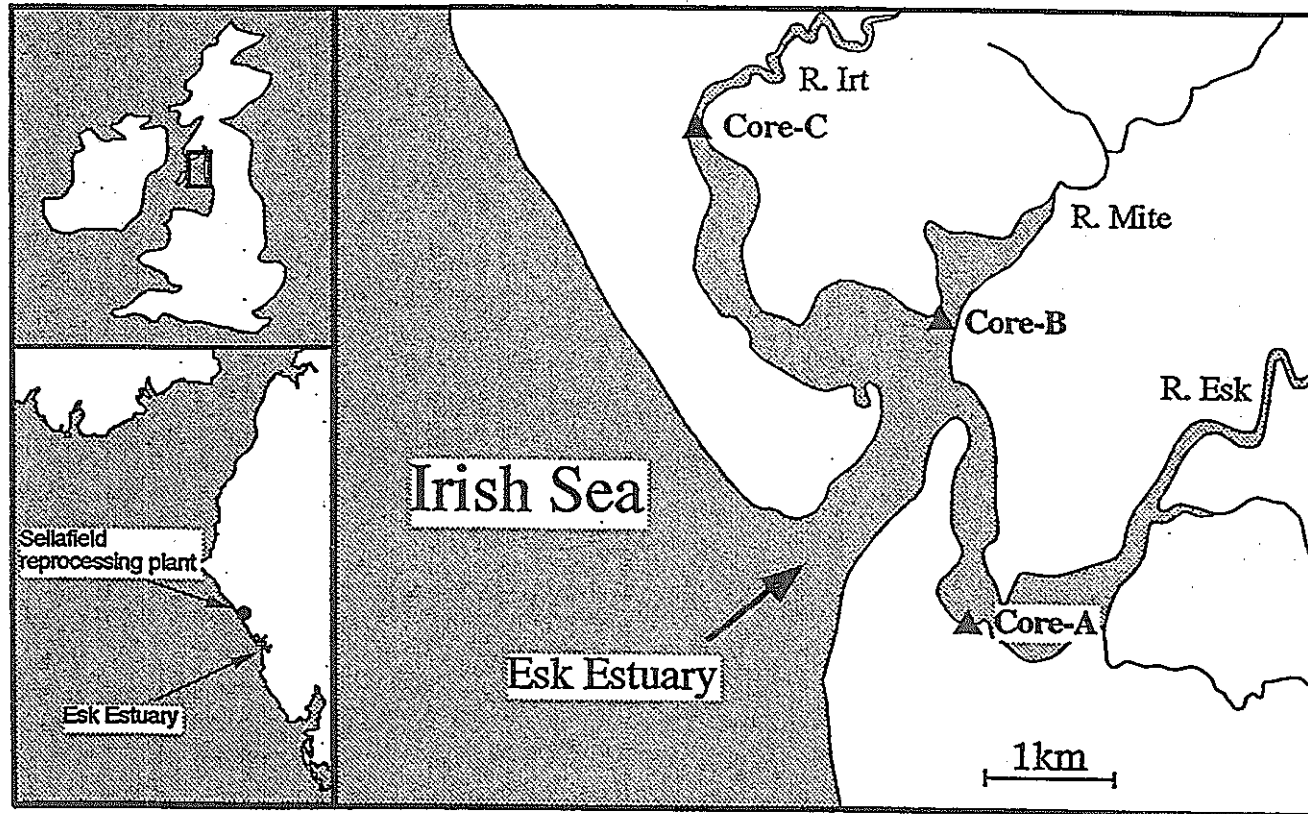


図4-43 イギリスのアイリッシュ海エスク湾での沿岸堆積物コア試料採取地点

表4-19 エスク湾での堆積物コア-Cについての ^{237}Np およびPu 同位体濃度

Activities of ^{237}Np and Pu isotopes (^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Pu) in Irish Sea sediment core (C).

Depth (cm)	Concentration									
	Np-237				Pu-238	Pu-239,240	Pu-241			
	(Bq/kg)		(Bq/m ²)		(Bq/g)	(Bq/g)	(Bq/g)		(Bq/g)	
0 - 1	9.9	± 0.4	89	± 3	0.28	± 0.01	1.39	± 0.05	33.9	± 2.0
1 - 2	10.3	± 0.3	100	± 3	0.34	± 0.02	1.55	± 0.06	33.0	± 1.1
2 - 3	8.8	± 0.3	76	± 3	0.38	± 0.04	1.64	± 0.13	29.5	± 1.5
3 - 4	5.3	± 0.1	42	± 1	0.46	± 0.02	1.97	± 0.07	43.5	± 1.0
4 - 5	5.0	± 0.2	51	± 2	0.58	± 0.03	2.45	± 0.09	57.5	± 1.6
5 - 6	6.2	± 0.2	58	± 2	0.64	± 0.04	2.96	± 0.15	65.6	± 1.5
6 - 7	7.8	± 0.3	70	± 3	1.24	± 0.05	5.52	± 0.16	133.1	± 2.5
7 - 8	11.3	± 0.4	112	± 4	1.41	± 0.06	5.86	± 0.19	135.7	± 3.2
8 - 9	11.4	± 0.4	127	± 5	1.73	± 0.14	7.53	± 0.47	173.1	± 4.6
9 - 10	13.1	± 0.3	158	± 4	1.99	± 0.14	9.48	± 0.53	224.4	± 5.6
10 - 11	12.6	± 0.5	119	± 4	1.98	± 0.15	9.57	± 0.56	179.1	± 4.3
11 - 12	4.7	± 0.2	51	± 2	2.05	± 0.15	9.00	± 0.47	156.8	± 4.7
12 - 13	3.7	± 0.2	43	± 2	2.15	± 0.14	9.98	± 0.48	194.2	± 4.5
13 - 14	3.1	± 0.1	32	± 1	2.46	± 0.14	10.89	± 0.48	173.5	± 4.7
14 - 15	3.1	± 0.1	40	± 2	1.43	± 0.11	9.58	± 0.48	105.0	± 3.1
15 - 16	2.0	± 0.1	23	± 1	0.49	± 0.05	6.17	± 0.29	57.9	± 1.3
16 - 17	1.6	± 0.1	16	± 1	0.14	± 0.01	2.47	± 0.09	23.2	± 0.5
17 - 18	0.70	± 0.04	8.4	± 0.5	0.074	± 0.004	1.48	± 0.03	7.29	± 0.22
18 - 19	0.19	± 0.03	1.9	± 0.3	0.027	± 0.003	1.02	± 0.03	2.59	± 0.08
19 - 20	0.16	± 0.02	1.5	± 0.2	0.017	± 0.002	0.87	± 0.04	2.29	± 0.08
20 - 21	0.32	± 0.02	4.8	± 0.3	0.008	± 0.001	0.47	± 0.01	0.93	± 0.03

The error shows one standard deviation of counting statistics. The ^{238}Pu and ^{241}Pu values were corrected for decay to the date of sampling.

表4-20 エスク湾での堆積物コア-Cについての放射能比

Activity ratios of $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$, $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ and $^{241}\text{Pu}/\text{Pu}(\alpha)$ in Irish Sea sediment core (C).

Depth (cm)	Activity ratio							
	Np-237		Pu-238	Pu-241		Pu-241		
	Pu-239,240 (x10 ³)		Pu-239,240	Pu-239,240		$\text{Pu}(\alpha)$		
0 - 1	7.13	± 0.36	0.201	± 0.011	24.35	± 1.39	20.27	± 1.65
1 - 2	6.64	± 0.32	0.222	± 0.016	21.27	± 0.92	17.40	± 1.36
2 - 3	5.39	± 0.47	0.233	± 0.032	18.00	± 1.39	14.60	± 2.15
3 - 4	2.66	± 0.12	0.232	± 0.014	22.02	± 0.75	17.88	± 1.13
4 - 5	2.04	± 0.11	0.238	± 0.015	23.43	± 0.89	18.93	± 1.30
5 - 6	2.11	± 0.12	0.218	± 0.018	22.15	± 1.01	18.19	± 1.55
6 - 7	1.41	± 0.07	0.224	± 0.011	24.11	± 0.69	19.69	± 1.04
7 - 8	1.93	± 0.09	0.240	± 0.013	23.16	± 0.75	18.68	± 1.09
8 - 9	1.51	± 0.11	0.230	± 0.023	22.98	± 1.26	18.69	± 1.93
9 - 10	1.38	± 0.08	0.210	± 0.019	23.67	± 1.19	19.57	± 1.81
10 - 11	1.32	± 0.09	0.207	± 0.020	18.71	± 0.98	15.51	± 1.52
11 - 12	0.52	± 0.03	0.228	± 0.020	17.42	± 0.85	14.19	± 1.32
12 - 13	0.37	± 0.02	0.216	± 0.018	19.46	± 0.85	16.00	± 1.36
13 - 14	0.29	± 0.02	0.225	± 0.016	15.93	± 0.67	13.00	± 1.01
14 - 15	0.32	± 0.02	0.150	± 0.014	10.96	± 0.55	9.53	± 0.93
15 - 16	0.33	± 0.02	0.079	± 0.009	9.38	± 0.46	8.69	± 1.03
16 - 17	0.65	± 0.04	0.056	± 0.004	9.39	± 0.37	8.89	± 0.74
17 - 18	0.48	± 0.03	0.050	± 0.003	4.94	± 0.17	4.70	± 0.32
18 - 19	0.19	± 0.03	0.027	± 0.003	2.54	± 0.11	2.47	± 0.26
19 - 20	0.19	± 0.02	0.020	± 0.003	2.65	± 0.14	2.60	± 0.36
20 - 21	0.69	± 0.05	0.018	± 0.002	2.00	± 0.09	1.96	± 0.25

The error shows one standard deviation of counting statistics.

4.6 キュリウム - 242, 243, 244

現在、一般環境中で Cm 同位体を検出することは極めて困難である。Cm同位体の中で注目すべき核種は ^{244}Cm ($T_{1/2}=18.1\text{ y}$, α)、 ^{243}Cm ($T_{1/2}=28.5\text{ y}$, α , EC)、 ^{242}Cm ($T_{1/2}=162.8\text{ d}$, α) である。これらの核種は、核爆発時に U, Puの中性子捕獲によって生成するが、半減期が ^{241}Am や ^{239}Pu などに比べて短いのでそのほとんどが壊変してしまっている。1960年代の核爆発が多く行われた頃の Cm 同位体の値が Holm らによって図4-44に示すように報告されている¹⁾。1961～1972年頃の北欧の Lichen (こけ類) 中で見いだされた ^{242}Cm は、放射能比で 239 , ^{240}Pu の 0.003% 程度である。 ^{242}Cm については、Unsupported ^{242}Cm と半減期の長い $^{242\text{m}}\text{Am}$ ($T_{1/2}=141\text{y}$, IT) から ^{242}Am を経て生成するSupported ^{242}Cm が存在する(図4-45)。従って ^{242}Cm を正確に評価する際には $^{242\text{m}}\text{Am}$ を考慮することが重要となる。現在これらの Cm 同位体は、高燃焼度の使用済核燃料の初期再処理廃液中において、全 α 放射能の中で最も高い割合で含まれており、局地的な α 汚染を引き起す可能性がある点で注目されている。

4.6.1 化学分離・ α 線スペクトロメトリー

^{244}Cm , ^{243}Cm , ^{242}Cm はすべて α 線放射体なので、測定は化学分離・精製と α 線スペクトロメトリーによる定量の双方を併せた方法で行われる。化学収率補正用のトレーサーには、Cmと挙動が似ている ^{243}Am を用いているところがある。先に記した Am 分析法では、Cm と Am が化学分離・精製、電着中で同じ化学挙動を取ることが Yamato²⁾ によって確認されている。Yamamotoら³⁾ は、イギリスの Sellafield 核燃料再処理工場からの放射性廃液で汚染されている Irish海において沿岸堆積物中の Cm 同位体を上記の方法を用いて測定したことを報告している。その際、 ^{241}Am レベルが非常に高いので、 ^{243}Am トレーサーを添加せずに Yamato の方法(科学技術庁編：プルトニウムとアメリシウム)の逐次分析法)で Am を化学分離・精製し、電着して α 線スペクトロメトリーを行った(図4-46)。そのスペクトル例を ^{243}Cm と ^{244}Cm を含む標準溶液の α 線スペクトルと共に図4-47に示した。標準試料のスペクトルからわかるように ^{244}Cm と ^{243}Cm は、 α 線エネルギーが接近しているため弁別不可能である。また ^{243}Cm のエネルギーの高い α 線が ^{242}Cm と重なることもこの両者のスペクトルからわかる。今回の Irish海の試料においては、一応 ^{244}Cm と ^{242}Cm スペクトルが重ならず分離して測定されているので

^{243}Cm の寄与は無視できるぐらい少ないと考え、 $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ と $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 放射能比をまず算出した。その後、試料の少量を用い、 ^{243}Am をトレーサーとして別に求めた ^{241}Am 濃度を上記の放射能比に乗じて ^{244}Cm と ^{242}Cm の絶対量を求めた。この方法は一見煩雑に見えるが、Cm と Am の相互分離を実施しなくてもよい利点がある。Cm と Am の分離には、クエン酸、乳酸、硝酸、グリコール酸、 α -ヒドロキシイソ酪酸、EDTA などの有機酸の塩類が主に使用される。また 7M $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ 溶液を用いての陰イオン交換樹脂カラムからの相互分離も報告されている。

4.6.2 測定例

大気圏内核実験からのフォールアウト中の Cm 同位体の測定については上記した Holm ら¹⁾ 以外に Bowen and Livingston⁴⁾ や Schneider and Livingston⁵⁾ の報文があるが、現在 Cm 同位体が比較的簡単に測定できるフィールドは、チェルノブイリ原発事故による高汚染地域およびイギリスのセラフィールド核燃料再処理工場からの放射性廃液で汚染されているアイリッシュ海の東部沿岸地域である。

(a) チェルノブイリ原発事故

チェルノブイリ原発事故からのフォールアウト中に Hot Particle が存在することが見い出されてきた。Broda ら⁶⁾ はいくつかの Hot Particle 中の α 線放射体を高分解能の Si 検出器を用いて測定した。スペクトル例を図4-48に、測定結果を表4-21と表4-22に示す。

(b) アイリッシュ海

Yamamoto ら³⁾ は、以下に示すアイリッシュ海の堆積物について ^{243}Cm 、 ^{244}Cm および ^{242}Cm を測定した。1978 年以降であるが、セラフィールド再処理工場からの Cm 同位体の年間放出量が表4-23に示すように報告されている。

試料は、1988年7月に Irish海周辺の沿岸や河口の 24 地点で採取した表層堆積物（深さ 1 cm）および Esk Bayの河口で採取した深さ 25cm のコア試料（直径 8.2 cm, 1 cm 毎に切断）を用いた（図4-49）。 ^{237}Np , Pu 同位体, ^{241}Am などは測定済みである。Cmの分析は、数 g ~ 数十 g を用い、この元素が化学分離・精製、電着中、Am と同じ化学挙動を取る Yamato らの方法（塩酸-メタノール-チオシアン酸-陰イオン交

換)を用いて行った。 α 線スペクトロメトリーにより $^{243}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ (α 線スペクトロメトリーでは ^{243}Cm と ^{244}Cm の α 線エネルギーが接近しているため弁別不可能)と $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 放射能比を測定した。絶対量は ^{243}Am をトレーサとして別に求めた ^{241}Am 濃度を上記の放射能比に乗じて求めた。測定の結果以下のことが明らかになった。

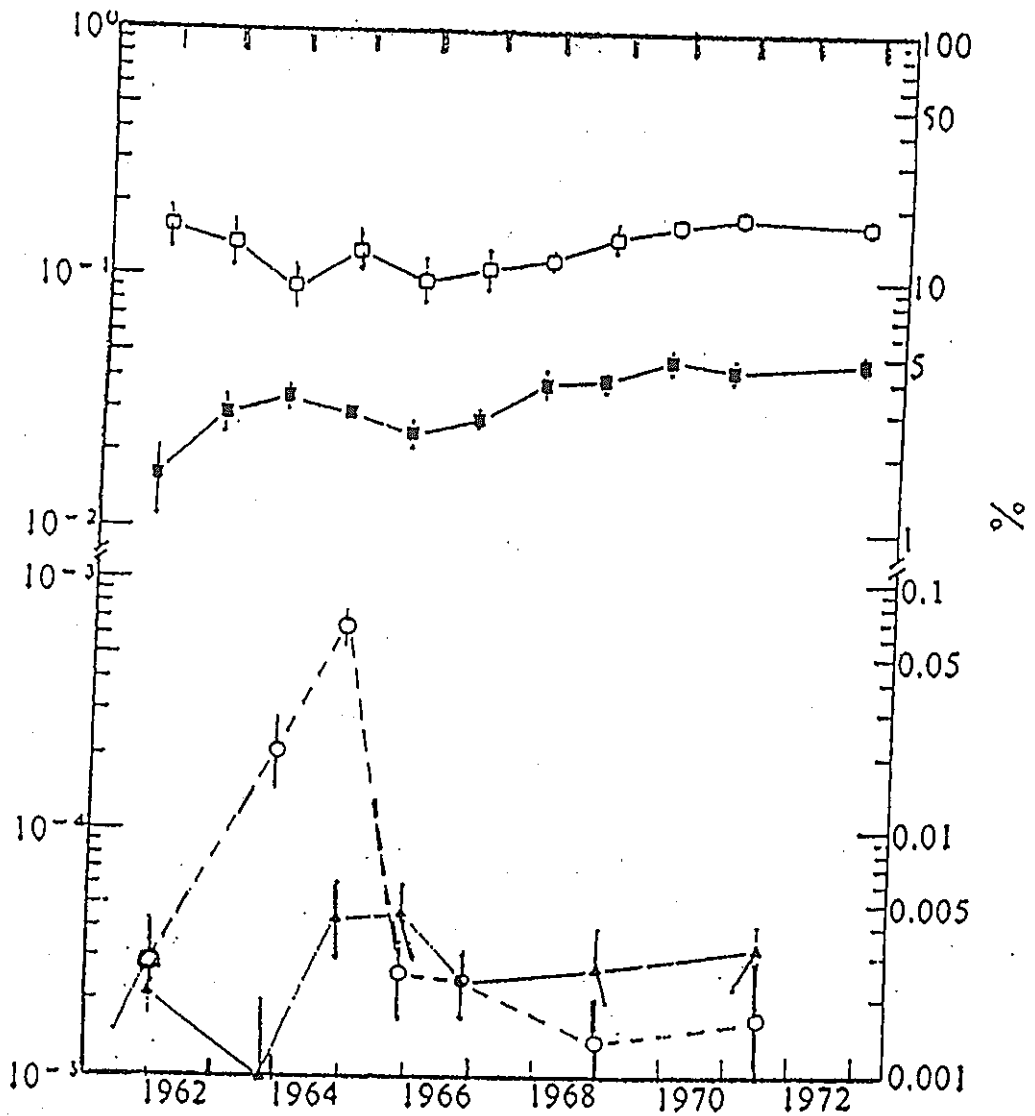
- (1) Irish 海周辺の沿岸や河口の 24 地点からの試料中の ^{244}Cm と ^{242}Cm については, Esk Bay で最も高い 7.1 Bq/kgと 1.2 Bq/kgの値がそれぞれ検出され, 放出口からの距離が遠くなるにつれて濃度が漸減している。 $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 比 および $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 比は測定日(試料採取から 12 ~ 15 ヶ月経過)での値で(0.28 ~ 0.39) % および (0.025 ~ 0.058) %であった(表4-24)。
- (2) ^{242}Cm については, Unsupported ^{242}Cm と $^{242\text{m}}\text{Am}$ ($T_{1/2} = 141 \text{ y}$, IT)から生成するSupported ^{242}Cm が存在している可能性があるので, Esk Bay の堆積物約20gを用いて Cm(Am)を分離・精製し, 2年あまり定期的に測定を繰り返してみた。図4-46にその結果を示すが, Supported ^{242}Cm , すなわち親核種の $^{242\text{m}}\text{Am}$ が $^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ 放射能比で(0.033 \pm 0.001) % 存在していることがわかった(図4-45)。
- (3) Esk Bay からのコア試料については, 深さ 20 cmまでの試料について ^{244}Cm , ^{242}Cm が検出でき, $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 比および $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 比でそれぞれの(0.12 ~ 0.35) %, (0.017 ~ 0.046) %であった(図4-50)。

参考文献

- 1) E. Holm, B. R. R. Persson : Global fallout curium, Nature, 273, 289-290 (1978).
- 2) A. Yamato : An anion exchange method for the determination of ^{241}Am and plutonium in environmental and biological samples, J. Radioanal. Chem., 75, 265 (1982).
- 3) M. Yamamoto : Unpublished data.
- 4) V. T. Bowen, H. D. Livingston : Americium-242m in nuclear test debris, Nature, 256, 482 (1975).
- 5) D. L. Schneider, H. D. Livingston : Measurement of curium in marine samples,

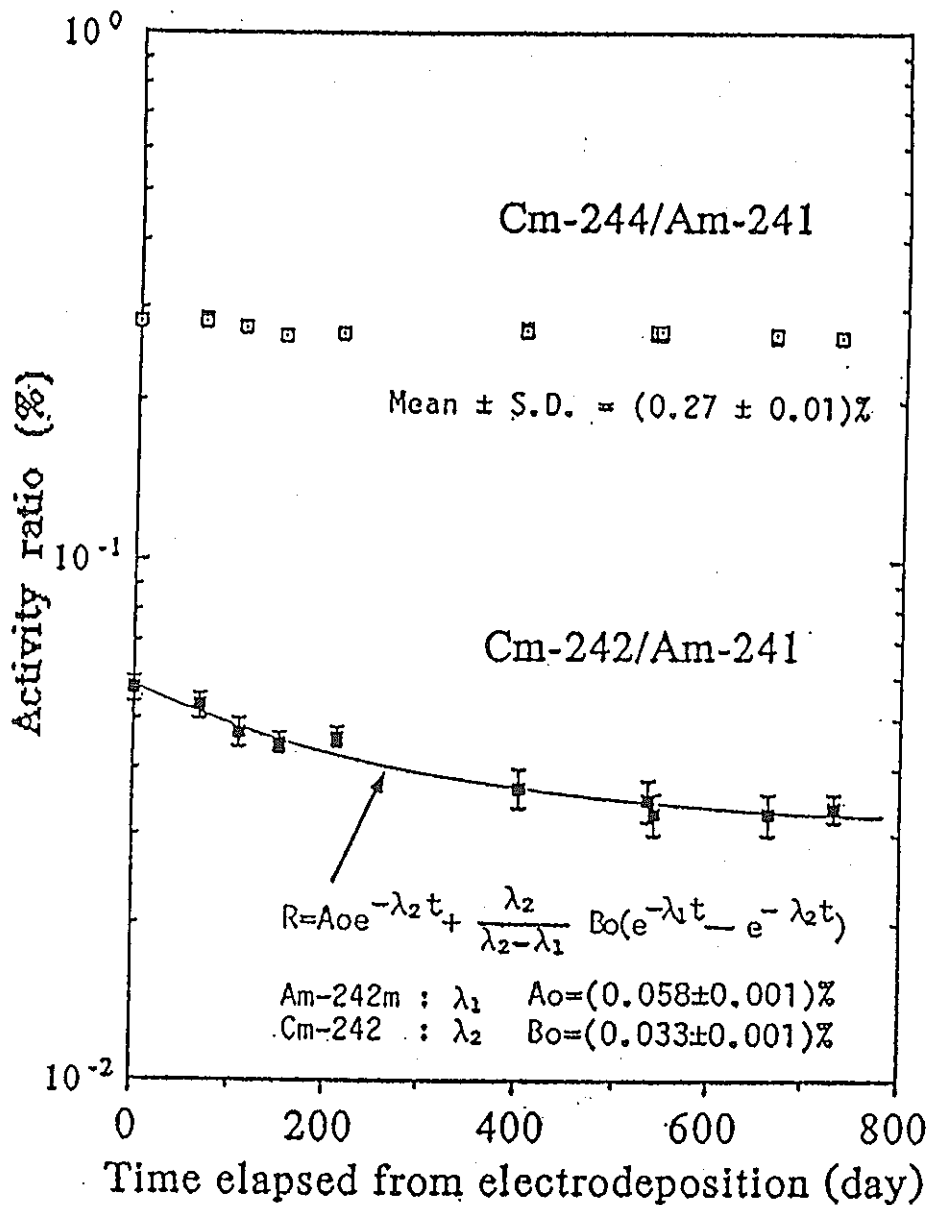
Nucl. Instr. Method, 223, 510-516 (1984).

- 6) R. Broda, B. Kubica, Z. Szegłowski, K. Zuber : Alpha emitters in Chernobyl hot particle, Radiochim. Acta, 48, 89-96 (1989).



The ratio of the activity concentrations of ^{242}Cm ($^{242\text{m}}\text{Am}$) (\blacktriangle), ^{244}Cm , (\circ), ^{238}Pu (\blacksquare) and ^{241}Am (\square) to $^{239}+^{240}\text{Pu}$ in lichen samples collected during 1961-72. The ratio is given in % on the right ordinate.

図4-44 1961-1972年に採取した地衣類(Lichen)の $^{239,240}\text{Pu}$ に対してのCm同位体等の放射能比(放射能比は%で与えられている)



Decay of Cm-244/Am-241 and Cm-242/Am-241 activity ratios in sediment from Esk Estuary, Irish Sea, UK

図4-45 アイリッシュ海のエスク湾で採取した沿岸堆積物の $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ および $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ の経時変化 (^{242}Cm に関して, unsupported ^{242}Cm の存在を示す)

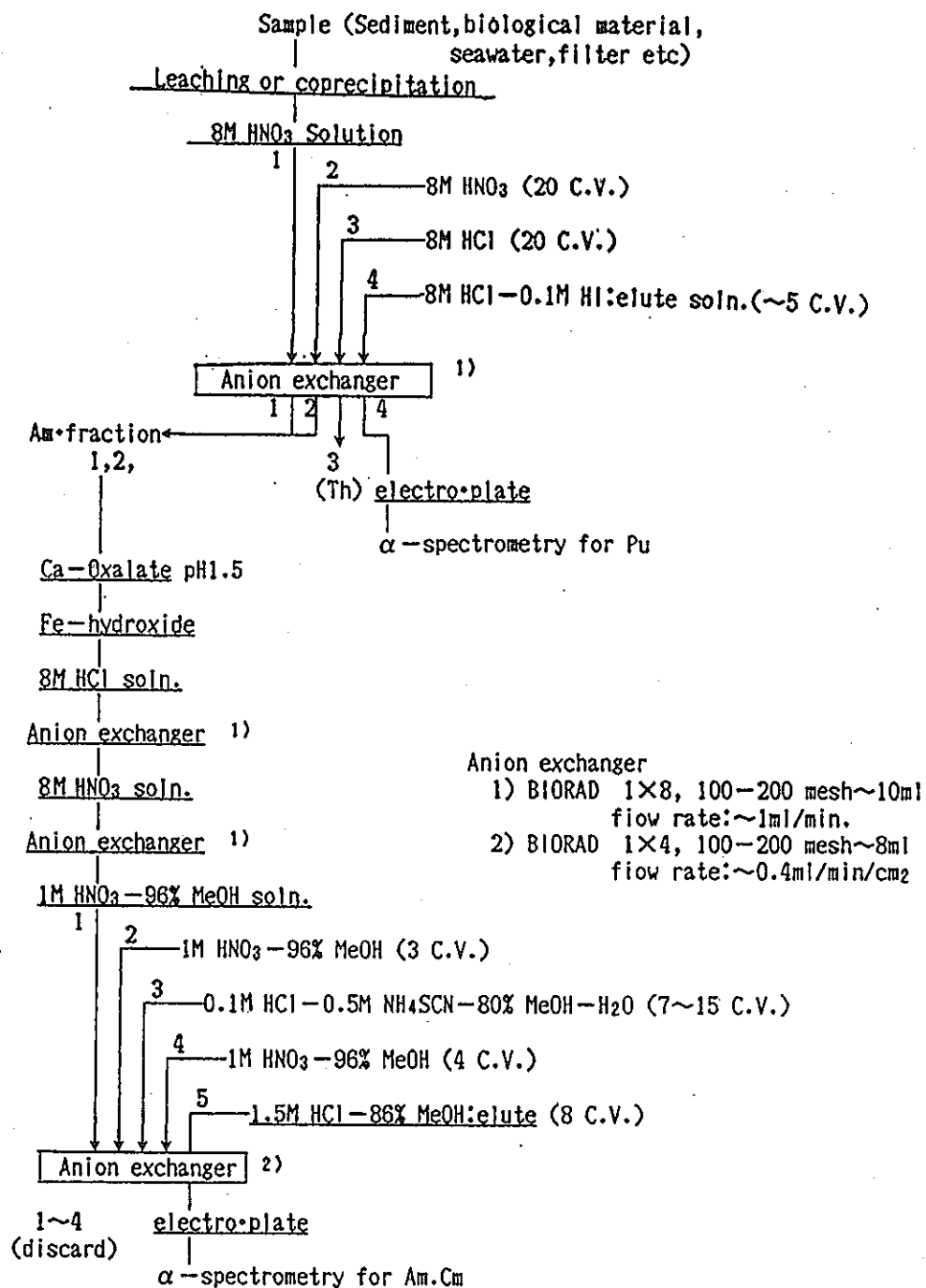
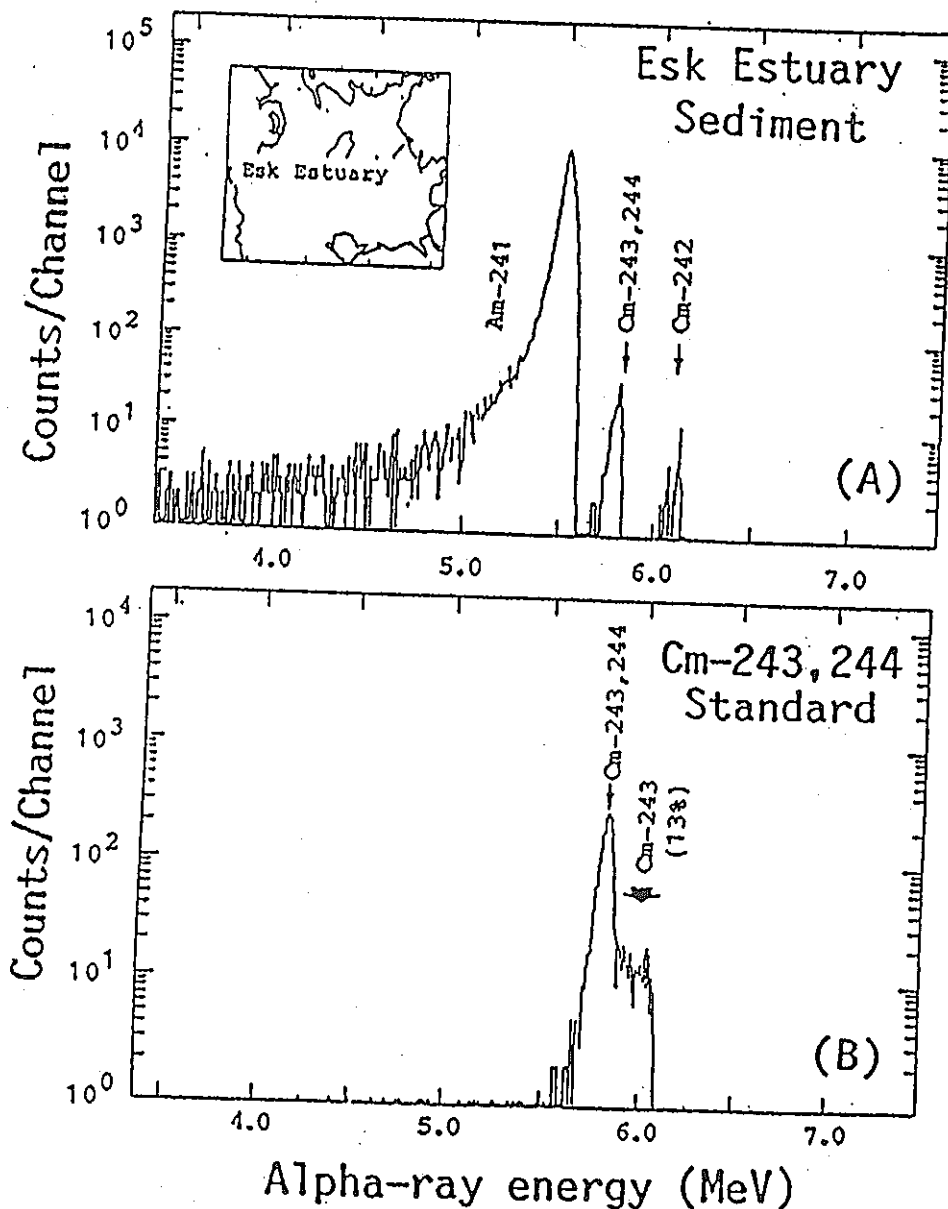
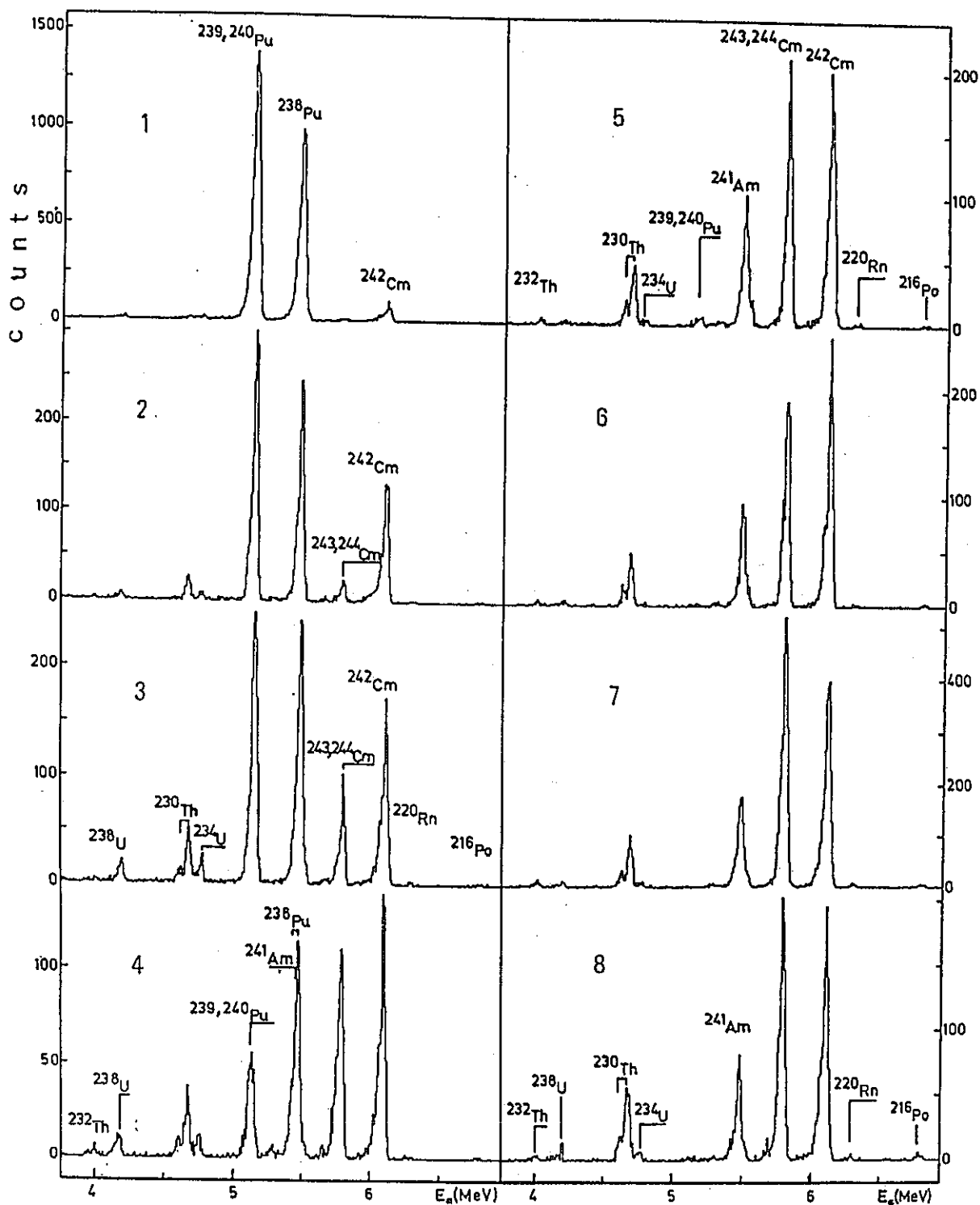


図4-46 環境試料中のアメリカシウム（Am）の分離・精製法



Alpha-ray spectra of (A) purified Cm (Am) fraction from the sediment sample from Irish Sea and (B) Cm-234,244 standard solution

図4-47 アイリッシュ海の海底堆積物についての Cm 精製フラクションおよび $^{244,243}\text{Cm}$ 標準溶液の α 線スペクトル



Examples of alpha spectra obtained from subsequent electroplatings of radioactive material of particle M22. Each spectrum is the sum of several measurements performed between December 1987 and May 1988. Figure illustrates qualitatively the observed variation of relative actinide yields. Exact quantitative results are shown in Fig. 5, and in Table 5.

図4-48 チェルノブイル原発事故関連のhot particle の α 線スペクトル

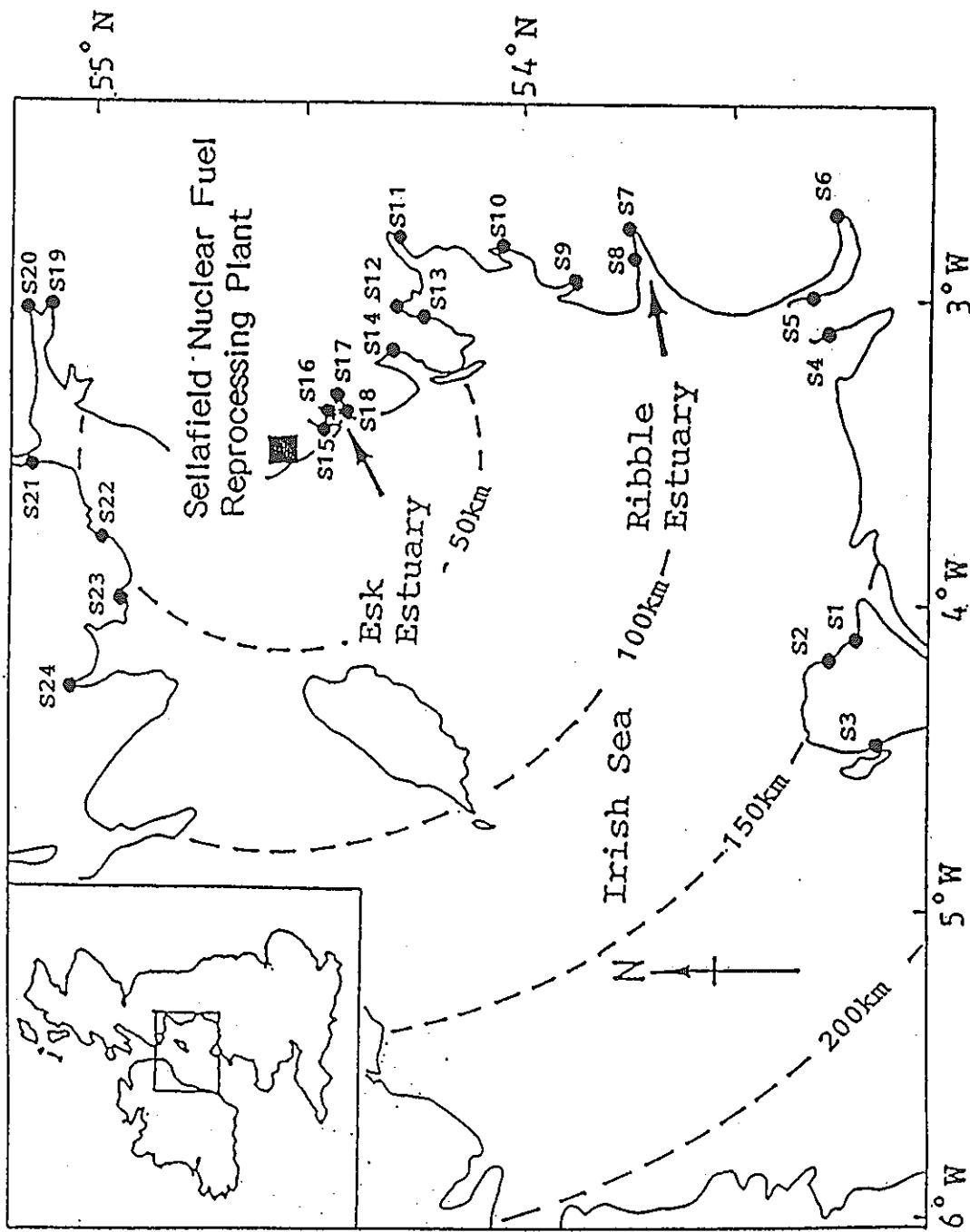


図4-49 アイリッシュ海での沿岸表層堆積物の採取地点

表4-21 チェルノブイル原発事故関連のhot particle の測定結果

Numerical results of high resolution analysis of alpha activities in hot particles

Part code name	$\frac{^{144}\text{Ce}_a}{^{141}\text{Ce}}$	$\frac{^{239,240}\text{Pu}}{^{144}\text{Ce}}$ (10^{-4})	$\frac{^{238}\text{Pu}, ^{241}\text{Am}}{^{239,240}\text{Pu}}$	$\frac{^{242}\text{Cm}_b}{^{239,240}\text{Pu}}$	$\frac{^{243,244}\text{Cm}}{^{239,240}\text{Pu}}$	$\frac{^{238}\text{U}_c}{^{239,240}\text{Pu}}$ (10^{-2})	$\frac{^{230}\text{Th}}{^{239,240}\text{Pu}}$
	core inv. ^{d)}	0.571	6.4	~1	12.2	—	0.12
HS2	0.175(4)	2.8(7)	—	—	—	—	—
M44	0.190(2)	12 (1)	0.08(2)	0.08(3)	—	—	—
M2	0.38(3)	5 (1)	0.2 (1)	1.0 (3)	—	—	—
	0.66(4)	5.3(7)	1.2 (4)	9.5 (8)	—	—	—
HS9	0.513(6)	2.5(1)	0.21(1)	2.1 (1)	—	—	—
M20	0.533(11)	4.1(2)	0.19(1)	0.22(3)	0.030(5)	—	—
M30	0.553(17)	5.5(3)	0.45(3)	6.9 (3)	< 0.04	—	—
HS14	0.632(5)	4.1(2)	0.67(7)	11 (1)	0.09 (3)	< 5	0.46(8)
HS12	0.688(7)	14 (1)	0.92(5)	29 (1)	0.21 (2)	—	—
M3	0.709(12)	8.2(3)	0.72(5)	16 (1)	—	—	—
KO1	0.720(15)	6.5(2)	1.28(2)	20.4 (2)	0.274(6)	7.0(3)	< 0.005
M1	0.722(28)	5.6(7)	0.9 (2)	25 (5)	0.13 (8)	—	0.13(7)
M22	0.735(7)	—	1.07(2)	12.5 (2)	0.86 (1)	4.1(4)	0.25(1)
M12	0.750(8)	5.3(3)	1.06(3)	23 (1)	0.16 (1)	< 3	< 0.03
HS7	0.756(17)	3.0(1)	1.4 (1)	41 (3)	0.46 (4)	< 2	0.21(4)
M13	0.781(29)	4.8(4)	0.72(9)	22 (3)	0.25 (5)	< 4	0.30(6)
M4	0.781(12)	5.4(2)	0.80(3)	20 (1)	0.11 (2)	< 2	< 0.02

^{a)} As determined from gamma measurement in Ref. [2].

^{b)} Corrected for $T_{1/2} = 162.8$ day decay to 26 April 1986.

^{c)} Taken as average from the ^{238}U , ^{234}U activity.

^{d)} On April 26, 1986. The ^{238}U activity calculated from information contained in Ref. [11].

表4-22 チェルノブイル原発事故関連のhot particle のアクチニド組成

Composition of actinides established in particle M22. Properly normalized and decay corrected data of entire analyses were employed. The ^{238}Pu and ^{241}Am activities were resolved assuming that no americium was electroplated in the first sample. The ^{241}Pu activity was deduced from the observed growth of the ^{241}Am daughter activity

Radio-isotope	Activity relative ^{a)} to ^{239}Pu and ^{240}Pu		Mass relative to ^{239}Pu and ^{240}Pu
	Particle M22	Core inventory [11]	
$^{239,240}\text{Pu}$	1	1	1 ^{b)}
^{238}Pu	0.67 (3)	0.49	4.3×10^{-3}
^{241}Pu	102 (15)	83	1.1×10^{-1}
^{241}Am	0.40 (2)	—	1.3×10^{-2}
$^{243,244}\text{Cm}$	0.86 (3)	—	$1.4 \times 10^{-3b)}$
^{242}Cm	12.5 (3)	12.2	4.0×10^{-4}
^{238}U	0.046(2)	0.0012	1.5×10^4
^{234}U	0.037	—	6.5×10^{-1}
^{230}Th	0.25 (1)	—	1.4
^{232}Th	0.023(3)	—	2.3×10^4

^{a)} As determined for 26 April 1986.

^{b)} Contribution of Pu isotopes taken from core inventory, for Cm isotopes assumed as 50% each.

表4-23 セラフィールド核燃料再処理工場からの放射性核種の年間放出量

Reported annual discharges (TBq/y) for transuranium elements and ^{137}Cs from BNFL Sellafield

Year	Discharges (TBq/y)								
	^{237}Np	^{238}Pu	$^{239,240}\text{Pu}$	Pu-alpha	^{241}Pu	^{241}Am	^{242}Cm	$^{243,244}\text{Cm}$	^{137}Cs
1960				2.9					34
1961				3.8					40
1962				6.9					41
1963				8.6					14
1964				10.1					104
1965				10.6					110
1966				10.6					181
1967				18.2					150
1968				30.6		21.3			372
1969				30.2		14.7			444
1970				35		20			1160
1971				42		38			1330
1972				57	1900	80			1290
1973				66	2760	110			769
1974				46	1710	120			4070
1975				44	1820	36			5240
1976				47	1300	12			4290
1977				36	980	3.7			4480
1978	0.59	12	46	58	1780	7.9	0.56	0.33	4090
1979	0.33	12	37	49	1500	7.9	0.37	0.15	2570
1980	0.67	6.9	20	27	728	8.3	0.33	0.19	2970
1981	0.41	5	15	20	600	8.8	0.19	0.11	2360
1982	0.30	4.7	16	21	485	6.4	0.28	0.14	2000
1983	0.30	2.9	8.7	12	331	2.2	0.4	0.1	1200
1984	0.3	2.6	8.3	10.9	345	2.3	0.1	0.1	434
1985	0.2			3.4	81	1.6	<0.1	<0.1	325
1986	0.4			2.7	63	1.3	<0.1	<0.1	17.9
1987	0.23			1.3	31.9	0.65	0.11	0.04	11.8
1988	0.28			1.4	36.1	0.75	0.06	0.01	13.3

表4-24 アイリッシュ海の沿岸表層堆積物中の超ウラン元素濃度

Concentrations of ^{237}Np , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am , $^{243,244}\text{Cm}$
and ^{137}Cs in the sediments from Irish Sea

Site No.	Concentration (Bq/kg.dry)				
	^{237}Np	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}^*$	$^{243,244}\text{Cm}^*$	^{137}Cs
S1	0.10/.01**	31.9/1.6	33.2/2.4	NA	207/5
S2	0.19/.03	46.0/3.2	68.8/5.3	"	317/7
S3	NA***	2.3/0.2	2.7/0.2	"	65/3
S4	0.24/.03	113/8	141/9	0.31/.03	584/13
S5	0.23/.02	87.9/4.8	157/7	0.39/.05	623/14
S6	0.12/.01	51.5/2.7	82.4/7.3	NA	456/11
S7	5.95/.30	179/11	254/14	"	920/19
S8	12.13/.44	140/7	195/15	"	673/14
S9	0.66/.05	264/12	377/21	1.06/.13	1253/27
S10	0.15/.01	60.9/3.1	102/7	NA	365/8
S11	0.07/.01	28.4/1.4	36.9/3.9	"	378/8
S12	0.22/.02	89.7/4.6	132/8	"	635/13
S13	0.09/.01	35.6/2.0	51.4/3.6	"	308/7
S14	0.29/.03	162/8.4	256/18	0.72/.09	422/10
S15	2.64/.23	694/36	1194/62	3.46/.40	1806/36
S16	4.52/.36	1804/86	2230/110	7.14/.76	1809/38
S17	3.26/.30	1419/57	2290/120	5.95/.75	1734/35
S18	3.60/.29	1010/34	1181/37	3.31/.37	774/19
S19	0.16/.01	59.9/3.5	81.0/5.0	NA	509/11
S20	NA	12.4/0.7	12.9/0.5	"	147/4
S21	0.16/.02	86.0/3.7	127/8	0.50/0.05	643/14
S22	0.21/.02	70.5/3.8	109/7	NA	211/5
S23	0.40/.04	133/5.4	230/15	"	356/8
S24	0.32/.03	101/4.7	168/9	0.49/.06	394/8

*: decay corrected to the sampling date.

** : The number after slash denotes the propagated counting error of one sigma: $0.10/.01 = 0.10 \pm 0.01$.

***: NA = not analysed.

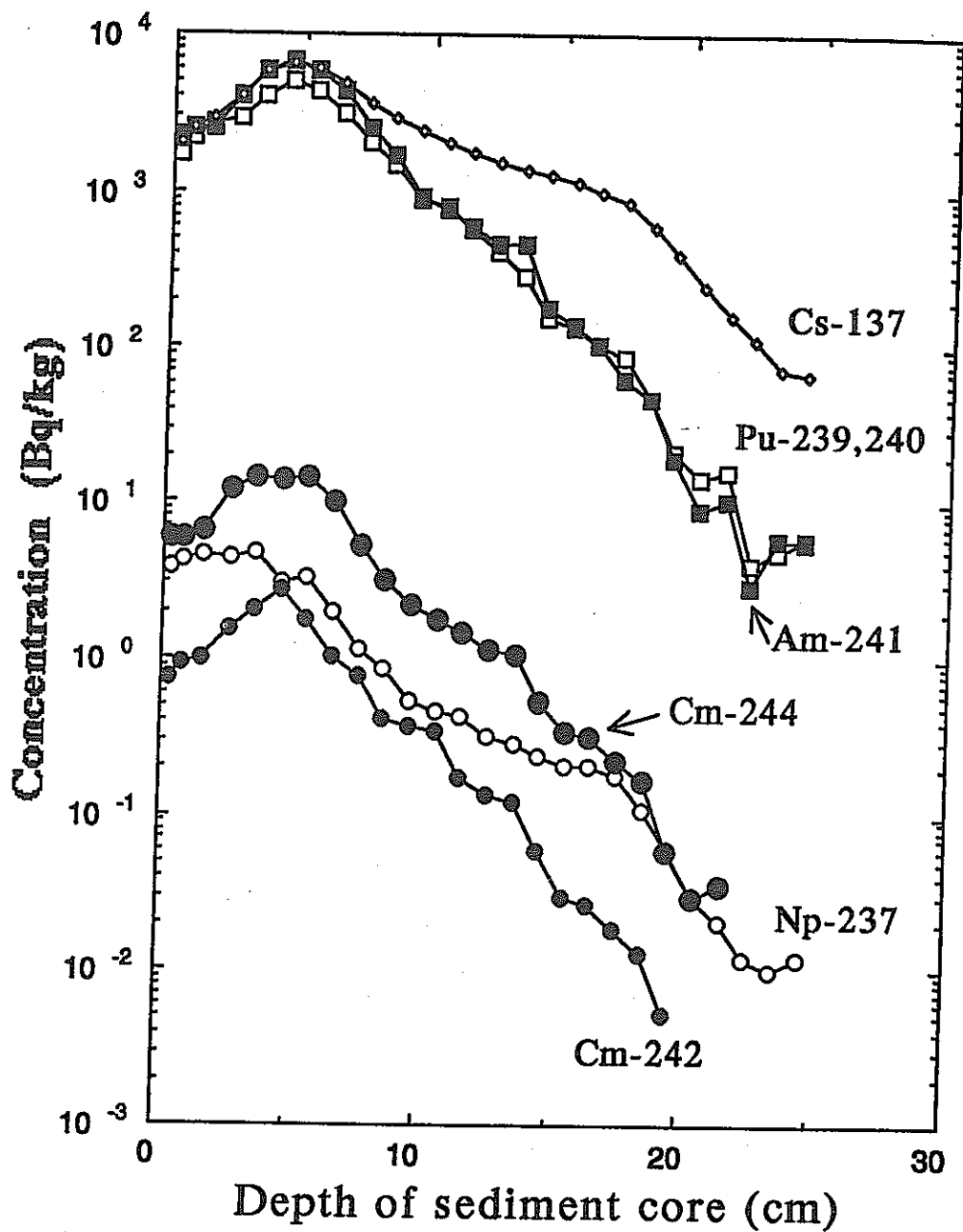


図4-50 アイリッシュ海のエスク湾で採取した堆積物コアの超ウラン元素濃度の深度分布

4.7 α 線放射体測定のための収率トレーサー

4.7.1 はじめに

環境試料中において分析定量の対象となる α 放射体としては、長寿命親核種のもとに成立しているウラン系列やトリウム系列に属する天然放射性核種以外に、核実験や原子力エネルギー施設に関連した超ウラン元素であるネプツニウム、プルトニウム、アメリシウムに属する人工放射性核種が挙げられる。これら α 放射体の挙動を知ることは、系列核種間の非平衡状態を利用した時間的情報が加味出来るので、多元的な環境物質循環状態の把握にとって必要であるだけでなく、新たな天然および人工環境汚染物質として保健物理的にも重要になって来ている。試料量が充分(20~30 g以上)利用出来る場合には、 γ 線スペクトロメトリーによる非破壊分析が適用されており、子孫核種との放射平衡も測定可能である。また、UとThは長い半減期を有することから通常元素同様にマクロ量での化学分析定量が可能である。

一方、非破壊 γ 線スペクトロメトリーが適用出来ないような微量な環境試料中の α 放射体の場合は、放射化学分離を用いて出来るだけ純粋な状態とし、最終的には放射能測定による同定定量を行う。微量なアクチノイド核種の分析定量を最終的に α 線検出で行う場合のいくつかの検出法の比較を表4-25に示す¹⁾。環境中の α 放射体とこれらの分析定量の際の化学収率補正用のスパイク(トレーサー) α 放射体からの放出 α 線エネルギーを図4-51に示す。これら α 放射性核種以外に、 β や γ 放射性核種(例えば ^{226}Ra , ^{233}Pa , ^{237}U , ^{239}Np などの β 放射体)もアクチノイド核種のトレーサーとして使用されている。収率トレーサーを用いた α 線スペクトル測定に基づくアクチノイド核種の分析定量の総説が測定法と収率トレーサーの選択と妨害に力点を置いてHolmによってなされているので、以下紹介する。

4.7.2 アクチノイド核種の α 線スペクトル測定²⁾

高いエネルギー分解能、優れた安定性、低バックグラウンドそして低コストであるという理由で、表面障壁型半導体検出器が現在最もよく使用される α 線検出器である。この論文では、 α 粒子スペクトロメトリーにおいて重要な種々のパラメーターが述べられている。すなわち、エネルギー分解能、エネルギー領域の選定、エネルギーキャリブレーション、バックグラウンドそしてピークのテーリングなどである。

環境試料から分離された種々のアクチニド (Th, U, Np, Pu, Am, Cm) から測定された α スペクトルを例示し、それぞれの場合の核種の収率トレーサーの選択を議論する。

(1) 序論

意図する研究の種類によって、様々な α スペクトロメーターが用いられる。それぞれのシステムについての記述が、Siegbahnによって纏められている³⁾。磁気 α スペクトロメーターが、 α 粒子エネルギーの正確な測定をするために用いられている。電離箱、比例計数管そして半導体検出器が、サンプル中の α 放射体の濃度測定に用いられてきている。

主に、高分解能と低コストであるという理由で、表面障壁型シリコン検出器が、現在最もよく使われている α 粒子検出器である。この検出器の更なる利点は、幅広い計数率応答性や低バックグラウンド、そして優れた安定性である。

ここでは、表面障壁型シリコン検出器を利用した α スペクトロメトリーによる、環境試料中のアクチニドの測定に限定して述べる。

アクチニド測定は、核種相互のエネルギーの妨害、面倒な放射化学処理や収率測定に関する問題を含んでいる。環境試料中の低レベル人工アクチニドは、低計数率であり、10日にも及ぶ長時間測定という問題を含んでいる。12年間これらの問題と取り組んだ末、”古典的な α 放射能分析を成し遂げる能力は、比較的稀な実験技術や、訓練と忍耐の賜物とか、一部分はたぶん少々奇跡を要する個々の能力であるかもしれない。”⁴⁾” という Crawford らの意見に深い共感を持つに至った。この論文の主たる部分は”人と動物におけるアクチニド”と題した1979年米国 Utah, Snowbird, で開催されたの分科会で報告した⁵⁾。

(2) α 線スペクトロメトリーのための試料調製

サンプル調製に用いた放射化学的手法については、ここでは短い記述に留める。我々は、1976年、1977年 Holm によって開発された硝酸/メタノール混合系陰イオン交換法を用いた。図4-52に分離操作スキームを示す。測定直前の最終段階は pH3 の 1M 硫酸アンモニウム溶液から電解研磨したステンレス板上への電着である^{6, 7)}。

(3) α 線の測定方法

(A) エネルギー間隔

測定対象の大部分のアクチニド元素は、3.95MeV(^{232}Th)から8.8MeV(^{212}Po)までのエネルギー領域に α 粒子を放出している。 ^{148}Sm (2.46MeV)、 ^{148}Gd (3.18MeV)や ^{150}Gd (2.73MeV)といった低エネルギーの α 放出体が、エネルギー校正や α スペクトロメーターの安定性確認に使用されている⁸⁾。2.5MeVから8.8MeVのエネルギー域では検出効率に大きな変動は見られない。このことが、 α スペクトロメトリーでの定量評価を γ スペクトロメトリーの場合と比較して単純なものにしている。

(B) エネルギー分解能

それぞれの検出器に対して設定されるバイアス電圧を増すにつれ、エネルギー分解能は向上する。それゆえ、プレアンプのバイアス抵抗(一般に100M Ω を使用)を流れる逆極性のリーク電流に由来する電圧低下に対して、保証が施さなされなければならない。ほとんどの α 粒子が単一エネルギーのみを放出しているのではないので、 α ピークのエネルギー分解能の評価(半値幅; FWHM)は直接には行えない。従って、一般には単一に分解することのできない二つの α 粒子エネルギーを扱うことになる。それゆえ表面障壁型シリコン検出器を用いた α 線スペクトロメトリーでのエネルギー分解能は測定核種に依存する。エネルギー分解能は α エネルギーが大きくなるにつれ向上するであろうが、しかし我々の知る限りでは、これは実験的には証明されていない。

線源と検出器との距離(SDDと略記)の増加による分解能の向上は、幾何条件によるものである。検出器の金蒸着層とサンプルの電着層を通過する α 粒子の道筋は、SDDが大きいく程、検出器の受感面に突入する間により均一になる。SDDを検出器の直径の1.5倍にし、 $^{238+240}\text{Pu}$ を測定した時のFWHMで検出器の特性を示すことがしばしばある。これは、検出器の仕様を工業生産的に再現することが難しいからである。生物学サンプルの低レベルアクチニド放射能測定では、大きな計数値を得るために、通常非常に小さなSSDが使われる。ランタニドや他の元素の存在しない純粋なアクチニドの電着層を、ステンレス板上に得ることが最も重要となる。粗悪な測定試料は、高性能を有するエレクトロニクスやコンピューター解析を用いても回復することはできない。検出器のサイズが小さくなるにつれて、エネルギー分解能が向上される。従って、サンプルの電着面積が小さいならば、小さな検出器を使うと良いだろう。一方では、 α スペクトルを劣化させる電着層の厚さの増加というリスクが増えてくる。一般に、受

感部面積が200~450mm²の検出器が低レベルのアクチニドの測定に適した大きさである。検出器の収束化（コリメーション）が、エネルギー分解能を向上させる。この理由は、電着部分と検出器の金蒸着部のエッジ効果が除去できるとして説明される。幾何的条件も、上記の理由でより好ましくなる。表面積300mm²の検出器（Ortec BA-018-300-100）を200mm²の検出面積にコリメートした時の測定例を図4-53に示す。検出器の直径と同じ SDDで測定しており、1チャンネルのピークシフトがあったことを記しておく。

(C) エネルギー校正

現在、アクチニドの先端 α スペクトロメトリーでは、様々なルーチングの系を使って複数の検出器を一つのマルチチャンネルアナライザーに接続して行なわれている。検出器あたりのチャンネルの数は、測定するエネルギー領域によって決まる。トリウム分析（低エネルギー）とキュリウム分析（高エネルギー）を同じ測定系で行うとすれば、少なくとも256チャンネル、出来れば512チャンネルを1検出器あたりに割り付けて使用すべきであろう。

エネルギー対チャンネルの傾きが急だと、スペクトルの十分な情報が得られない。ある特定のエネルギー分解能を得るには、約4-5チャンネルが必要となる。一般に長時間の測定が必要になるので、エネルギー校正の安定性が重要となる。室温の上昇は、ピークを低エネルギー側にシフトさせる傾向がある。

(D) バックグラウンド -- ピークテーリングについて

検出器のバックグラウンドは一般に低く、120keVのエネルギー域で $0.3 \sim 2 \times 10^{-5}/s$ である。しかし、検出器を使用しているうちに汚染される傾向がある。これは特に、揮発による²¹⁰Poと、²²⁸Thからの²²⁴Raなどの反跳核種によるものが問題となる。

スペクトルの解析時は、バックグラウンドの差し引きだけでなく、高エネルギーピークのテーリングの補正もまた大変重要である。このことを図4-54に例示する。²³⁸⁺²⁴⁰Puのエネルギー (E_0) のピークを、高エネルギー側ではFWHMの1.5倍、低エネルギー側ではFWHMの2.5倍つまりFWHMの4倍（この場合は4×30keV）積算している。同じウインド幅（この場合は120keV）で低エネルギー側へ移動していく。Puのピークからこのウインドに入るカウント数を積算する。ここでウインドのセンター値を E_x

とする。即ちこの時のテーリングは、Puピークの最大値と観察（ウインド）エネルギー領域のセンター値と差に相当するエネルギー差 $E_0 - E_x$ における積算Puピークのパーセンテージとして表現してある。

(E) エネルギーゆらぎと線源における自己吸収

表面障壁型検出器は、約 $40 \mu\text{gcm}^{-2}$ または $2 \mu\text{m}$ 相当の金のウインド厚みを持っている。5MeVの α 粒子に対する阻止能 dE/dx は、固体中で約150 keV/ μm である。これは平均値であり、ある粒子ではより大きく、また他の粒子では小さくなり、このことがエネルギー分解能に限界を与えている。前の節でSDDへのエネルギー分解能の依存性について論議して来た。

真空チャンバー内の気圧もエネルギー分解能に影響するが、SDDが数mmで気圧が 10^{-2} mbar以下ならば、これは他のパラメータと比較して無視できる。

理想的な線源が得られないと、線源中で α 粒子はエネルギーを損失することになる。この2つの影響で、ピークの歪みと広がりが生じる。

(i) 一様な厚さと均一なアクティビティ分布を有する厚い析出層からの α 粒子は、エネルギーの揺らぎだけでなく、線源中の様々な道筋に由来するエネルギー損失をも引き起こす。

(ii) 析出物の厚さは、線源面積全体わたってかなり変動する。

図4-55に、線源と検出器間の吸収体の厚さの変化に伴い、 ^{239}Pu のピークがどのように変化するかを示した。これは、均一な放射能分布を有する厚い析出物の場合を示してはいない。比較容易なように、全ピークのカウント数は同じにしてある。吸収体の厚さが増すにつれ、ピーク高が低くなり、エネルギーのテーリングが増し、ピーク位置が低チャンネル側へシフトしているのが観察される。

前の節で述べたように、特別な場合において理想的な線源ではピークの積算を、高エネルギー側でFWHMの1.5倍、低エネルギー側で2.5倍で行った。FWHMの増加に伴い、ピーク積算範囲は広がるが、ピークは低エネルギー側に広がる為、積算範囲は低エネルギー側に広がっていく。

僅かなFWHM増加では、高エネルギー側のピーク積算は理想的な線源と同じエネルギー範囲（チャンネル数）でよい。低エネルギー側は、該当する新たなFWHM値の2.5倍で積算する。

理想的な線源を用いてエネルギー校正が行われている。その場合、電着層の厚さによりピーク位置が変動するものの、1つのピークが同定されたならば、全てのピークが同じチャンネル数だけシフトするであろう。

低エネルギーのピークへのテーリングと付加的な計数については、前の節で理想的な線源に対して述べた。理想的でない線源に対しては、もちろんこの影響は増す。それは、 α 粒子のエネルギーとFWHMの関数になるであろう、それゆえこの関数を得るが望ましい。

析出物の厚さが $3\ \mu\text{m}$ 以上だと、 α スペクトルでの定量が信頼できなくなる。そのような場合、放射化学収率が良いならば、電着板上の放射能を洗い流して再び処理することを勧めたい。

(4) アクチニド核種の α スペクトル

(A) トリウム

図4-56にThのスペクトルを示す。 ^{229}Th を放射化学収率のトレーサーとして使用すると、収率の決定が容易になる。既知の核種からの基本的な全ての α ピークエネルギー領域を図4-57に示す。点線は小さなピークのみを含むエネルギー領域である。この結果より、 ^{230}Th と ^{229}Th のピークが近いことを考慮すべきことが分かる。 ^{229}Th は複数の α 壊変エネルギーを有しており、そのピークは広いエネルギー領域で積算する必要がある。さらに、 ^{224}Ra の6%の分岐が、 ^{229}Th 領域に入り込んでくる補正をしなければならない。

(B) ウラン

ウランの定量に対しては、 ^{232}U が一般にトレーサーとして使われる。この場合、 ^{210}Po の寄与と、 ^{232}U が ^{228}Th へと壊変することを考慮しなければならない。このことが、ThとUの連続的な定量を困難にしている。図4-58に、ウランのスペクトルを掲載した。図4-59から、 ^{234}U の定量に於て ^{233}U を収率トレーサーとして使用することが望ましくないことが、 α 粒子のエネルギーの接近からわかる。

(C) ネプツニウム

^{237}Np の定量に対して収率トレーサーとして利用できる α 放射体がない。それゆえ

β - γ 放射体 ^{239}Np ($t_{1/2}=2.35$ day)がこの目的に使われる。図4-60に α スペクトルを示し、図4-61に ^{237}Np 測定に於て注意べき核種とそれらの妨害を示す。主たる妨害核種は、環境中に大量に存在し、 ^{237}Np と同じ領域で主な α エネルギー分布を有する ^{234}U である。 $^{234}\text{U}/^{237}\text{Np}$ の放射能比は、ある種の環境試料中では 5×10^5 にもなると見積られている。分離後の残存 ^{234}U に対する補正は、そのとき出現する ^{238}U によって行われる(図4-60参照)。

プルトニウムがネプツニウムから分離されてないと、 $^{239+240}\text{Pu}$ のテーリングが妨害となるだろう。 ^{231}Pa は、2つの強い α エネルギーを持ち、その1つ(12%の分岐)が ^{237}Np のエネルギー領域に妨害となる。 ^{237}Np が4.70~4.83MeVまで積算されるならば、 ^{231}Pa からの妨害は無視することができるだろう。このエネルギー領域には ^{237}Np の α 粒子の81%が含まれる。

(D) プルトニウム

プルトニウム定量の放射化学収率トレーサーは ^{236}Pu と ^{242}Pu である。図4-62に典型的なスペクトルを示す。ここでは両方のトレーサーが使われている。 ^{236}Pu よりも ^{242}Pu を使用する方が幾らか利点を有している。物理的半減期の短い ^{236}Pu は壊変の補正を必要とする。Thの除染が不完全だと、 ^{236}Pu は ^{224}Ra からの妨害をうける。このことが、見かけ上収率を上げてしまうことになる。収率トレーサーは、しばしば他のPu同位体(^{238}Pu , ^{241}Pu)不純物を含む。 ^{236}Pu から ^{238}Pu 領域へのテーリングと同様に、このことを考慮しなければならない。また、 ^{236}Pu はそれぞれウランとトリウム定量で考慮を要する ^{232}U と ^{228}Th を生成する。図4-63にプルトニウムスペクトルに重要な核種と、それらのピークエネルギー積分領域を示した。この図と図4-54のグラフより、もし ^{210}Po が存在すると、そのテーリングが $^{239+240}\text{Pu}$ に深刻な妨害を与えることが分かる。

(E) アメリシウム, キュリウム

通常、 ^{243}Am が ^{241}Am の収率トレーサーとして使われる。大抵の分離方法においてアメリシウムとキュリウム2つの元素の化学収率が同じなので、トレーサーとしてキュリウムの同位体もしばしば使われる。

アメリシウムの典型的なスペクトル(図4-64参照)において、しばしば ^{244}Cm も検

出されている。アメリカウムとキュリウムの定量において、 α スペクトルの劣化をもたらす電着層の厚みの原因となる高濃度のランタニドの存在以外にも、幾つかの問題がある。 ^{210}Po (^{210}Pb , ^{210}Bi) の様な天然の α 放射体が収率トレーサーの ^{243}Am に深刻な妨害を与える。しばしば ^{210}Po や ^{210}Pb の濃度が ^{241}Am の 10^3 倍以上にもなることがある。加えられる収率トレーサーの量は ^{241}Am と比べて余りに少なすぎてはいけない。ある程度以上添加しないと ^{243}Am ピークが ^{241}Am からのテーリングにより妨害される。

キュリウムの定量においての重大な問題点は、アクチニウムの同位体が化学分離で同じ挙動を取ることにある。これらアクチニウム同位体のうち ^{227}Ac は、 ^{242}Cm や ^{244}Cm の妨げとなる ^{227}Th と ^{223}Ra を娘核種として素早く生成するからである。これらは図4-65に示しておいた。

アメリカウムの極低レベルの定量において、もし ^{242}Pu が試料に添加されたならば特別の注意が必要となる。なぜならば ^{242}Pu は一般に ^{241}Am へと壊変する ^{241}Pu を含んでいるからである。

(5) ウラン・トリウムの分析の実際⁹⁾

環境粉末試料 (5~10g) を、各種酸溶液で溶解またはリーチング処理する。この溶液に化学収率測定のために放射平衡にある ^{232}U - ^{228}Th スパイクや Fe^{3+} を加え、以下の実験操作を行う。

一日放置した溶液に炭酸イオンを含まないアンモニア水を加えて水酸化物を沈澱させる。UとThが共沈している沈澱物を約1N HClで溶解後加熱し、その中へ熱NaOH溶液を加えて再度水酸化物を沈澱させる。この操作を繰り返し、試料溶解過程で溶出したAlを出来るだけ除去する。遠心分離で集めた沈澱物を洗浄した後、8N HClで溶解する。この溶液からイソプロピルエーテル抽出で Fe^{3+} を除去し、ついでHCl溶液を陰イオン交換樹脂 (Dowex 1×8, 200~400mesh) 約10mlを装填したカラムに通す。カラムを8NHClで十分洗浄し、通過液を全て集めTh精製操作へ移す。陰イオン交換樹脂に吸着しているU同位体を0.1N HClで溶離し、ホットプレート上で蒸発乾固し、残渣があれば8N HClで溶解した後、Uの精製を行う。一方、Th同位体を含む8N HCl溶液は等量の水を加えて4N HCl溶液にした後、陽イオン交換 (Dowex 50W × 8, 100~200mesh) カラムに通す。カラムを4N HClで十分洗浄した後、0.5M (COOH)₂溶液でThを溶離する。その後、濃 HNO_3 及び濃

HC10₄ とともに蒸発乾固して、(COOH)₂ を分解する。U同位体については、8N HCl溶液からTNOA（トリ-n-オクチルアミン）抽出を行う。さらに、0.1N HCl中に逆抽出し、HCl溶液をキシレンで洗浄する。この HCl溶液に濃HNO₃と濃HC10₄を加え、蒸発乾固する。蒸発乾固後は両方とも、容器に残渣が残らないことが望ましい。

容器の内壁を0.1N HNO₃で洗いながら、精製された両同位体を取り出し、Th同位体はTTA（テノイル三フッ化アセトン）で直接抽出する。U同位体については、1N NaOH 溶液を添加して、溶液のpH値を3~4に調整後TTA 抽出を行う。ついでホットプレート上で加熱した直径約2.5cmのステンレス金属板上に注意深くTTAを滴下しながら蒸発乾固する。最後に、ステンレス板をガスバーナー炎で赤熱することで有機物を焼却除去し、 α 線スペクトル測定用試料線源とする。 α 線源作製法としては電解法もよく用いられる。U及びThの各同位体量や各放射能比の測定は、表面障壁型シリコン(SSB) 検出器を接続した波高分析器を用い、 α 線スペクトル法によって行う。図4-51に見られる α 線エネルギー相当の位置に²³⁸U, ²³⁴U および²²⁸Th, ²³⁰Th, ²³²Th の α 線スペクトルが得られる。各々の同位体ピーク下の面積を積算し、スパイク核種としての²³²Uおよび²²⁸Th α 線ピーク面積をもとに化学収率を補正することにより、目的とする(²³⁸U) α 、(²³⁴U) α 、(²²⁸Th, ²³⁰Th, ²³²Th) α の壊変率およびそれらの比が求まる。

4.7.3 液体シンチレーション測定

液体シンチレーション(LSC) 計測においては、シンチレーター中での放射性壊変に伴う放射線計測の際に、自己吸収効果を見逃し得るため高計数効率を有することは周知の事柄である。特に、環境試料中の α 放射性核種からの α 粒子のエネルギーは4~6MeVであり、LSC中の発光強度については、400~600keVの β 線エネルギーに相当しており、これら α 放射体のLSCによる検出効率はほぼ100%と考えて良いので環境試料の微量 α 放射体の検出定量に最適である。実際、貴ガス元素のRnをシンチレーターを溶かし込んだトルエン溶媒で抽出し、シンチレーション計測することで簡便にRnやRaを定量できる。同様に、目的 α 放射体をシンチレーターを含む溶媒へ選択的に抽出し、 α 線由来のシンチレーションを計測する方法も開発されている。近年は、このLSC計測法でも α 線エネルギー分解能の改善が、シンチレーション溶液へのナフタレン添加や脱酸素処理により進んでおり、 α 放射体のエネルギーの弁別も可能と成ってきている。 α と β 粒子もパルス波形弁別法(PSD, Pulse Shape Discrimination)によって区別出来るため、LSCによ

る環境中の全 α と β 放射体の評価も可能になった¹⁰⁾。今後とも、このLSC法は簡便なかつ高感度な環境放射能検出法として進展するであろう。

(1) 環境水中のラドン・ラジウムの液シン測定¹¹⁾

試料水は出来るだけ静かに湧出口からロート付きポリエチレンパイプを用い、サイホン方式で1ℓの中蓋付きポリエチレンびんに採取する。試料水はびんの口からしばらくオーバーフローさせた後びんの胴を押して余分の水を捨てて1ℓとし、液体シンチレーター（以下LS、PPO 4g/1、POPOP 0.1g/1トルエン溶液）40mlを加えて1分間激しく震盪させ水中のラドンをトルエン層に抽出する。トルエン層は分取管を用いてLSC測定用低カリガラスバイアルに移して測定試料とする。

この方法はラドンがトルエン等有機溶媒に非常によく溶けることを利用して水中のラドンをトルエンベースのLSで抽出し、LSCで測定するものである。LSに溶け込んだラドンは順次壊変し、半減期22年の²¹⁰Poに至るまでの5核種の間で抽出後3時間10分以降に放射平衡に達するため、測定は放射平衡成立以後に行う。操作方法は簡便で壊変系列の5核種の放射能を同時に測るため感度が5倍になる。

水中のラジウムの測定では、1ℓのガラス瓶に試料水1ℓとLS40mlを入れてテフロン栓で密栓し、瓶の上部の空気層中のラドンが栓の部分から漏出しないように倒立させた状態で10~14日放置する。その間に試料水中のラジウムから生成してくるラドンを共存させて放置したLSにより抽出し、ラドンの測定法に準じてLSCで積分計数法を用いて測定する。得られたラドン量と平衡量にあるラジウムが算出できる。

(2) 抽出シンチレーターを用いたラジウムのLSC測定^{12) 13)}

環境水あるいは通常の化学操作で可溶化した既知量の溶液に収率トレーサー¹³³Baあるいは²²⁴Raをスパイクし、10mgのBa²⁺キャリアーを添加したあと、Ba/Ra硫酸塩として沈殿させる。沈殿を集め洗浄し、飽和炭酸アンモニウム溶液とともに加熱し沈殿を炭酸塩に変える。沈殿を洗浄した後、薄い酸に溶かす。溶液のpHを9-10に調整し、LSとしてシンチレーター（PBBO）と0.1M 2-メチル-2-ヘプチルノナニク酸と0.05M ジシクロヘキサノ-21-クラウン-7を含むトルエン溶媒でRaを選択的かつ定量的に抽出し、有機溶媒部分を分取してLSC（PERALS）でスペクトル測定する。図4-66にRa抽出溶媒から得たLSCスペクトルを示す。II-aで β 線由来の連続スペクトル上に重なる分解の良好な α 線

スペクトルが見られる。同じ試料に α と β 線由来のパルスの形状の違いを電気回路により識別するパルス波形弁別(PSD)を適用した結果をIとII-bに示す。II-aスペクトルから β 線の寄与がなくなりII-bでは α 線スペクトルのみが得られている。

これらのLSCスペクトル強度をもとに、化学収率をスパイク核種量から補正し、Ra同位体量やそれらの放射能比を算出できる。

全 α 放射体、UとTh、Poなど α 放射体の専用抽出シンチレーターも開発され、現在市販品として利用できる¹⁴⁾。

参考文献

- 1) 日本分析化学会編、"改訂4版分析化学便覧"、丸善(1991)、p. 305.
- 2) E. Holm, Int. J. Appl. Radiat. Isot., 35, 285 (1984).
- 3) K. Siegbahn, α -, β -, γ -Ray Spectrometry, Vol. 1. (North-Holland/Elsevier, Amsterdam, 1974).
- 4) R. W. Crawford, M. S. Baxter, Proc. Symp. on Determination of Radionuclides in Environmental and Biological Materials, Paper No. 10. (Central Electricity Generating Board, London, 1978).
- 5) E. Holm, R. B. R. Persson, In Actinides in Man and Animals, Proc. of the 1979 Snowbird Actinide Workshop (Ed. M. E. Wrenn) pp. 29-42. (R. D. Press, Radiology Division, University of Utah, Salt Lake City, Utah, U. S. A., 1981).
- 6) E. Holm, R. Fukai, Talanta, 23, 853 (1976).
- 7) E. Holm, R. Fukai, Talanta, 24, 659 (1977).
- 8) J. Feldstein, I. M. Fisenne, Health Phys., 36, 59 (1979).
- 9) 日本化学会編、"第4版 実験化学講座14、"核・放射線"、丸善(1991)、p. 321.
- 10) W. J. McDowell, "Liquid Scintillation Counting, Recent Applications and Development", Academic Press (1980) p. 315.
- 11) 堀内公子、ぶんせき、1992, 372.
- 12) W. J. McDowell, B. A. Arndsten, G. N. Case, Solvent Extraction Ion Exchange, 7, 377 (1989).
- 13) W. C. Burnett, W-C. Tai, Anal. Chem., 64, 1691 (1992).
- 14) W. J. McDowell, D. T. Farar, M. R. Billings, Talanta, 21, 1231(1971).

表4-25 各種 α 線放射体の検出法の比較

	シリコン半導体 検出器 (SSD)	ガス電離箱	ZnS(Ag) シンチレーター	液体シンチレーション 検出法	粒子トラック法 (SSTD)	高周波誘導プラズマ 質量分析器(ICP-MS)
大きさ	表面積2000 mm ² まで市販	大面積可、5000 cm ² まで報告あり	PMTの表面積 (1000 cm ² も可)	約200 mlまで	大きさに制限なし	溶液試料
エネルギー分解 (核種分析)	小表面積ほど分解能高い。 通常20~50keV (可)	二重格子付き電離箱で最高30 keVの分解能 (可)	分解能不良 (不可)	α 、 β の区別可 (一部可) PSD法	特種目的以外不可能、大略値可能 (不可)	同位体比の測定も可、マトリックスの影響あり
検出効率	45%以下	50%	50%	90~100%	50%	スパイク同位体使用、0.4 pg/ml
測定用線源	粉末、液体以外可能	粉末、液体以外可能	液体以外可能	可溶性物質のみ	液、気、固体すべて可能	可溶性物質のみ
バックグラウンド	~0、反跳現象による表面汚染の可能性あり	使用ガスおよび構成材からのバックグラウンドあり	ZnSに混入不純物 α 放射体、空気中のRnと娘から1 cph位	空気中のRnと娘の混入、宇宙線など30 cpm位特別仕様の低バックグラウンド液シン溶液あり	~0 (熱処理によりバックグラウンドを消去) 空気中Rnと娘核種による汚染	使用頻度と同位体の存在により装置のバックグラウンドが増加
測定時の保守真空 など	核種分析 α スペクトロメトリーのため真空箱が必要、光感受性あり	真空・高電圧電源装置、測定用ガス必要	遮光面が必要	遮光面が必要、測定ごとにシンチレーター液の取り替え必要	Rnのない真空状態が望ましい、長時間、多数個の測定可能	真空系の保存、Arガスの濃度に依存
備考	Thの検出限界 (化学分析併用) 0.4 mBq/g (固体)、0.7 Bq/l (液体)	Rnガス測定用に有効、振動容量電位計により微量 α 放射体の検出が可能	Raの検出限界11 mBq/l 経済的	従来の液体シンチレーター用測定器使用可。水中 α 放射体の検出限界0.1Bq/l	エッチング、トラック観察が必要、面分析が可能、測定法として経済的	装置が高価、 α 放射体のみ制限されず安定同位体の量と比が測定可能、試料の完全溶解が必要、スパイク同位体の使用

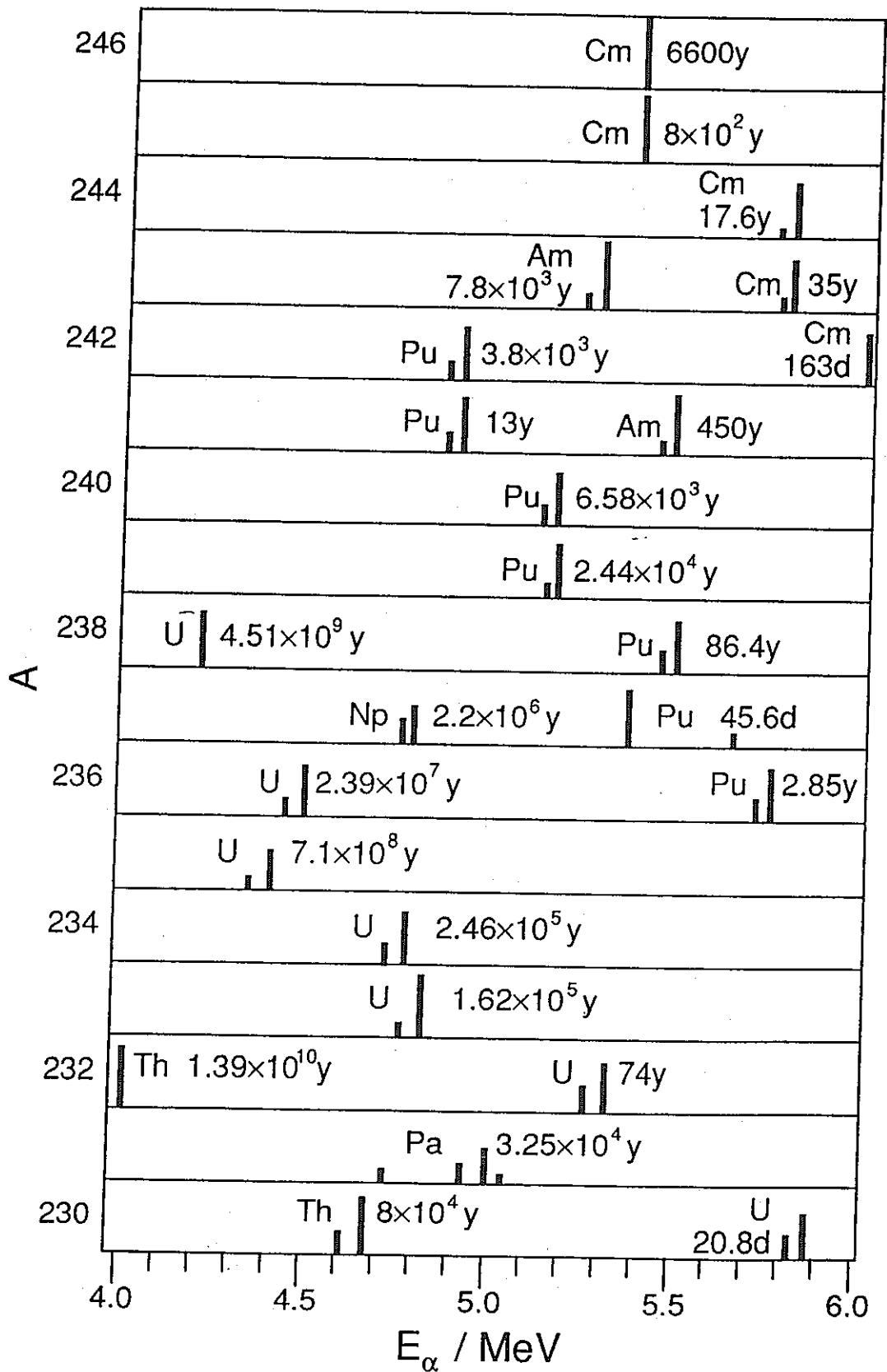


図4-51 アクチノイド α 放射性核種の質量数と α 線エネルギー

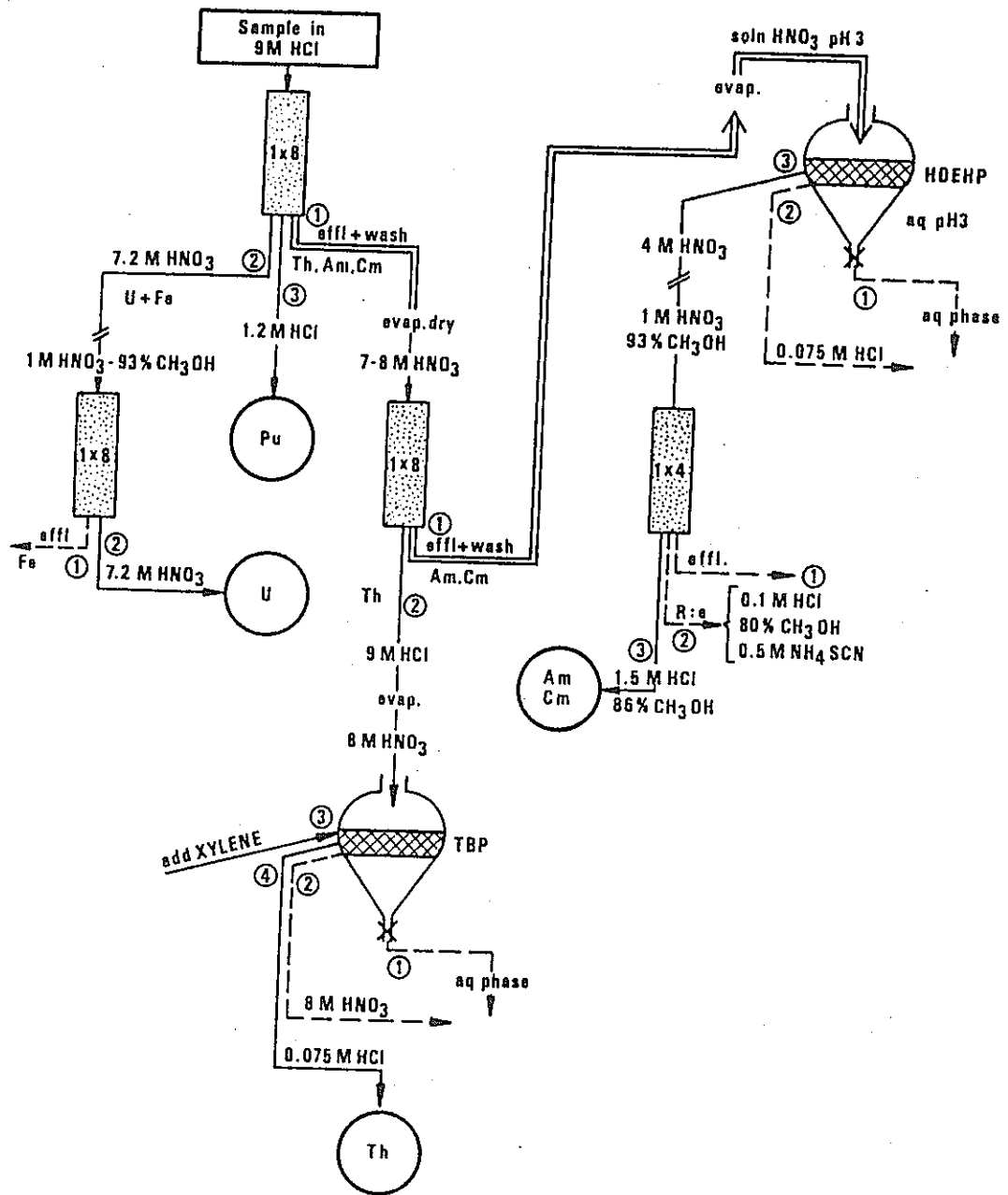


図4-52 アクチニド元素の放射化学的分離の流れ図

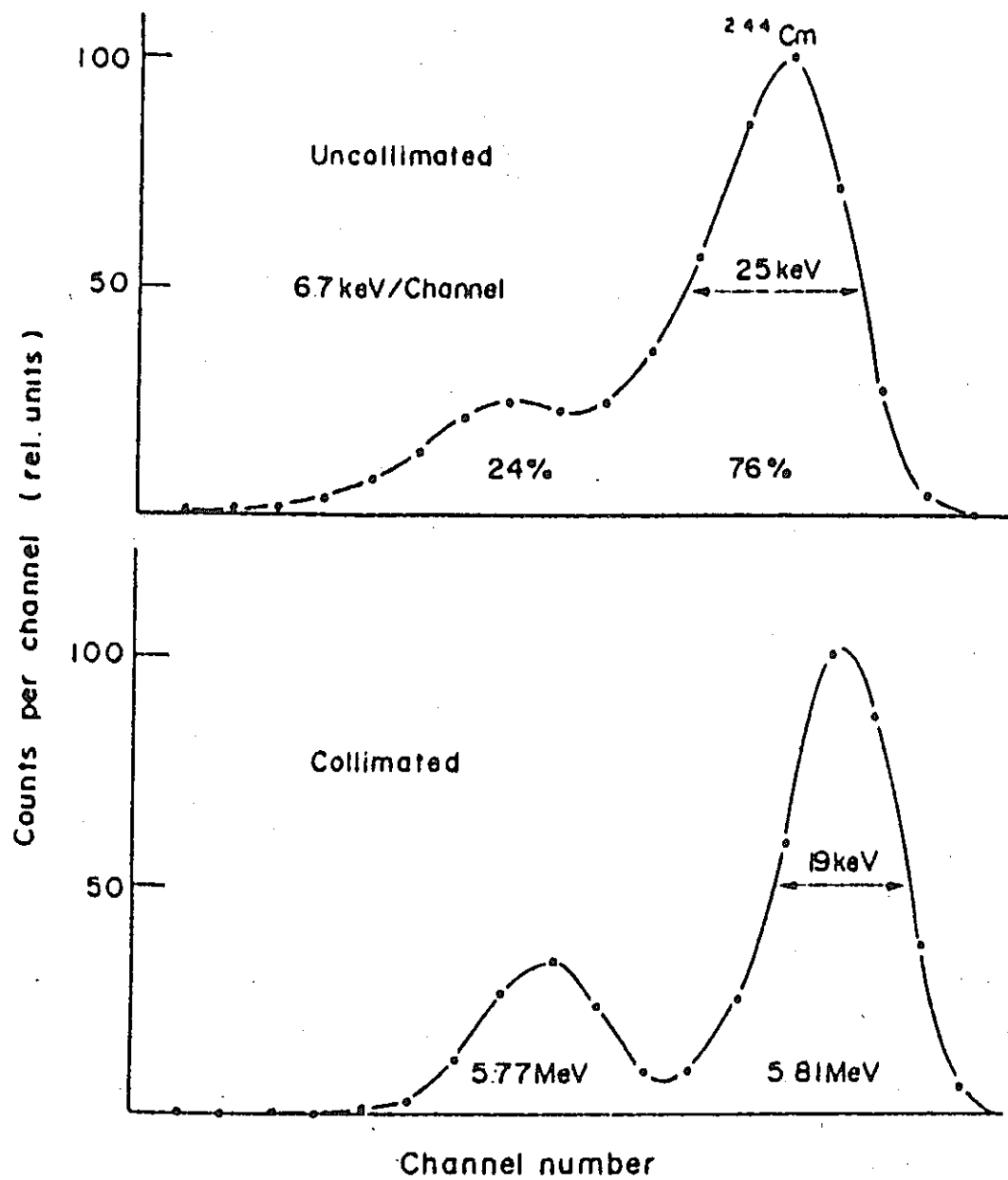


図4-53 検出器のコリメーションによるエネルギー分解能の改善

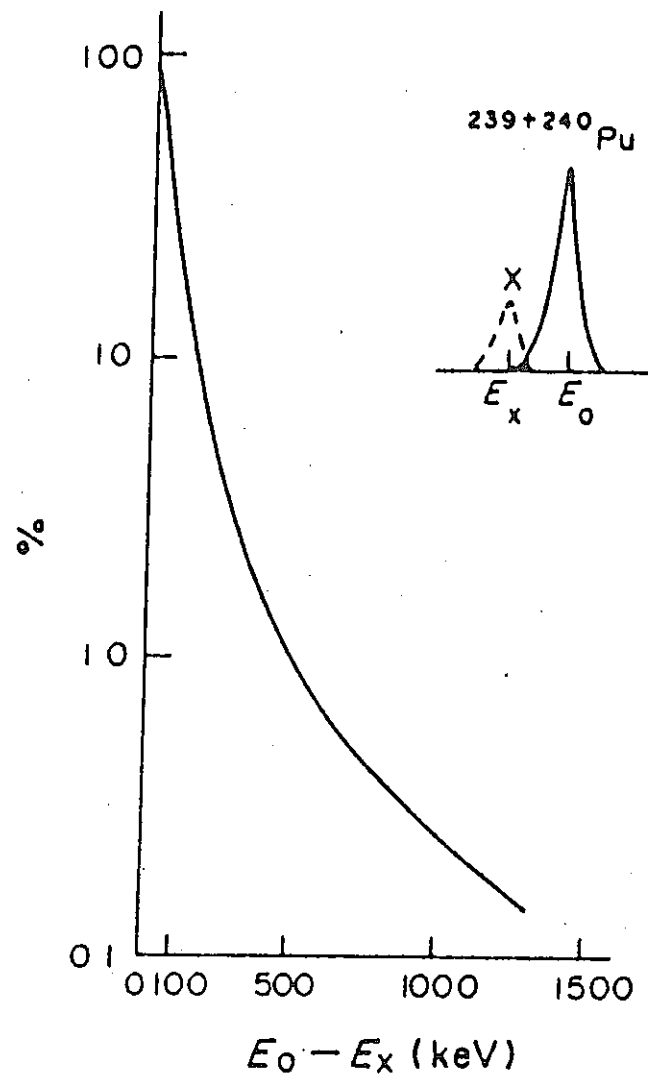


図4-54 $^{239+240}\text{Pu}E_0$ の低エネルギーテイリングの低エネルギー側に位置する他のピーク E_x への寄与、ここではプルトニウムピークの%で表してある。

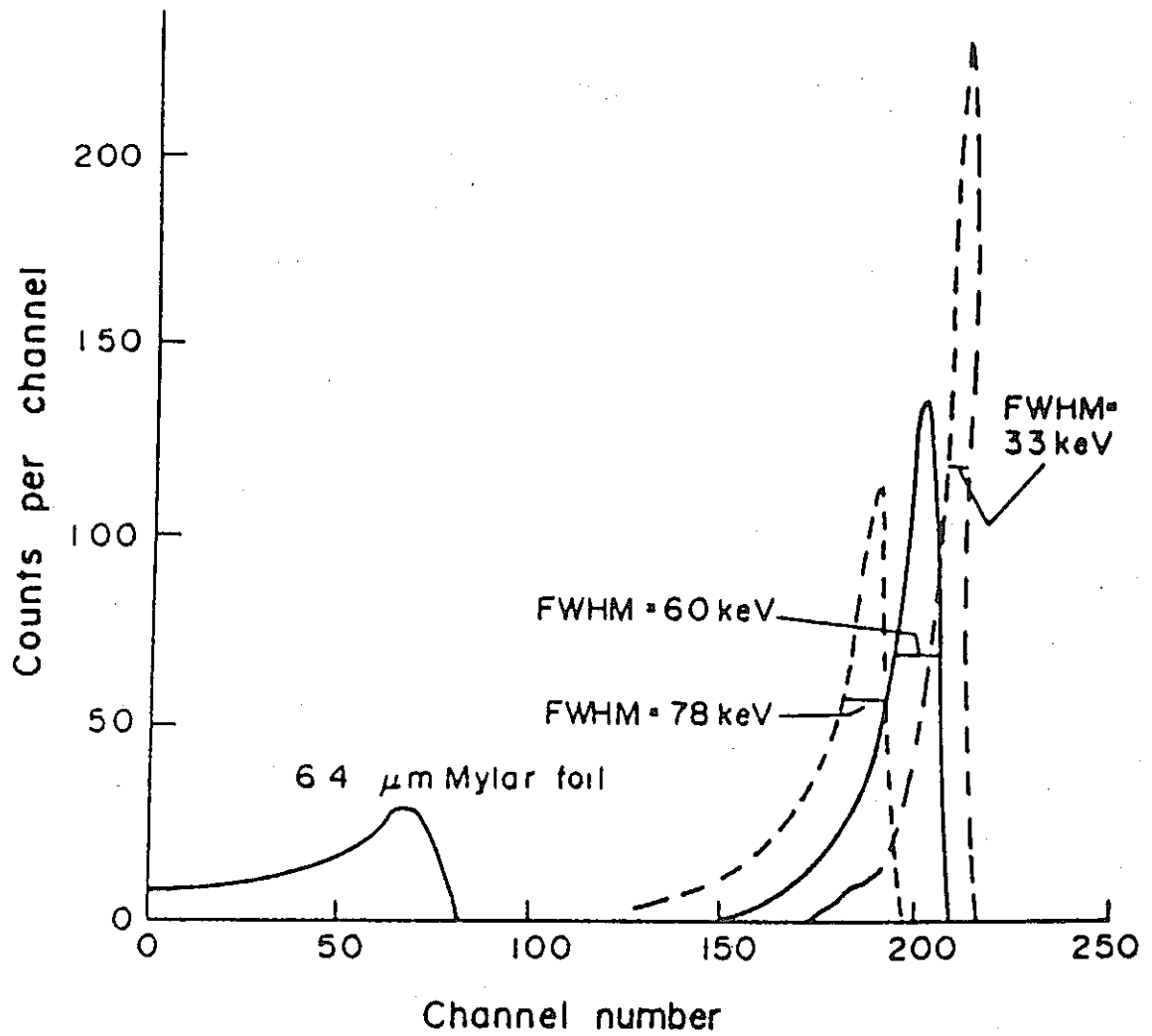


図4-55 吸収材厚みを変化にともなう $^{239+240}\text{Pu}$ 線源からの α 線スペクトルの劣化

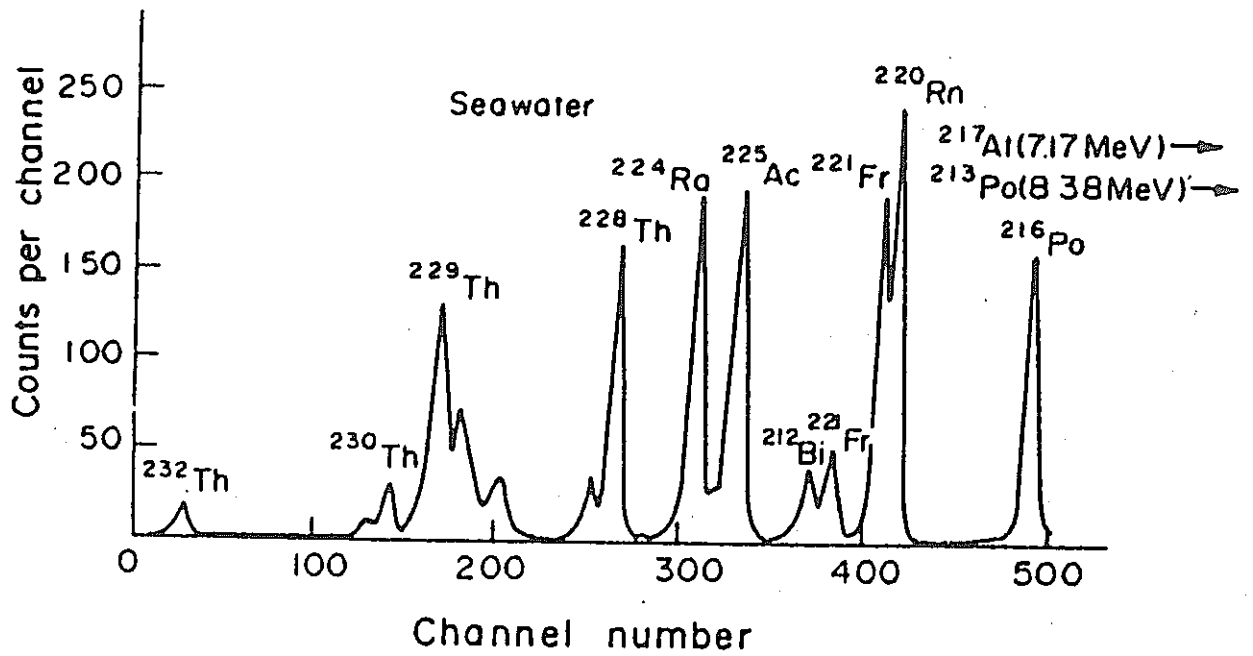


図4-56 天然トリウム試料の α 線スペクトル、トリウムは収率トレーサーとして ^{229}Th を添加した海水から分離されたものである。

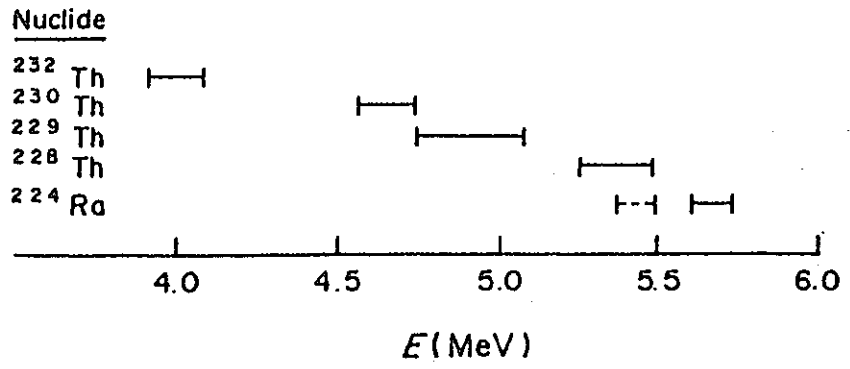


図4-57 トリウム分析で考慮されねばならない α 線放射体のエネルギー領域

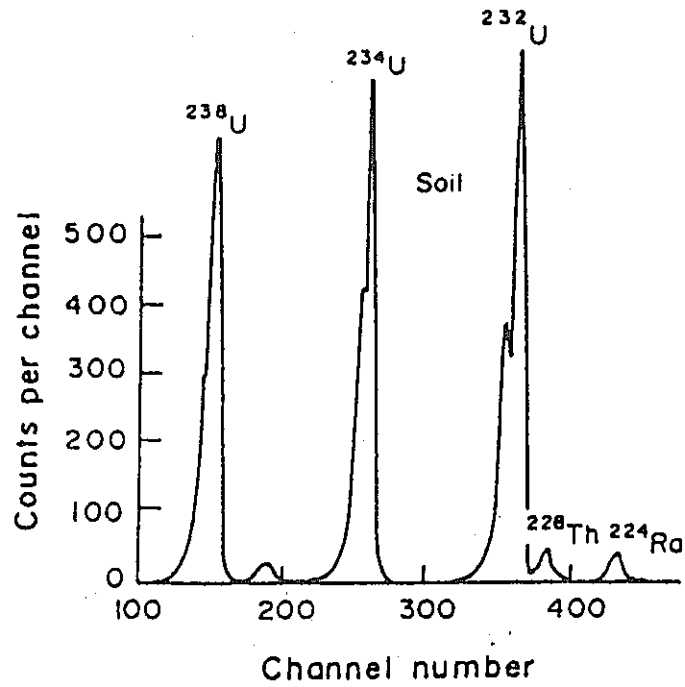


図4-58 土壌より分離されたきれいな天然ウラン試料からの α 線スペクトル

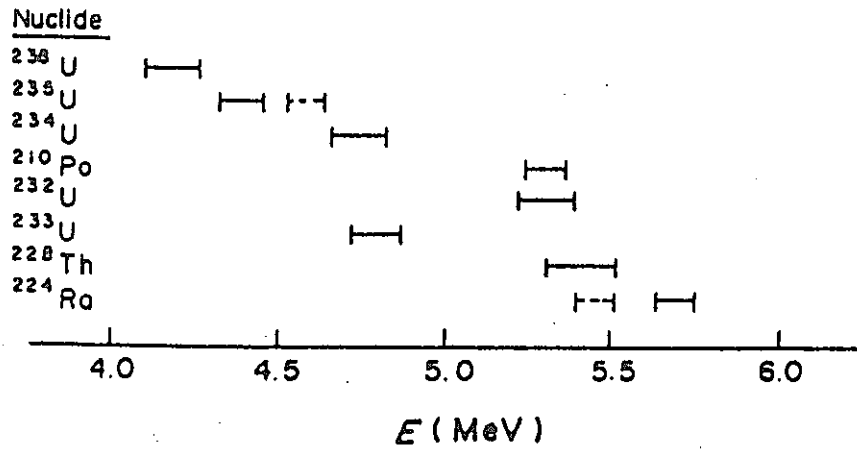


図4-59 ウラン分析で考慮する必要のある α 線放射体のエネルギー領域

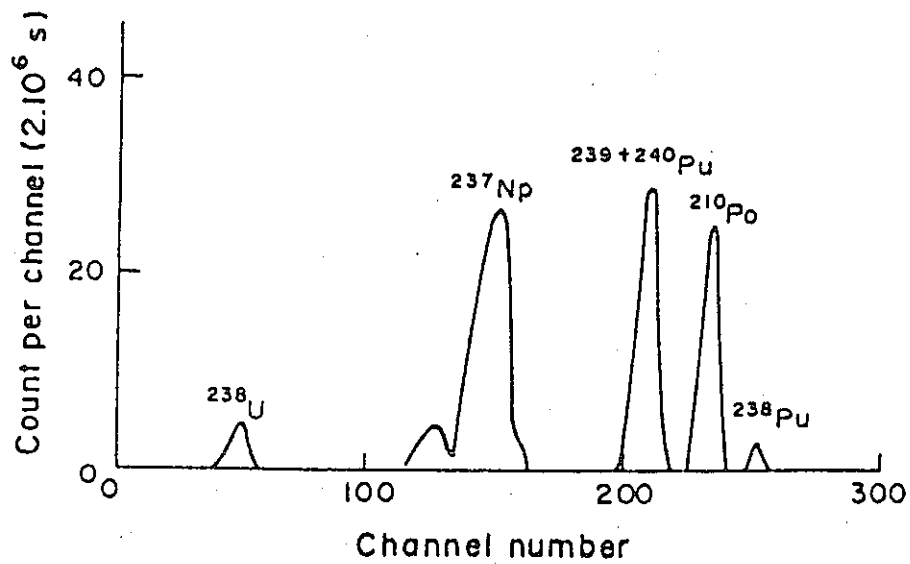


図4-60 ネプツニウム試料の α 線スペクトル

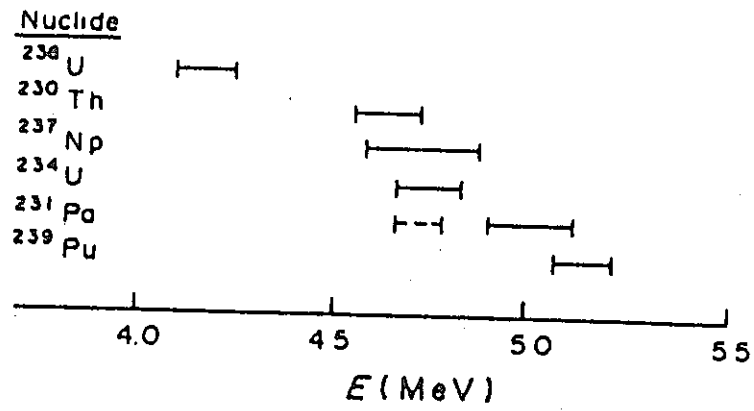


図4-61 ネプツニウム分析で考慮する必要がある α 線放射体のエネルギー領域

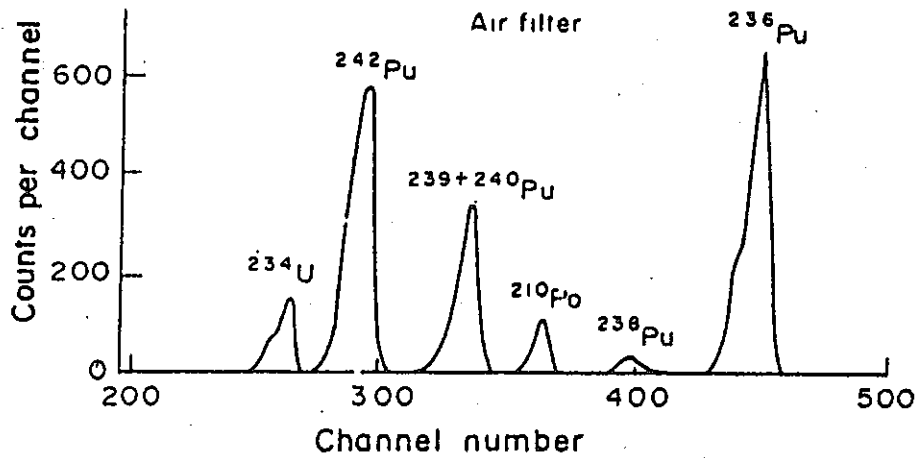


図4-62 プルトニウム試料の α 線スペクトル、プルトニウムは収率トレーサーとして ^{236}Pu と ^{242}Pu を添加したエアフィルターから分離されたものである。

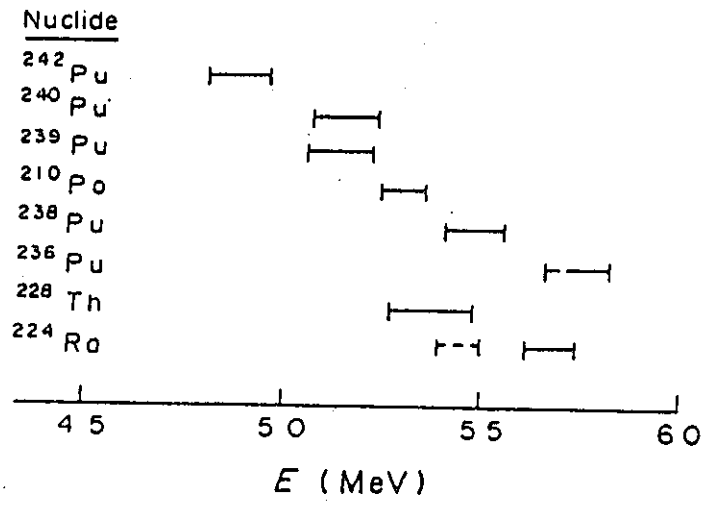


図4-63 プルトニウム分析で考慮する必要のある α 線放射体のエネルギー領域

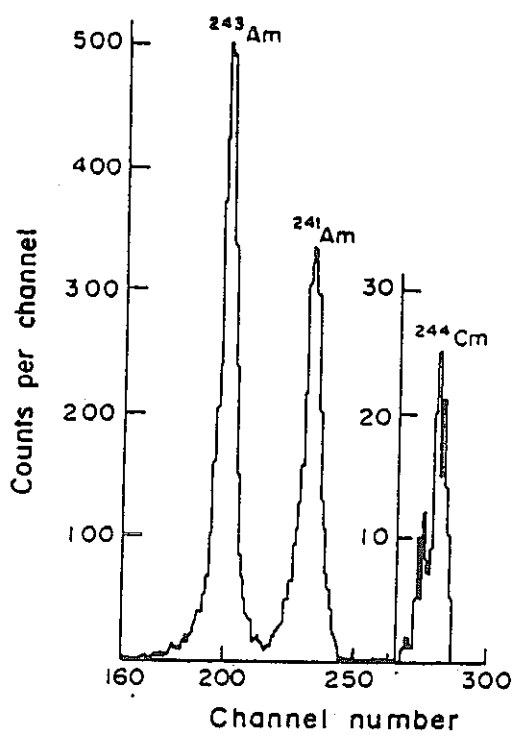


図4-64 アイリッシュ海からの海草試料中のAmとCmの α 線スペクトル

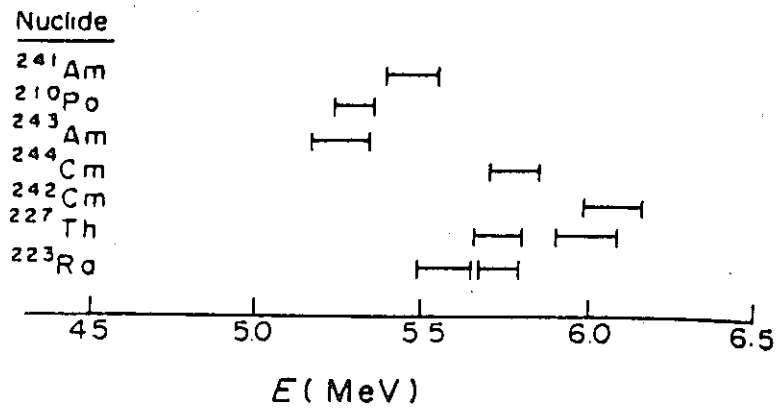


図4-65 アメリシウムとキュリウム分析で考慮する必要がある α 線放射体のエネルギー領域

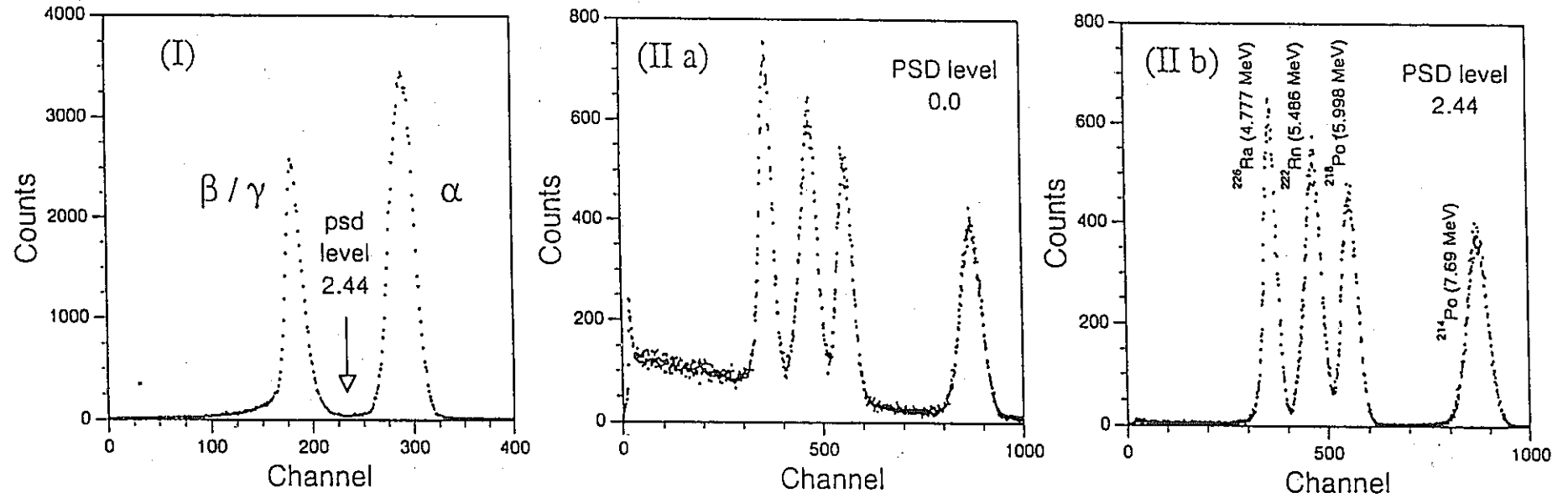


図4-66 放射平衡に達した ^{226}Ra 試料を含む液体シンチレーションからのスペクトル

(I): ゼロクロッシング時間分布

(II-a): α 線と β 線を弁別しない $\alpha \cdot \beta$ 線混合のスペクトル

(II-b): α 線と β 線を弁別し α 線のみにしたスペクトル

4.8 クロスチェックについて

環境放射能分析は、環境における放射性物質の汚染状況の把握や被ばく線量の評価・推定等の環境放射線モニタリングあるいは放射性核種の環境循環等の研究にとって不可欠な項目の一つである。その分析の信頼性の確保は、環境放射線モニタリングにおいてはその根幹を成し、モニタリングデータが社会的に受け入れられるか否かを決定するものである。

分析値の信頼性をいかに評価し、確保、維持するかは非常に重要である。信頼性とは、JIS K 0211「分析化学用語（基礎部門）」では精度または正確さの期待できる程度と定義している。分析値の信頼性を確認するには、その前提条件として①使用する装置、機器が正常に機能し、②これらの機器の校正が、国家標準に準じた標準線源により適切にかつ十分に行われていること、③分析に使用した方法がよく検討された標準的な方法でこれを正確に実施することがあげられる。新たに開発した分析法の信頼性の確保は分析値が保証されている標準物質または基準参照物質の分析、原理の異なる複数の分析方法で分析した結果から行われている。標準物質とは、例えば米国NISTから頒布されているSRM(Standard Reference Material) 試料など国際的に信頼されている試料である。その保証値は世界の主たる分析機関および専門家が実施した種々の分析方法によって得られた分析値をもとに評価・検討して得られたものである。

標準物質は分析に関する研究開発に用いられ、測定機器等の校正や分析精度の品質管理、維持、向上など、分析法や分析値の妥当性を確認する上で非常に有効なものである。しかし、環境放射能分析の分野では、一般環境の元素分析のために用意される標準物質の種類に比べてその種類は限定され、国内はもとより、海外においても目的としたものがなかなか入手できない。まして、長半減期核種など最近話題とされる研究的要素を含む核種分析法のための標準物質の入手は困難である。

このような最近話題とされる研究的要素を含む分析法を作成した場合の妥当性の確認方法としては、分析目的の放射性核種の既知量を土壌あるいは降下物試料など実際の試料に添加して分析を行い、添加値との差、再現性、化学収率などを確認することにより行われる。しかし、その方法は、添加する核種の物理的、化学的な形態などの問題を含んでおり、単なる添加実験にすぎないとも言われる。

そこで、クロスチェックが有効となる。この方法は、複数あるいは同一の分析方法に

より、複数機関が共同で実験を行うことによる分析法の妥当性を確認する方法である。本調査研究では、研究的要素を含む最新の分析法の妥当性を評価・検討することを目的としており、同一試料について複数の機関でデータが合うかどうかを調べるこの方法が最適である。クロスチェックの結果は、種々の角度からの解析によって誤差やばらつきの原因解明の他、分析方法の改善、分析者の技術の向上に役立つ。次年度は、このクロスチェックにより、各機関が用いている分析法の妥当性を確認する。対象試料は大気あるいは土壌などの陸上環境試料を、対象核種はトリチウム、ネプツニウムなどの β 線または α 線放出核種を予定している。

また、分析値の質の維持向上のための管理は重要で、定められた手順で分析および測定作業が遂行されているか、信頼性の高いデータが提供されているかなどを日常からチェックしておく必要がある。詳細には、放射化学分析における化学収率、所内標準試料の値や実試料の平行分析の値が妥当であるか、機器測定における計数効率測定、校正、バックグラウンド測定等の管理項目の設定である。それら重要事項の管理周期等の一例を表4-26に示す。さらには、世界保健機構（WHO）の国際放射能標準センター（International Reference Center for Radioactivity, IRC）が主宰する国際的なクロスチェックなどに積極的に参加することも、分析者の意識向上や分析の質の管理を行う上で重要である。

表4-26 分析の質の管理のための重要事項（例）

項 目	管理周期
<p>γ線スペクトロメトリー</p> <ol style="list-style-type: none"> 1) 計数効率測定 2) エネルギー校正 3) バックグラウンド測定 4) 液体窒素消費量チェック 5) 分析比較試料によるチェック 6) 工程ごとのチェック 	<p>年 1 回 測定の都度 週 1 回 週 1 回 年 1 回 測定の都度</p>
<p>放射化学分析 (^{90}Sr, ^{137}Cs)</p> <ol style="list-style-type: none"> 1) 化学収率 2) 所内標準試料の分析 3) 実試料の平行分析 4) ブランク試料 5) 計数効率測定 6) 安定性等試験 7) バックグラウンド測定 	<p>分析の都度 分析の都度 分析の都度 分析の都度 年 1 回 測定の都度 測定の都度</p>
<p>トリチウム分析</p> <ol style="list-style-type: none"> 1) 計数効率測定 2) バックグラウンド測定 3) 測定試料の帯電防止 4) 異常値の棄却検定 5) シンチレータのチェック 6) テフロンバイアルの重量チェック 	<p>年 1 回 測定の都度 測定の都度 計算の都度 購入の都度 購入の都度</p>