

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
変更する。 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(II)

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1997年3月

財団法人 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 ~~1~~1309 97-001

1997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 (II)

樋口 英雄*

要 旨

本報告は、昨年度に引き続き環境中に存在する核燃料サイクルに深く関連した長半減期放射性核種の分析定量法とそのレベルに関する調査研究結果をとりまとめたものである。特に本年度は、研究の最終段階にあたる分析法の確認手法の一つであるクロスチェックを、日常食中の自由水トリチウム分析及び木片試料中のC-14分析について実施した。

本報告書には、以下の項目の内容が記載されている。

- (1) 国内および国際学会 (日本, オーストリア, ロシア, フランス, 中国) からの情報収集
- (2) 液体シンチレーション測定に関する最近の話題
 - ・光子 (γ 線) / 電子 (β 線) - 排除アルファ液体シンチレーション (PBRALS) スペクトロメトリー
 - ・トリチウム分析におけるバックグランド計数の変動
- (3) 分析精度とクロスチェック
 - ・炭素-14分析
 - ・トリチウム分析

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 : 080D0176

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 LJ1309 97-001
MARCH 1997

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

Hideo Higuchi*

Abstract

A further advanced survey on the radioanalytical methods and radioactivity level has been conducted for long-lived radionuclides related to environmental samples as well as to the nuclear fuel reprocessing.

The valuable information on recent radioanalytical techniques and behavior of long-lived radionuclides in environment was acquired from proceedings/abstracts distributed by international/domestic symposia/meeting. In present survey, the intercomparison of radioactivity analysis was also carried out for the determination of ^3H and ^{14}C in environmental samples.

This report includes the following contents:

- (1) Collection of information on recent radioanalytical techniques and behavior of long-lived radionuclides in environment from international/domestic symposia/meeting
- (2) Current topics on the liquid scintillation counting
 - Photon/Electron-Rejecting Alpha Liquid Scintillation(PERALS) Spectrometry, A Review, from Radioactivity & Radiochemistry
 - Factors for Fluctuations of Background Counting in Tritium Analysis
- (3) Cross-check and Analytical Precision
 - Tritium Analysis of Diet
 - C-14 Analysis of Fir Tree

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

PNC Liaison : Shuji Isiguro 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

(順不同、敬称略)

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
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
	磯貝啓介	(財)日本分析センター 研修・技術部 技術課
	前山健司	(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	4
3.2.1 調査研究期間	4
3.2.2 委員会開催日及び議題	4
4. 調査研究成果	5
4.1 学会からの情報収集	5
4.1.1 国際学会	5
4.1.1.1 Improvement of Environmental Transfer Models and Parameters (1996. 2. 5-6 日本)	5
4.1.1.2 International Radiation Protection Association (IRA9) (1996. 4. 14-19 オーストリア)	12
4.1.1.3 Russian-Japanese Seminar on Technetium (1996. 7. 1-5 ロシア)	14
4.1.1.4 1996 Symposium on Environmental Radioactive Nuclides Impact in Asia (1996 SBRNIA)(1996. 9. 6-8 台湾)	16
4.1.1.5 4th International Conference on Nuclear and Radiochemistry (1996. 9. 8-14 フランス)	23
4.1.1.6 Sixth International Conference on Low-Level Measurements of Actinides and Long-Lived Radionuclides in Biological and Environmental Samples (1996. 9. 9-13 フランス)	30

4.1.1.7	International Symposium on Nuclear Energy and the Environment ('96 NEE)(1996.10.14-18 中国)	41
4.1.1.8	Report of an Expert Consultation on ^{85}Kr and ^{222}Rn : measurement, effects and applications (1995.3.28-31)	46
4.1.2	国内学会	48
4.1.2.1	日本保健物理学会 第31回研究発表会 (1996.5.31-6.1 北海道)	48
4.1.2.2	第33回理工学における同位元素研究発表会 (1996.7.1-3 東京)	52
4.1.2.3	1996年度日本地球化学会年会 (1996.8.27-31 北海道)	55
4.1.2.4	日本原子力学会1996年秋の大会 (1996.9.23-25 仙台)	57
4.1.2.5	第40回放射化学討論会 (1996.10.22-24 埼玉)	58
4.1.2.6	日本放射線影響学会 (1996.11.18-20 大阪)	61
4.1.2.7	第38回環境放射能調査研究成果発表会 (1996.12.4 千葉)	63
4.2	液体シンチレーション測定に関する最近の話題	66
4.2.1	光子 (γ 線) / 電子 (β 線) - 排除アルファ液体シンチレーション(PERALS)スペクトロメトリーのまとめ	66
4.2.2	トリチウム分析におけるバックグラウンド計数の変動	99
4.3	分析精度とクロスチェック	105
4.3.1	環境放射能分析における分析精度	105
4.3.2	トリチウム分析	106
4.3.3	炭素-14分析	109
5.	まとめ	112

目 次

図4-1	α 線エネルギー(MeV) とパルス波高値(チャンネル数) との関係	91
図4-2	α 線及び β 線の液体シンチレーションスペクトル	91
図4-3	α 、 β 、 γ 線による液体シンチレーションスペクトル	92
図4-4	抽出平衡/計数容器の組み合わせ	92
図4-5	液体シンチレーションスペクトロメトリーにおける時間関係	93
図4-6a	PERALSスペクトロメータから得られた ^{226}Ra とその娘核種のスペクトル	93
図4-6b	PERALSデータマップ付PERALSスペクトロメータによる ^{226}Ra とその娘核種のスペクトル	94
図4-7	天然ウランのスペクトルへのクエンチングの効果	94
図4-8	ALPHAEX抽出シンチレータで得られたアメリシウムと天然ウランのスペクトル	95
図4-9	ThとUのTOPOへの分配係数	95
図4-10	POLEX抽出シンチレータによるポロニウムの抽出平衡曲線	96
図4-11	RADAEX抽出後の ^{226}Ra のスペクトル	96
図4-12	バックグラウンド計数率	103
図4-13	異常計数値の発現パターン	103
図4-14	バックグラウンド計数値(帯電後)	104
図4-15	静電気防止スプレー使用の有無によるバックグラウンド計数値	104

表 目 次

表4-1	β -LSカウンタによる α 液体シンチレーション計測の得失	97
表4-2	ZnSカウンタとPERALSスペクトロメータによるエアフィルターの測定	97
表4-3	蛍光分析とPERALS計測の二相分配の一連の比較による水相と有機相の分析結果	98
表4-4	分離係数	98
表4-5	海水試料の分析結果	102
表4-6	トリチウム分析結果	108
表4-7	トリチウム測定条件	108
表4-8	炭素-14分析結果	111
表4-9	炭素-14測定条件	111

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}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{243}Cm 、 ^{244}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・挙動等を目的とした総合的な調査研究を実施した。特に、本年度は研究の最終段階にあたる分析法の信頼性の確認の手法の一つであるクロスチェックを、木片試料中の ^{14}C 分析、日常食中の自由水トリチウム分析について実施した。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く、また化学形態別定量法に関しても多くは記載されていない。環境試料中の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方法が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、社会的な要請に鑑み、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最近の国内外の学会、シンポジウムにおける研究動向を調査した。また、クロスチェック分析を含めた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移行・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、斬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2年目に当たり、昨年度の成果を踏まえて、最新の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・挙動に関する調査を行った。また、 ^{14}C 分析及びトリチウム分析についてクロスチェックを実施し、分析精度についての考察を行った。

本年度の主な分担は、以下のとおりである。

(1) 学会・シンポジウムにおける情報収集

国際学会関係

橋本委員長：1996年アジア地区環境シンポジウム（台湾）

五十嵐委員：世界気象機関（WMO）全球大気監視計画（GAW）における ^{85}Kr と ^{222}Rn 観測について

久松委員：第6回生物・環境中のアクチニド・長半減期核種の低レベル測定に関する国際会議（フランス）

百島委員：核エネルギーと環境に関する国際シンポジウム（中国）
テクネチウムに関する日露セミナー（ロシア）
第9回国際放射線防護学会（オーストリア）
環境移行モデルとそのパラメータの改良（日本）

山本委員：第4回核化学と放射化学の国際会議（フランス）

国内学会関係

久松委員：日本保健物理学会 第31回研究発表会

橋本委員長：第33回理工学における同位元素研究発表会

百島委員：1996年度日本地球化学会年会

橋本委員長 : 日本原子力学会 1996 年秋の大会

山本委員 : 第 40 回放射化学討論会

久松委員 : 日本放射線影響学会

日本分析センター : 第 38 回環境放射能調査研究成果発表会

(2) 最近の話題

液体シンチレーション測定法を用いた α 核種の定量法 橋本委員長

液体シンチレーション測定法におけるトリチウムの
バックグラウンド計数の変動 日本分析センター

(3) クロスチェックの実施

トリチウム分析 : 久松委員、動燃事業団、日本分析センター

^{14}C 分析 : 百島委員、動燃事業団、日本分析センター

3.2 調査研究検討委員会

3.2.1 調査研究期間

平成 8 年 7 月 15 日 ~ 平成 9 年 3 月 10 日

3.2.2 委員会開催日及び議題

・ 第一回委員会開催日 平成 8 年 12 月 11 日 (水)

議題 (1)平成 8 年度調査研究計画について
(2)その他

・ 第二回委員会開催日 平成 9 年 2 月 19 日 (水)

議題 (1)平成 8 年度調査研究報告書について
(2)クロスチェック結果について
(3)その他

4. 調査研究成果

4.1 学会からの情報収集

4.1.1 国際学会

4.1.1.1 Improvement of Environmental Transfer Models and Parameters

(1996. 2. 5-6 日本)

(Nuclear Cross-Over Research, International Workshop)

環境移行モデルとそのパラメータの改良

開催地：東京（日本）

開催日時：1996年2月5-6日

主催：Promotion Committee on Nuclear Cross-Over Research, Japan

Specialist Committee on Assessment & Reduction of Radiation Risk, Japan

本ワークショップは長半減期放射性核種の環境中での移行・分布をモデル化するための環境データやパラメータに関連したものであった。口頭講演（6セッション）とポスター講演（4セッション）で構成されていた。口頭及びポスター講演のセッション名（講演数）は次のとおりである。

—口頭講演—

- ・一般（3）
- ・移行パラメータ（2）
- ・陸圏における放射性核種の挙動（2）
- ・大気拡散モデル（2）
- ・陸圏におけるトリチウムの挙動—1（2）
- ・陸圏におけるトリチウムの挙動—2（2）

—ポスター講演—

- ・ 土壌から植物への放射性核種の移行 (4)
- ・ 土壌中での放射性核種の挙動 (4)
- ・ 陸圏における放射性核種の挙動の不確定性 (4)
- ・ 大気から植物への放射性核種の沈着と吸収 (3)

長半減期放射性核種の環境中での挙動と移行に関する発表が多く含まれていた。以下に、すべての講演題目と講演者を記す。

—一般—

- (1) “The radioecological model ECOSYS: concept and applications”

H. Muller and G. Prohl; GSF - ISAR (Germany)

放射性核種のフードチェーンでの移行を評価するためのモデルECOSYSについて述べている。

- (2) “The limitations of time in atmospheric transfer models”

B. Amiro; AECL (Canada)

大気放出された放射性核種の移行のモデル化について述べている。

- (3) “Other impacts of soil-borne radionuclides”

S. C. Sheppard and C. R. Macdonald; AECL (Canada)

土壌中での放射性核種の移行をモデル化する場合のパラメータについて述べている。BIOTRACというモデルを使用している。

—移行パラメーター—

- (1) “Behavior of radionuclides in soils and their uptake by crops”

M. J. Frissel; IUR (Netherlands)

放射性核種の土壌から植物への移行に関与する様々なパラメータについて検討している。

- (2) "Transfer of radionuclides to animal products following ingestion and inhalation"

P. J. Coughtrey; IUR (UK)

いくつかの放射性核種について呼吸で動物に取り込まれた場合の体内分布と体外への排出についてモデル化している。

—陸圏における放射性核種の挙動—

- (1) "Behavior of iodine in the atmosphere-soil-plant system"

Y. Muramatsu, S. Yoshida and S. Uchida; NIRS (Japan)

化学形の異なるヨウ素の植物への沈着挙動および土壌から植物への移行について報告している。

- (2) "Reliability improvement of environmental transfer models by considering the interrelationships among parameters"

H. Yasuda; NIRS (Japan)

チェルノブイリ事故汚染地帯の土壌の ^{137}Cs の分布挙動について各種の土壌パラメータにより説明している。

—大気拡散モデル—

- (1) "Experimental study on atmospheric turbulence and diffusion in a pine forest"

H. Yamazawa, H. Nagai, M. Chino and T. Hayashi; JAERI (Japan)

松林中とオープンフィールドでの大気移動の違いについて調べている。

- (2) "Experimental analysis of nuclear particles deposition in the rain or snow conditions, and development of a numerical simulation model"

T. Yoshikawa; MRI (Japan)

湿式沈着過程をローカルな気象を取り入れてモデル化している。

—陸圏におけるトリチウムの挙動— 1 —

- (1) "Modeling the transfer of tritium and carbon-14 in the environment"

R. M. Brown, P. A. Davis and S-R. Peterson; AECL (Canada)

カナダチヨークリバー研究所周辺の ^{14}C およびトリチウムの移行について報告している。

- (2) "Studies of tritium incorporation into wheat plants after short-term exposure to atmospheric tritium"

S. Diabate, S. Strack and W. Raskob; FZK (Germany)

植物組織へのトリチウムの取り込みを実験室で調べ、光合成との関係を考察している。

—陸圏におけるトリチウムの挙動— 2 —

- (1) "Model parameters and validation for tritium transfer in plants from atmospheric release"

H. Amano and M. Atarashi; JAERI (Japan)

土壌、植物、大気を含む環境中でのトリチウムの移行をモデル化している。

- (2) "Environmental factors affecting tritium concentration in forest floor"

N. Momoshima, T. Okai, H. Kakiuchi, A. Kitajima, Y. Maeda and Y. Sakuma*;

Kyushu Univ., *NIFS (Japan)

森林土壌中のトリチウム分布を大気中トリチウムの生物による沈着で説明している。

—ポスター講演—

—土壌から植物への放射性核種の移行—

- (1) "Transfer factors of radionuclides from paddy soils to polished rice"

M. Komamura, A. Tsumura, K. Kodaira*, K. Yuita and S. Yamasaki; NIAES,

*Ashikaga Inst. Technol. (Japan)

水田耕作された米の中の ^{90}Sr と ^{137}Cs の経年変化を土壌パラメータと関連させて説明している。

- (2) "Dependence of soil-to-plant transfer factors of elements on their concentrations"

H. Tsukada and T. Watabe*; IES, *NIRS (Japan)

青森県内各地の土壌とそこに生育していた植物中の元素濃度から移行係数を算出している。

- (3) "Multi-element analysis using ICP-MS to determine soil-to-plant and soil-to-mushroom transfer factors"

S. Yoshida, Y. Muramatsu, K. Tagami and S. Uchida; NIRS (Japan)

ICP-MSで土壌と植物中の微量元素を定量して移行係数を求めている。

- (4) "Studies on the transfer of Cs, Sr, Co, Mn and Zn from soil to plants and from medium to mushrooms by using radiotracer"

T. Ban-nai, Y. Muramatsu, S. Yoshida and K. Yanagisawa; NIRS (Japan)

室内で育てた野菜への土壌から元素の移行を放射性トレーサを使って評価している。

—土壌中での放射性核種の挙動—

- (1) "Microbial role in immobilization of technetium in soil under waterlogged conditions"

K. Tagami and S. Uchida; NIRS (Japan)

土壌中の微生物の作用で起こるテクネチウムの化学形の変化について報告している。

- (2) "Distribution and behavior of transuranium elements in paddy surface soil"

M. Yamamoto, L. Sha, H. Kofuji, A. Tsumura*, M. Komamura*, K. Yuita* and S. Yamasaki*; Kanazawa Univ., *NIAES (Japan)

日本各地の水田土壌中の長半減期放射性核種の分布について述べている。

- (3) "Study on distribution and behavior of long-lived radionuclides in surface soil environment"

S. Morita, H. Watanabe, H. Katagiri, Y. Akatsu and S. Ishiguro; PNC (Japan)
土壌中の長半減期放射性核種をICP-MSで分析している。

- (4) "Transfer, sources and sink for major and trace elements in urban and rural areas"

B. Schnetger, H. Heinrichs* and H-J Brumsack; Univ. of Oldenburg, *Univ. of Gottingen (Germany)

都市近郊の大気エアロゾルの化学成分を分析し、エアロゾルのソースについて評価している。

—陸圏における放射性核種の挙動の不確定性—

- (1) "The Study on a hydrological model and parameters using data on distribution of hydrogen isotopes"

K. Miyamoto; NIRS (Japan)

青森県六ヶ所村周辺の地下水中のトリチウム濃度を分析し、地下水の起源と滞留時間を評価している。

- (2) "Geostatistical analysis of solute transport in a heterogeneous aquifer"

M. Munahata and H. Kimura; JAERI (Japan)

ローカルな地下水の移行を放射性ヨウ素で調べ、詳細なモデル化を行っている。

- (3) "How to treat the uncertainty caused by spatial distribution of distribution coefficient"

M. Yoneda and Y. Inoue; Kyoto Univ. (Japan)

移行モデルで用いられる分配係数の不確かさについて検討している。

- (4) "Classification of the distribution coefficient data by mineral components and chemical forms"

S. Takeda, H. Kimura and H. Matsuzuru; JAERI (Japan)

Np、U、Seについてその化学形と土壌中での分配係数の関係について報告している。

—大気から植物への放射性核種の沈着と吸収—

- (1) "Multitracer study on absorption of radionuclides in atmosphere-plant system"

S. Ambe, T. Shinonaga, T. Watanabe and I. Yamaguchi; RIKEN (Japan)

多種類の放射性核種を含むエアロゾルを豆に散布し、その取り込みと分布を調べている。

- (2) "Transcuticular translocation of radionuclides on plant leaf surfaces"

K. Matumoto, T. Watanabe, S. Ambe and I. Yamaguchi; RIKEN (Japan)

葉面から吸収される放射性核種の挙動をマルチトレーサを用いて調べている。

- (3) "Transfer of radionuclides into and their removal from agricultural products"

S. Hisamatsu and Y. Takizawa*; Akita Univ., *NIMD (Japan)

^{137}Cs の体内への取り込みについて野菜、肉などの食品の分析を行って検討している。

4.1.1.2 International Radiation Protection Association (IRA9)

(1996.4.14-19 オーストリア)

第9回国際放射線防護学会

開催地：ウィーン（オーストリア）

開催日時：1996年4月14-19日

主催：国際放射線防護学会

本国際会議ではプレナリ・レクチャーと以下に示す16のシンポジウムからなっていた。4年毎に開催される学会で57か国から多数の人が参加している。今回は約1250名の参加であった。

1. プレナリ・レクチャー
2. 対策と治療
3. 加速器施設での放射線防護
4. 内部ドジメトリ
5. 疫学と原因確率
6. 環境測定とアセスメント
7. 患者及びスタッフの放射線防護
8. 放射線生物
9. EMFと移動電話
10. ラドン
11. 原子力施設での放射線防護
12. 外部ドジメトリ
13. 紫外線
14. 廃棄物管理
15. 大放射線源の安全性
16. レトロスペクティブ線量評価
17. リスク評価

発表の大部分はポスターセッションで行われ、発表の登録件数は951件で、カテゴリー別では「環境中の放射線防護」（210件）、「ドジメトリと計装」（191件）、「電離放射

線の生物影響」(125件)、「作業場での放射線防護」(110件)、「自然放射線被ばく」(109件)が主なものあった。長半減期放射性核種に関連した発表は「環境中の放射線防護」にいくつか見られたので、以下に講演題目と講演者を記す。

- (1) "Changes in liquid radioactive waste discharges from Sellafield to the Irish Sea: Monitoring of the environmental consequences and radiological implications"
G. J. Hunt, B. D. Smith, D. J. Swift; Lowestoft (United Kingdom)
英国のBNFLから環境放出された長半減期放射性核種の経年変化が報告されている。
- (2) "Plutonium and americium in the Rhone sediments"
L. Foulquier, L. Jourd'Heuil, A. Lambrechts, M. Morello, P. Miara, M. Pally;
St. Paul lez Durance (France)
フランス東部のRhone川の上流から下流までのプルトニウム濃度を報告している。
- (3) "Study on the behavior of technetium-99 in the environment"
S. Morita, H. Watanabe, Y. Akatsu, H. Ishiguro; PNC, Ibaragi (Japan)
ICP-MSによる低濃度の⁹⁹Tc分析法を報告している。
- (4) "Long-Time atmospheric H-3 and C-14 record in Croatia"
N. Horvatincic, I. Krajcar-Bronic, B. Obelic; Zagreb (Croatia)
毎月の降雨中のトリチウムと大気二酸化炭素中の¹⁴C濃度の経年変化を報告している。
- (5) "Radioecology of Vardar river basin"
T. Anovski, L. Cvetanovska-Nastevska, N. Jovanovski, Z. Bozinovski; Skopje (Macedonia)
マケドニア(旧ユーゴスラビア)のVardar川流域で採取された各種試料中の長寿命放射性核種濃度が報告されている。

4.1.1.3 Russian-Japanese Seminar on Technetium (1996.7.1-5 ロシア)

テクネチウムに関する日露セミナー

開催地：モスクワ（ロシア）

開催日時：1996年7月1-5日

主催：ロシア科学アカデミー

本国際会議ではPlenary Lecturesと6のセッションからなっており、セッション名（講演数）は次の通りであった。

1. Plenary Lectures (4)
2. テクネチウムの再処理と陸圏での挙動 (3)
3. ^{99m}Tc ジェネレーターによる ^{99m}Tc 放射性薬品 (12)
4. 環境中のテクネチウムの分析化学 (4)
5. テクネチウムの錯体化学 (7)
6. テクネチウムの核・物理化学 (6)
7. テクネチウムの利用の展望とその他の性質 (3)

日本とロシアの約30名の研究者が参加したセミナーであり、テクネチウムに関する広い範囲をカバーするものであった。挙動・分布及び分析法に関する講演は、上記のセッションの、環境中のテクネチウムの分析化学に見られた。以下に講演題目と講演者を記すが、ロシア側の講演は1件で、その他はすべて日本の研究者によるものであった。

—環境中のテクネチウムの分析化学—

(1) “Technetium-99 in Coastal Sediments from the Irish Sea”

K. Komura, M. Yamamoto, A. Tsumura, H. Kofuji, S. Oikawa, Y. Kashiwabara, K. Ueno; Kanazawa University (Japan)

低濃度の ^{99}Tc の分析法とシェラフィールドの海底土の分析結果の報告があった。

(2) “Distribution of Technetium-99 in the Pacific Ocean”

N. Momoshima, M. Sayad, Y. Maeda; Kyushu University (Japan)

海水中の ^{99}Tc の分析結果の報告があった。

(3) "Transfer of Technetium from Soil to Plant"

K. Yanagisawa, Y. Muramatsu; NIRS (Japan)

土壌から植物へのテクネチウムの移行係数の実験結果の報告があった。

(4) "Uptake of Technetium by Bottom Sediment of Fresh Water Lake and Role of Microorganisms in this Process"

T. V. Khijniak, N. N. Lyalikova, K. E. German, V. F. Peretroukhin; Russia Academy of Science, Moscow (Russia)

湖水から湖底土へのテクネチウムの移行に関与する微生物の影響を検討していた。

4.1.1.4 1996 Symposium on Environmental Radioactive Nuclides Impact in Asia

(1996 SERNIA) (1996.9.6-8 台湾)

1996年アジア地区環境放射能シンポジウム

標記シンポジウムが、9月6日から8日にかけて台北市の中央研究院において、中華民国環境保護学会の主催、中華民国原子力委員会、中華民国環境保護局、九州環境管理協会、国立中央大学、国立精華大学、台湾電力会社の共催のもとに開かれた。

全ての発表は講演方式であり、講演件数の発表者出身国別にみると、日本30件、中華民国（台湾）16件、韓国2件、ベトナム1件の計49件で、参加登録者は約170名であった。

シンポジウムは、この学会のChairmanである黄金旺台湾中原大学教授の開会の辞と、劉兆漢国立中央大学学長、胡錦標中華民国原子力委員会委員長、高島良正九州環境管理協会理事長の挨拶により開会し、引き続き招待講演4件、一般講演45件が2日半の日程で行なわれた。

以下に特に長寿命環境放射能定量法と密接に関連した講演題目を記す。

－招待講演－

(1) "Climatic Effects on the Atmospheric Radiocarbon Concentration".

Kunihiko Kigoshi (木越邦彦) ; Radiocarbon Lab., Gakushuin University

(Japan)

^{14}C 年代測定法の世界的権威者であられる木越邦彦先生の30年以上に亘る開発研究を踏まえて、大気中に含まれる ^{14}C 含量の変動の観察とその原因追究を多方面から考察し講演された。

(2) "Measurement and Behavior of Gaseous Environmental Radionuclides in the Atmosphere".

Yoshimasa Takashima (高島良正) ; Kyushu Environmental Evaluation

Association, Fukuoka (Japan)

気体状長寿命環境放射性物質、 ^3H , ^{14}C , ^{85}Kr , ^{129}I , ^{222}Rn などの測定について、これまでの豊富な測定経験をもとに、測定法や原子力発電所周辺をも含む発生原因や気象条件への依存性について解説された。

セッション I 「核種分析技術」

(1) "Sorpton Behavior of Cesium in a Concrete or Mortar".

T. Sasaki, K. Idemitsu, H. Furuya, Y. Inagaki, and T. Arima; Faculty of Engineering, Kyushu University (Japan)

^{134}Cs を用いてモルタルやコンクリートへの吸着挙動を調べた。その結果吸着はラングミュワーの等温吸着式に従っており、大部分はイオン吸着であった。

(2) "Measurements of Environmental Radioactivities Using Liquid Scintillation Counting Combined with Time Interval Analysis (TIA) and Pulse Shape Discrimination (PSD)".

T. Hashimoto, N. Fukuyama, T. Iwahashi, and Y. Yoneyama; Faculty of Science, Niigata University (Japan)

液体シンチレーション測定を用いて、ミリ秒で連続的に α 壊変する相関事象をその他のバックグラウンド事象から選択的に抽出測定する方法を、パルス時間間隔解析法で開発した。波形弁別で β 線由来のパルスを排除すればより感度が高くなることが分かった。

(3) "Recent Levels of Atmospheric Tritium in Japan".

T. Okai, N. Momoshima, and Y. Takashima; Faculty of Engineering and Science, Kyushu University, and Kyushu Environmental Evaluation Association

1984年来連続測定している福岡でのトリチウム濃度変化が、化学種を元に報告された。

(4) "Distribution and Mean Residence Time of Natural Radionuclides in the Forest Ecosystem".

T. Baba, Y. Maeda, Y. Inokura, S. Sugihara, and S. Osaki; Faculty of Science and Agriculture, and Radioisotope Center, Kyushu University

森林系での天然放射性核種の分布と平均滞留時間を ^7Be , ^{210}Pb , ^{210}Po の測定と移行モデル計算を元に評価した。

- (5) "Distribution and Behavior of Natural and Artificial Radionuclides in Soils".
S. Sugihara, N. Momoshima, S. Osaki, and Y. Takashima; Kyushu University,
and Kyushu Environmental Evaluation Association

九州北部の4ヶ所について、 γ スペクトロメトリーにより土壌中の放射能を分析し、
地中へのこれら放射能の移行モデルとの比較検討を行った。

- (6) "Radiochemical Analysis of Hokutolite".

N. Momoshima, J. Nita, Y. Maeda, S. Sugihara, I. Shinno, N. Matsuoka, and C.
W. Huang; Kyushu University, Kyushu Environmental Evaluation Association,
and Chung Yuan Christian University (Taiwan)

台湾北投温泉より得た北投石中の放射能分布をイメージングプレートと γ スペクト
ロメトリーにより測定した。更にラジウム同位体比をもとに北投石の成長率を見積も
った。

- (7) "Variation of Tritium Concentration in Sterilized Litter on the Forest Floor".

H. Kakiuchi, N. Momoshima, Y. Maeda, and T. Okai; Kyushu University

松葉中の組織結合水と自由水中のトリチウム濃度を測定したところ、幾つかの試料
処理方法から明かな差異は見出せなかった。

- (8) "Development of Analysis for the Concentration of Radon in Ground Water".

K. Hasegawa and A. Ohno; Shizuoka University (Japan)

地下水中のラドン濃度の測定を、3種の方法で試みた。IM泉効計の方がトルエン抽
出法や直接測定法よりも2倍程度高い値を与えており、その原因を考察中である。

- (9) "Determination of $^{99}\text{TcO}_4^-$ by Laser Induced Photoacoustic Spectroscopy Coupled
with Ion-Pair Extraction with Ferroin".

S. Naito, T. Sekine, and H. Kudo; Tohoku University (Japan)

Tc陰イオンとフェロイン陽イオンとのイオン対抽出を適用し、陽イオンを選択的に
500nmのレーザーパルスで照射したとき発生する音響を検出することにより微量 ^{99}Tc
の定量ができた。

- (10) "Sample Treatment Techniques for the Determination of Environmental Radiocarbon in the Nuclear Power Station Area".

S. K. Chun, S. Y. Cho, Y. S. Kim, H. J. Woo, and D. W. Kang; Korean Institute of Geology and Korean Electric Power Research Institute (Korea)

ベンゼン法等で原子力発電所周辺の空気中の ^{14}C 濃度測定を行った。

- (11) "Comparison of Coprecipitation Methods as Preconcentrating Step of Gross Beta Radioactivity Measurement in Sea Water".

Y. M. Chang, M. S. Li, and W. W. Yeh; Taiwan Power Company (Taiwan, R. O. C.)

フェロシアン化銅、鉄、亜鉛やFe(III)とBaを含む水酸化物、硫化亜鉛、などへの原子力施設関連からの廃棄放射性核種の共沈挙動を詳しく研究した。フェロシアン化亜鉛が ^{85}Sr 以外の核種をほぼ100%捕集していた。

- (12) "Radioactivity Measurement of Gamma Emitting Nuclide in Measurement Assurance Program of 1995".

C. H. Young, S. K. Chang, J. Y. King, L. C. Men, and S. J. Wang; Institute of Energy Research (Taiwan, R. O. C.)

γ スペクトロメトリの基準化の調査結果を纏めた。

セッションII 「環境モニタリングシステム」

- (1) "Environmental Radioactivity Measurements in the Philippines"

E. B. Duran, C. M. Vera, T. Y. Garcia, F. M. Cruz, L. J. H. Palad, E. B. Enriquez, S. O. Enriquez, A. A. Asada, and J. M. Eduardo; Philippine Nuclear Research Institute (Philippine)

自然放射線由来の被曝線量の測定、国外由来の原子炉事故をも考慮した放射線強度図の作成、一般家庭や鉱山労働者へのRn被曝線量評価等を報告している。

- (2) "Groundwater Radon Observation for Earthquake Prediction in Japan".

H. Wakita; University of Tokyo (Japan)

Rnの連続観測での急変に基づく地震予知へのこれまでの実験結果について報告している。その結果地震と関連したRn濃度の変化は明かであり、限られた井戸のみがRn感受性を有しており、それらの井戸からの信号はその地区のストレス蓄積の状況に依存しているらしいと考えられた。

- (3) "A New Approach to Environmental Analysis of Technetium-99 by ICP-MS".

N. Momoshima, M. Sayad, Y. Maeda; Kyushu University (Japan)

^{99}Tc の測定のため収率トレーサ $^{95\text{m}}\text{Tc}$ をNbへの α 線照射で調製するとともに、海水からの濃縮やそれに引き続く化学的精製の検討を行い、最後にICP-MSによる測定を検討し、実際の土壌試料や海水試料の分析定量を行った。

- (4) "Consideration on the Source of ^{90}Sr and ^{137}Cs Observed in Tsukuba".

Y. Igarashi, T. Miyano, M. Aoyama, and K. Hirose, Meteorological Research Institute (Japan)

1957年以來の気象研での ^{137}Cs , ^{90}Sr の測定結果を基に、成層圏から対流圏へのRIの混合の新たなモデルや大陸からの風成塵で運ばれるRIについて考察している。

- (5) "The Determination of Trace Elements in Squids Using ICP-MS/INAA and its Application to the Marine Radioactivity Monitoring".

S. J. Song, K. Sato, K. Kitamura, T. Maeyama, Z. K. U, K. Tomura, and H. Higuchi; Cheju National University, Korea, and Japan Chemical Analysis Center and Rikkyo University (Japan)

烏賊を使った海水中に存在するRIのモニタ法を探るため、ICP-MSと非破壊放射化分析で21種以上の元素を定量するとともに、海水に存在する人工放射性核種 ^{60}Co , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{137}Cs を検出定量した。放射化分析とICP-MSでの定量結果はよい一致を示した。

- (6) "Study on Method of Rn-222 Contain in Pei-Tou Hotspring Water".

C.W. Huang, J. T. Tsai, K. C. Dung, C. H. Hsu, and W. T. Chang; Chung

University, and Central Police University (Taiwan, R. O. C.)

北投温泉水中の ^{222}Rn を液体シンチレーション法で測定し、水温上昇と共にRn濃度が減少していることを見出した。

セッションIII 「環境影響評価と除染技術」

(1) "Soil Activation at High Energy Accelerator Facilities".

Y. Oki, M. Numajiri, T. Suzuki, Y. Kanda, T. Miura, and K. Kondo; National Laboratory for High Energy Physics (KEK) (Japan)

高エネルギープロトンの土壌照射由来の放射性核種の地下水への移行挙動を探るため、放射化した土壌を使いリーチング実験した。 ^{22}Na が可動性を有していた。

(2) "Tritium Release from High Energy Accelerator Facilities".

K. Kondo, Y. Oki, T. Suzuki, T. Miura, and M. Numajiri; National Laboratory for High Energy Physics (Japan)

KEKからの $^{14}\text{N}(n, t)^{12}\text{C}$ 反応由来のトリチウムの化学形などにつき、トンネル中の空気について調べた。

(3) "The Distributions of Po-210 in the Atmosphere around Mr. Sakurajima in Kagoshima Prefecture, Japan".

N. Syojo, H. Imamura, M. Fujisaki, N. Ashikawa, N. Matsuoka, and Y. Takashima; Kagoshima Prefectural Institute for Environmental Science, and Kyushu Environmental Association (Japan)

櫻島火山に関連した ^{210}Po 濃度を、試料溶解後銀板への自発析出線源を用い α 線スペクトロメトリーで求めた。結果を火山灰の粒子サイズや風向に関して考察している。

(4) "Radioactivity in Some Sources and Products of Mineral Water".

T. T. Minh, N. Q. Long, N. T. Phan, N. H. Quang, T. T. Mai, T. Q. Chinh, P. Q. Dien, and V. T. Bac; Science and Technical Nuclear Institute of Viet Nam
ベトナムの7鉱泉中のRn, Ra, U濃度を α スペクトル法やレーザー蛍光法を用いて求

めている。特に強い鉱泉は見出せなかった。

- (5) "Radioactivity Protections Surey in Exploitation and Processing of Mineral Sand".

B. V. Huang, T. T. Minh, P. Q. Dien, N. T. Phan, N. H. Quang, and N. Q. Long;
Vietnam Atomic Energy Commission, and Institute Science and Technology for
Nuclear (Vietnam)

イルメナイト—ジルコン—モナザイトを含む鉱物砂の2採取地区の放射能レベルが測定された。鉱滓や塵に含まれる放射能に除去を要する濃度のものが見出された。

- (6) "Carbon-14 Activities in the Environmental Samples in Japan".

K. Saeki, M. Koike, H. Kawamura, T. Nagano, N. Matsuoka, Y. Takashima, and N. Momoshima; Kyushu Electric Power Co., Inc., Kyushu Environmental Evaluation Association, and Kyushu University (Japan)

九州の2地区より得た木材の年輪毎の ^{14}C をベンゼン合成法/液体シンチレーション法で測定した。1965年に急激な濃度上昇が見られその後減少が続いている。

- (7) "Samarium Fluorides Coprecipitation and the Use of Sm-147 as an Inner Standard for the Determination of Transuranium Elements in Waste Water".

T. Mitugashira, M. Hara, Y. Suzuki, M. Watanabe, and F. Hirayama; Tohoku University, and Toshiba Corporation (Japan)

超ウラン元素測定用の簡便な α 線源製作にSmF沈殿薄膜を使えば40-60keVの分解能達成も可能であり、収率トレーサとして ^{147}Sm が有効であることを見出している。

4.1.1.5 4th International Conference on Nuclear and Radiochemistry

(1996. 9. 8-14 フランス)

第4回核化学と放射化学の国際会議(NRC4)

上記国際会議が1996年9月8～13日の日程でフランスのSaint-Maloで開催された。30か国以上の国々から約300人の科学者が参加した。第1回はLindau(1994)、第2回はBrighton(1988)、第3回はVienna(1992)で4年毎に開催されてきた。

この学会は核化学および放射化学の基礎から応用までの幅広い分野を扱い、特に超重元素の研究、無機化学の進展、地球化学、医学、生物および宇宙化学等の学問分野への核化学・放射化学の役割などに力点をおいている。さらに、核エネルギーの利用と放射性廃棄物の処理・処分問題も重視している。

過去においてと同様に、新しい超重元素の合成が現在も非常に魅力的な学問分野であり、今年112番元素の発見が化学者の興味の対象であった。理論的に予測されている114番元素の発見が現実のものとなりつつある。この間、洗練された高速の化学分離手法がこれら元素の化学的性質を調べるために開発されてきた。この会議では、106番元素を取り扱った多くの発表があったことは特筆すべきである。核化学もまた宇宙化学を研究するための手立てとなる。放射化学は、Irene Joliotが書いているように、放射性元素の化学に関係している。我々は、今や5fシリーズの15元素の物理的、化学的性質を理解し、4fと5f電子の性質を比較するために、理論的・実験的な研究を進めている。アクチニド化学はまた今日、再処理や廃棄物の処理とも関連している。本会議においても多くの発表があった。またこれらの研究は低レベル放射能の検出も含めて放射性核種をトレーサーとして用いる地球化学と関連しており年代測定、深層水の循環、工業的な汚染についての発表も多かった。核医学への応用発表もあったが、全体としてみると生化学へのトレーサーとしての利用やイメージングへの応用が公衆の健康に対する本質的な手段になりつつあるように思われた。

1996年はH. BecquerelそしてPierre and Marie Curieの貢献による放射能発見100周年にあたる。NRC4は特にこの記念に向けられた。この国際会議の内容についてはExtended Abstract (Volume I, II) が出されており、以下のような構成になっている。

Contents

Volume I

- Session - A : Nuclear chemistry and transactinide chemistry
- B : Radioanalysis and use of tracers in chemistry
- C : Actinide chemistry
- D : Non nuclear methods in nuclear and radiochemistry

Volume II

- Session - E : Radionuclides in the environment and geochemistry
- F : Nuclear methods in cosmochemistry
- G : Chemistry of the nuclear fuel cycle
- H : Radionuclides in the life sciences

Session Eの Environmental Radiochemistry では、口頭発表が12、ポスターが63あった。以下にこのセッションの演題と興味のあるものについて概略を紹介する。

—口頭発表—

- (1) "Studies of chemical interactions within the Chernobyl "Sarcophagus" :
Progress and perplexities."
M. S. Khodorivski et al. (Ukraine)
チェルノブイル4号機の事故後の炉内に残留している核燃料の核危険 (nuclear hazard) の問題を扱ったもの。
燃料と水、湿気、大気との化学反応、さらに有機結合やコロイドとなつての移動、燃料溶解のメカニズム、放射線分解の研究必要性を強調。
- (2) "The role of "hot" particles in radionuclides' migration processes in the Chernobyl NPP closed area soils."
V. V. Demchuk et al. (Ukraine)
チェルノブイル事故によって環境に放出された放射性物質には燃料パーティクル (hot particle) に含まれているものとそうでないものがあり、それらのratioがどの

ようになっていくのか、特にhot particleのmigrationおよび溶解プロセスの研究が重要。

- (3) "Modeling of subsurface environment impact of the Chernobyl NPP Unit-4 Shelter."

S.L. Kivva et al. (Ukraine)

破壊されたチェルノブイル4号機のシェルター内に20MCiの核燃料と中間レベルの放射性廃水200m³がある。この中に含まれている⁹⁰Srと¹³⁷Csのmigrationをモデルによって検討した。

- (4) "Solubility and hydrolysis of Tc(IV) oxides in aqueous solution at 25°C, 0.1 MPa."

C. Nguyen - Trung et al. (France)

- (5) "Reactions of ^{99m}Tc - complexes with plant constituents."

P.M. van Vliet et al. (Netherlands)

- (6) "Surface exposure dating by in-situ produced cosmogenic radionuclides ¹⁰Be and ²⁶Al in North Victoria Land, Antarctica."

W. Klas et al. (Germany)

高エネルギー宇宙線によるスパレーション反応によって地表面で¹⁰Be($T_{1/2} = 1.5$ My) と²⁶Al($T_{1/2} = 0.72$ My)がつくられ、年代とともに増加する。南極で採取した石英を用いて¹⁰Beと²⁶Alを化学分離後 AMSで測定。

- (7) "Determination of platinum-group elements (PGES) in soil samples by ICP-MS/NAA."

E. Heinrich et al. (Germany)

土壌中にNiとSを加え、さらにNaCO₃+(Li₂B₄O₇ + Na₂B₄O₇)を加えて溶融(1050°C)し、冷却するとPt, Pb, Ph, Ir, OsなどがNiS塊に濃縮される。これを取り出し、溶解してICP-MSあるいはNAAで測定。

- (8) "The $^{226}\text{Ra}/\text{Ba}$ - ratio as indicator for the contribution of phosphogypsum to the radioactivity of harbour sediment."

P. Bode et al. (Netherlands)

Rotterdam harbourの堆積物が埋め立て用に用いられるが、phosphogypsum (リンを含む石膏)で汚染されている。この寄与を評価するために堆積物の $^{226}\text{Ra}/\text{Ba}$ 比を測定し、良好であることを示した。

- (9) "Sorption measurements for Eu and Th on calcite and a CSH - GBL in the absence and presence of Na - gluconate."

J. Tits et al. (Switzerland)

- (10) "Rare earth elements in soil and plant samples."

A. Wytttenbach et al. (Switzerland)

- (11) "Dry deposition and leaching by sulphur and nitrogen in a forest studied by natural and man - made isotopes."

A. C. Veltkamp et al. (Netherlands)

—ポスターセッション— (63発表があったが、興味あるものを紹介する)

- (1) "Distribution profiles of Pu and Po in the water column around the Strait of Gibraltar."

M. P. Anton et al. (Spain)

地中海と大西洋間の海水の流れ、交換率を予測するためにStrait of Gibraltarで海水コア試料中の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ (11~43 mBq/m³)および $^{238}\text{Pu}/^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 放射能比(0.04)、 ^{210}Po (0.7~1.7mBq/m³)および ^{210}Po (0.4~1.7mBq/m³)を測定した。

研究は継続中。

- (2) "Determination of U, Th, Pu, Am and Cm ultra-tracers by PBRALS system."

J. Aupiais et al. (France)

新しい液体シンチレーションシステム(PBRALS)を用いて上記核種の定量を検討し、

環境試料に適用して良好な結果を得た。

- (3) "Radionuclides in effluents from phosphate processing plants in Huelva (Spain) and their ecological impact."

J.P. Bolivar et al. (Spain)

2つのリン鉱石処理プラントからの様々な廃液中の天然放射性核種を測定し、一般環境中での影響を河川の堆積物の測定を通して評価した。

- (4) "What do radioactive equilibria say about the contamination of fresh water sediments in Bohemia with natural radionuclides?"

P. Benes et al. (Czech Republic)

河川水および表面堆積物の113試料について ^{238}U , ^{234}U , ^{232}Th , ^{226}Ra , ^{228}Ra を測定した。これらの核種間の平衡程度から

- ① ^{226}Ra は汚染されていない堆積物においては ^{238}U とほぼ平衡に存在している。
- ② 汚染されている堆積物は水から吸着した高い ^{226}Ra を含んでおり、 ^{238}U より過剰にある。
- ③ ^{228}Ra で汚染された堆積物は見い出されなかった。
- ④ 分析したほとんどの堆積物で ^{232}Th と平衡量以上の ^{228}Ra を検出した。このことは水中からの ^{228}Ra の吸着を強く示唆する。

- (5) "Studies of ^3H reemission within the scope of ^3H transfer processes in the atmosphere/sail/plant - system."

C. Bunnenberg et al. (Germany)

ZSRでの最近の ^3H 研究はHTやHTOの乾性沈着後土壌からのHTOの再放出(reemission)に集中している。室内や小さな野外実験から再放出を規定しているパラメーターを調べた。その結果HTOは H_2O 蒸発に類似しているにもかかわらずHTOと H_2O はmolecule-specific driving forcesのために別々に挙動することが明らかになった。

この結果は ^3H を環境中の水の動きや水素のトレーサーとして用いることの危険性を示唆する。

- (6) "Determination of the residence times of the medically used radionuclides in sewage systems."

J. Dalmasso et al. (France)

フランス、ニースの下水処理場の汚物で核医学利用の ^{99m}Tc , ^{201}Tl , ^{131}I , ^{67}Ga , さらに ^{111}In を検出。

- (7) "Alpha liquid scintillation spectroscopy used for the measurements of U/Th -disequilibrium in soil samples."

Bernhard Fuegt al. (Switzerland).

カルスト形成における ^{238}U - ^{234}U - ^{230}Th - ^{226}Ra 平衡に関する研究で、液シンチレーションスペクトロメトリーによるこれら核種の定量法を検討。

- (8) "Metal cycles in lakes : a study of flux and speciation of radioisotopes in the epilimnion Lake Lugano, Switzerland."

P. Steinmann et al. (Suisse)

湖水中の金属の動態を研究するために ^7Be , ^{10}Be および ^{210}Pb をトレーサーとして溶存、コロイド、粒子状成分を測定：試水1000 l、連続遠心分離装置とタンジェンシャルフロー限外口過装置を使用。

- (9) "Radionuclides in an underground environment."

J.L. Thompson (USA)

放射性廃棄物の処理・処分研究とも関連して、Nevada Test Siteでのフィールド研究、特に地下水の研究が多くの情報を提供することを指摘。

- (10) "Speciation of radionuclides in soils and surface organic matters sampled around the Chernobyl Nuclear Power Plants."

M. Watanabe et al. (Japan)

チェルノブイル事故で汚染された土壌について逐次抽出法を適用してPu, Am, ^{90}Sr , ^{137}Cs の分配を測定。

- (11) "Speciation of U in natural waters of a U mining area."

G. Geipel et al. (Germany)

Saxony尾鉱に由来する水中のUのキャラクタリゼーション研究、中性で高濃度のCaと炭酸イオンを含む水中での主要なUの化学形は $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ 。時間分解レーザー励起蛍光分光法(TRLFS)とレーザー励起光音響分光法(LIPAS)を使用。

- (12) "Analysis of ^{129}I in the environment."

J. Handl et al. (Germany)

環境試料中の ^{129}I 測定に対してのNAA(neutron activation analysis)とAMS(加速器質量分析)の比較。

- (13) "The ^{241}Am , Cm and rare earths radionuclides in the forest litter samples from Poland."

J.W. Mietelski et al. (Poland)

Polandの森林中のリターと腐食層土壌について主として ^{241}Am (Cm同位体および ^{147}Sm , 154 , ^{156}Eu を含めて)を測定し、その起源(全地球/チェルノブイル)を検討。

- (14) "The radioanalytical determination of cosmogenic ^{32}P in marine samples for the study of the phosphate ion turn over in the Mediterranean Sea."

C. Testa et al. (Italy)

海洋中のPの交換速度を測定するために宇宙線起源 ^{32}P をトレーサーとして使用。植物・動物プランクトン、粒子状物質を採取する方法、さらに大量の海水からPを集める方法、および ^{32}P の分析法を報告。

4.1.1.6 Sixth International Conference on Low-Level Measurements of Actinides
and Long-Lived Radionuclides in Biological and Environmental Samples
(1996.9-13 フランス)

Cogema, La Hague, Cherbourg, France

September 9-13, 1996

第6回生物・環境中のアクチニド・長半減期核種の低レベル測定に関する国際
会議 フランス、シェルブール、ラ・アーグ、コジュマ

1996年9月9-13日

特別講演は2題であり、2題とも生物内でのRIの挙動に関するテーマであるので、ここではごく簡単に留めたい。1つはPuの生体内挙動についてのレビューであり、濃度レベルによってPuの骨表面での挙動が異なるため、現在のICRP60モデルを元にした骨への実効線量は少なくとも1/10になるとしている。これは、高濃度のPuは骨表面へ濃縮されると見て良いが、ALI付近のPuレベルでは長期的に骨実質内へ拡散していくためである。骨では癌化の可能性のある生きた細胞は骨表面に集まっているため、結果として実効線量が下がることになる。もう1つの特別講演は原子炉の炉室内に漂う放射性粒子の代謝を検討し、ALIを推定している。この粒子は ^{60}Co と ^{137}Cs を主成分とし、わずかではあるがアクチニドを含んでいる。

一般演題の中から、質量分析器を用いた高感度測定を行っている研究、新しい抽出クロマトグラフ樹脂などを用いた迅速分離法、環境中での化学形分析法についての研究を中心として以下に紹介する。

—質量分析器を用いた高感度測定—

(1) Biokinetic measurements of, ^{244}Pu and ^{237}Pu in man. B. Talbot & D. Newton

ヒトにおける ^{244}Pu と ^{237}Pu の生体内動態測定

6人の志願者が ^{244}Pu (1ng)と ^{237}Pu (10-50kBq)を単量形のクエン酸溶液として投与された。投与後これまで、血液、便を1年以上に渡って採取してきている。

^{237}Pu の測定は初期の試料(21日までの血液と90日までの排泄物)では井戸型Ge検出器を用いた光子スペクトロメトリーによって行った。その後の試料では、生体内動態と

^{237}Pu の物理崩壊(半減期45日)によって ^{237}Pu からのKX-線(98-118keV)の放出率が弱まり、この同位体に基づいた正確な評価は続けられなかった。 ^{244}Pu は半減期が非常に長いので、それらの試料中でも質量分析器によって摂取後何年でも測定可能のはずである。

現在、我々はそれらの試料中 ^{244}Pu を加速器質量分析器(AMS)と高分解能誘導プラズマ結合型質量分析器(HR-ICPMS)を用いて測定する手法を開発中である。

化学収率トレーサーとして1.5mBqの ^{242}Pu を添加した後に標準のイオン交換法でPuフラクションを精製する。

今回の対象者からの試料中Puについて信頼性の高い推定を行うため、検出限界としては、2mlの最終溶液中について約1fg/mlの ^{244}Pu を目標に作業中である。この要旨を書いている時点では開発は進行中である。

今のところ、通常のネブライザーを使ったHR-ICPMS(Plasmatrace 2)では2mlの水溶液について3fg/mlのLODを日常的に得ている。近いうちにマイクロネブライザーを使い、この試料量で感度を20倍にする試験を行う。

この発表では人体実験からの血液と排泄物試料についての2つの手法を用いて得られた結果を論じたい。また、検出限界を明らかにし、志願者によるPuの長期排泄を測定するための最適な方法がどちらであるかという結論を引き出したい。

(2) Perspectives of uranium and plutonium analyses in urine samples by secondary ion mass spectrometry. A. Amaral et al.

2次イオン質量分析法による尿試料中ウラン、プルトニウム分析の展望

2次イオン質量分析法(SIMS)により迅速に安定元素や放射性元素の分析が可能である。この手法はすでによく確立されており、イオン照射によって試料をスペッターするが、組織切片のイメージングのためにイオン顕微鏡と組み合わせられることが主な利点である。しかしながら、純粋に質量分析器としても同位体比の正確な定量が可能であり、有効な分析法である。SIMSによる分析を、内部被ばくのリスクに曝された作業者の医学モニタリングとしての長半減期 α 核種や β 核種の測定のような放射線防護分野に応用することは興味深いと思われる。

この研究ではバイオアッセイでのトレース量の放射性元素の分析にSIMSを用いることの可能性を検討することを目的とした。ここでは薄膜上に調製した尿試料を用い、 α 線スペ

クトロスコピイとSIMSによる分析を比較した。UとPuの試料はポリピロール薄膜をマトリックスとして調製した。この新方法は十分なアブレーション比があり、信号の安定性が改善された。

SIMSの性能は標本膜の組成と厚みのような特性で決定されると言うて良い。尿試料中のトレース量の放射性元素の定量を評価するためのテストを行った。分析法としてのSIMSの展望を α スペクトロメトリーと比較しながら論じる。

(3) Feasibility of ICP-MS for the assessment of uranium excretion in urine. E. Werner et al.

ICP-MSによる尿中U排泄アセスメントの妥当性

多くの長寿命 α 放射性核種が放射線防護と関連している。これらの中で、天然Uは職業上被ばくする作業員ばかりではなく一部の一般人についても興味深いところである。現行の摂取モニタリングは α スペクトロメトリーによる尿または便の分析であり、非常に面倒で時間がかかる。対照的にICP-MSは生物学的な液体試料中のごく低濃度のUの迅速定量法となる。そのため、この研究では尿中U排泄アセスメントへのICP-MSの適用妥当性とその感度を研究した。尿中U含量の変動を非曝露グループで検討し、また、ICP-MSと α スペクトロメトリーによる測定と比較を5人の職業被ばく者で行った。

非曝露被験者として18名について検討した（7人の男性、30-57歳、平均年齢 46 ± 11 歳および11人の女性、17-84歳、平均年齢 42 ± 23 歳）。未処理の24時間尿をAS-90試料交換装置のついたELAN 5000(Perkin Elmer Sciex)で測定した。システムの検出限界は $12 \mu\text{Bq/L}$ (3σ 値)である。

18名の平均U排泄量は $141 \pm 77 \mu\text{Bq/L}$ であり、 $170 \pm 97 \mu\text{Bq/d}$ に相当する。これらの値はICRP23に与えられているデータよりは幾分低いものであった。

これに加えて5名の職業被ばく者について尿中U濃度をICP-MSと α スペクトロメトリーで測定した。個々の試料についての2つの方法による結果は良く一致した。

結論として、ICP-MSは尿中のU濃度やU排泄量の定量的測定法として迅速で好感度な方法であると言える。このため、ICP-MSは一般人の大きなグループや職業被ばく者のU体内量のモニタリング法として魅力的な方法であると考えられる。

(4) Variation of natural ^{232}Th excretion in non-exposed persons. P. Roth et al.

非曝露者の天然 ^{232}Th 排泄の変動

物理的性質と摂取後の代謝挙動から見て、 ^{232}Th はもっとも放射性毒性の高い放射性核種の1つであると考えられる。このことは、吸入についての年摂取限度(ALI)が非常に低いことにも反映されている。吸入はThの職業被ばくの場合にもっともあり得る摂取経路である。しかしながら、 ^{232}Th の測定結果を解釈する場合には、自然の摂取源に起因する ^{232}Th の取り込みと排泄への知識が必要とされる。にもかかわらず、非職業被ばく者についての天然Thのデータは非常に限られている。そこで、この研究ではICP-MSを非曝露者の尿中 ^{232}Th の評価に用いた。

Thへの職業曝露履歴がない23名の健康人(30-57歳の12人の男性、17-84歳の11人の女性)を研究対象とした。24時間尿を採取し、硝酸で酸性とした後に、AS-90試料交換装置のついたICP-MS、ELAN 5000 (Perkin Elmer Sciex) で分析を行った。システムの検出限界は1nBq/L(3 σ 値)である。23名の平均 ^{232}Th 尿中排泄量は $6.2 \pm 3.3\text{ng/d}$ であった(男性、 $7.1 \pm 3.9\text{ng/d}$ (1.0-13.5ng/dの範囲);女性、 $5.2 \pm 2.2\text{ng/d}$ (2.1-10.2ng/dの範囲))。性差は統計学的に有意でなく、年齢への明らかな依存性も認められなかった。これらの値は α スペクトロメトリーで求められた非曝露者について報告されている平均値、7.0ng/dと良く一致した。1人の被験者について6日間に渡り繰り返して測定した。排泄量は5.0ng/dから12.7ng/dまで変動し、平均値は8.6ng/dであった。この日変動も予測範囲内である。

尿中のTh濃度やTh排泄量の定量法としてICP-MSは迅速で十分な感度を持つ方法であると結論できる。この方法は非常に感度が高く、結果が素早く出せ、試料処理も不要であり、固有の問題や限界を持つ α スペクトロメトリーや放射化分析に代わる方法を提供している。

—迅速分離法—

(5) Development and application of a rapid method for determination of ^{90}Sr in environmental samples. I. Friberg

環境試料中 ^{90}Sr 迅速定量法の開発と適用

^{90}Sr の迅速定量法を開発し、チェルノブイリ事故後に採取した環境試料中の ^{90}Sr 分布評価に用いた。この方法は灰化、溶出、溶媒抽出(HDBHP)による娘核種の ^{90}Y の分離、有機層の ^{90}Y のチェレンコフ計測によって行われる。

分析の単純化とスピードアップのため、溶出過程を検討した。異なる溶出条件下でのフ

オールアウト⁹⁰Sr/⁹⁰Yの化学収率を完全な溶解の場合と比較した。短時間溶出であること、酸濃度が低く、かつ、試料が少量であることが時間のかかる蒸発操作を避ける意味で望ましい。Sr、Yに加えて¹³⁷Csの溶出も検討した。

この種の分析でトレーサーを用いることの妥当性と必要性も論じる。

チェレンコフ計測が本来持っているエネルギー弁別により高エネルギーβ放射体である⁹⁰Yの放射化学分離は簡単になる。しかしながら、新しいオールアウトの場合には2度目の抽出が必要となるだろう。適切な硝酸濃度と容量比を選択すれば妨害をかなり減少できる。

⁹⁰Y試料の計測は0.3時間行い、データ点に最小二乗法をかけて⁹⁰Yの初期値とバックグラウンド計数値および誤差を求めた。⁹⁰Y計数値の相対誤差の期待値を予測する方法を提示する。試料数が与えられ、バックグラウンドと初期放射能が推定できれば、指定された誤差に達するまでに必要な全計数時間を予測するのに使うことができる。検出限界の実際的な使用についても論じる。

(6) Time-resolved-laser-induced-fluorescence (TRLIF) applied to low level uranium measurements in biological samples. Comparison with extraction chromatography method. D. Cavadore et al.

生物試料中の低レベルUに応用した時間分解型レーザー励起蛍光法 (TRLIF)、抽出クロマトグラフィとの比較

尿や他の生物試料中のUについての迅速直接定量は代謝の不確実性(結合しているUと排泄されるUの化学形が不明)や分析上の妨害(天然有機蛍光クエンチング)に悩まされている。

これらの問題点にはルーチンの被ばくサーベイプログラムの目的上からは検出限界が高すぎることもある。

生物試料中UのTRLIF分析の目標は以下の通りである、

U摂取後の化学毒性を推定する迅速法

ルーチンと緊急時に使える手法

精度と確度が10%以下

実際的な、使える方法であること。

励起光源として、三重としたNd-YAGレーザーを355nmで用い、5.7ns、28mJのパルスで50

Hzで蛍光スペクトロメトリーと連動させた。ウラニルからの200nmの蛍光をホログラフィック回折格子を通し、ペルチェ効果で冷却した(-30°C)フォトダイオードアレイで解析した。標準的な機器を変更したこととその有効性を発表したい。

緊急時の測定では活性炭によって天然蛍光物質を除き、特異的錯化剤(FLURAN)によって錯体としたウラニルを形成し、TRLIFによって測定した。

生物試料を灰化し、アルカリ土類金属のリン酸塩かリン酸鉄で共沈後、FLURANで錯化したU溶液を希釈し(1/100-1/10000)、TRLIFによるルーチンの測定を行った。精度と確度について検討した結果を発表する。

数百例の結果を示し、抽出クロマトグラフィと α スペクトロスコピイの組み合わせと比較したい。長所短所は費用便益を解析しながら検討する。検出限界(0.1 μ g/L)と精度・確度(<5%)からはこの方法がルーチンと緊急時のモニタリングに適用できると思われる。

(7) Pre-concentration of actinide elements from soils and large volume water samples using extraction chromatography. A. Thakkar et al.

抽出クロマトグラフィを用いた土壌・大容量水試料からのアクチニド元素の予備濃縮
土壌試料の放射化学分析前の減容は遷移金属を含む大量のマトリックスを除く必要があるため伝統的に面倒で困難であった。環境水も時として多量の固体が溶けており、それに続く化学分離を困難にしている。また、一方では、多くの国の環境モニタリングで、比較的少量の試料(1-2gの土壌や1-2Lの水)を用いて、非常に低い検出限界を要求されている。

最近、二リン酸化学を基礎にした新イオン交換樹脂がアルゴンヌ国立研究所(ANL)で開発された。この樹脂はBichromのDiphonixイオン交換樹脂(そこから誘導された抽出クロマトグラフ樹脂も)として商業化されており、高濃度の塩の存在下でもアクチニド元素に対して非常に強い親和性を示す。Diphonixは既に様々な工業プロセスに応用されている。

ANLとフロリダ州立大学での予備的なデータによると、商業的にはアクチニド樹脂として知られる抽出クロマトグラフィ版のDiphonixが、大量の水試料からのアクチニド元素の濃縮や土壌、便といった面倒なマトリックスの試料調製に適していると思われた。我々はこの樹脂をこれらのマトリックスに適用することを研究しており、この開発と有効性の現況を述べる。

(8) Determination of uranium in environmental samples using extraction chromatography. T. Gingell.

抽出クロマトグラフィを用いた環境試料中ウランの定量

多くの伝統的な環境試料中のアクチニドの定量法では興味のある放射性元素を大量の試料マトリックスから分離するための数回の溶媒抽出やイオン交換を行っている。これらの方法は一般的に労働集約的であり、危険な物質を使い、かなりの量の毒性の廃棄物ができてしまう。

イオン交換樹脂の手軽さと溶媒抽出の特異性を兼ね備えた抽出クロマトグラフ樹脂が開発されてきている。特定の放射性元素や元素群を溶液から選択的に吸着する抽出クロマトグラフ樹脂も開発されている。これらの樹脂は高価な溶媒抽出器が必要とされず、扱いも一般に安全であることから注目を集めている。

商業的に作られていて入手可能なこのような樹脂の1つであるU/TEVA. Specは硝酸酸性溶液からThやPuのような4価アクチニドを選択的に吸着する。ここでは、種々の環境試料中のU定量へU/TEVA. Specを適用した結果を発表する。

(9) Rapid and efficient separation of strontium from milk samples by a cation exchange resin treated with a cryptand. D. Tait et al.

Cryptand処理した陽イオン交換樹脂による牛乳試料からのストロンチウムの迅速で効果的な分離

牛乳中に含まれる放射線医学的に重要な ^{90}Sr ($t_{1/2}=28.5$ 年)の分析は時間がかかり、もっと迅速で効率の良い方法が必要とされている。このため、我々はSrに対して大きな容量と選択性を持つ固相抽出システムの開発を試みている。このシステムは巨大二重環状のcryptand222を使っているが、これはSrと強力に結合し、バリウム、水銀、鉛以外の他の陽イオンからの選択性も強い。このcryptand222は水溶性アセトニトリル溶液から強酸性陽イオン交換樹脂Dowex 50x8へ簡単に吸着する。この処理により、Dowex樹脂の牛乳中のSrに対する親和性は5倍増加する。 ^{85}Sr をトレーサーとした牛乳の実験では、100mlの牛乳に対して、 $265\mu\text{mol}$ のcryptand222で処理した2ml-wetのDowex 50x8を加え、5時間攪拌したところ、98%のSrを分離できた。Sr吸着の最適pHは5.2であった。樹脂を 1mol dm^{-3} のNaCl水溶液で洗浄し、Csを除いた。SrとBaは 90°C で 2mol dm^{-3} の塩酸か 6mol dm^{-3} の硝酸で効果的に溶離された(樹脂湿容量の約12ml)。酸溶出液を蒸発乾固し、残渣を液体シンチレ

ーションカクテルに分散させた。妨害する放射性Baが無ければ ^{90}Sr は低レベル液体シンチレーションスペクトロメトリーによって容易に計数できる。これにより、 ^{90}Sr と ^{89}Sr ($t_{1/2}=50.5$ 日)の同時測定が可能であり、 ^{90}Sr については娘核種の ^{90}Y ($t_{1/2}=64.4$ 時間)との平衡に無関係にできる。この方法による ^{90}Sr の検出限界は約14mBqである。

これらの条件ではSrとBaの分離は行っていない。しかしながら、核分裂では短寿命の ^{140}Ba ($t_{1/2}=12.75$ 日)が大量に生成するので、新しいフォールアウトの場合、牛乳はこの核種に汚染される。したがって、この場合には ^{140}Ba を上記の酸溶出液から分離しなければならない。そのための処理は時間がかかるので、我々はDowex/cryptand222樹脂からSrだけを選択的に溶離する方法を検討している。

—環境中での化学形—

(10) Investigation of the solid phase speciation of ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{239}Pu and ^{241}Am in soils determined by extraction and ultrafiltration methods. G. Szabo et al.
土壌中の ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{239}Pu および ^{241}Am についての抽出と限外ろ過による固相での分化の研究

土壌中での放射性核種の挙動は、土壌構成物と土壌溶液との相互作用の結果としての基本的な化学形に影響される。化学的反応性、移動度、生物への有効性は化学形や土壌粒子・コロイドへの結合によって決まるため、これらの因子は重要である。土壌システム内での放射性核種の分化についての情報を得るため、また、植物による取り込みを予測するために適切に選択された分別方法を使うことができる。

放射性核種の作物への移行を研究するための長期間にわたるライシメーターを用いた実験の一部として、ローム、ピート、砂質土壌を人工的に ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{239}Pu および ^{241}Am で汚染させた。この土壌を用いて、放射性核種の分化を見るため、平行抽出法を用いた。主な土壌構成物への放射性核種の分布を決めるために5種類の抽出試薬を用いた。腐植物質と放射性核種の結合体をin situのシリル化法で分離し、AmiconのCENTRIPLUSによって限外ろ過を行った。

^{239}Pu と ^{241}Am はin situシリル化によりジメチルホルムアミド中へ容易に抽出できた。この抽出法は腐植物質や金属腐植錯体を土壌から抽出するために開発された方法である。これらの元素が簡単に抽出可能であることはPuやAmが土壌中の腐植物質と結合していることを示す。これに比べて酢酸アンモニウムや蔞酸アンモニウム、NaOHによる抽出率は低

い。 ^{137}Cs の場合は、どんな抽出法でも簡単には出てこない。ここから、Csは土壤の粘土鉱物に強固に結合していると結論できる。 ^{90}Sr は酢酸アンモニウム、蔞酸アンモニウム、シリル化によって容易に抽出できるが、土壤有機物に対する通常の抽出剤であるNaOHでの抽出率はやや低い。

土壤から抽出した腐植物質の分子量別に放射性核種の結合状態を見るには限外ろ過が良い方法である。ピート土壤中のSr, Pu, Amは主に高分子量(>100kD)の腐植物と結合していた。これと対照的に、砂質土壤ではこれらの核種の大部分は低分子量の腐植フラクション(3-10 kD)と結びついていた。ローム土壤ではPuとAmの60-65%が高分子量の腐植物質と結合し、Srはほぼ同じ量がいくつかの異なる分子量画分に散らばっていた。

まとめると、PuとAmはほぼ100%が腐植物質と結合しており、土壤中の高分子量腐植物質と結びついている。放射性Srの抽出と限外ろ過のパターンからは、Srが土壤中のいくつかのシンクに存在し、それには、容易に動く単純な陽イオンから土壤溶液中の低分子量腐植物質との錯体のままである。放射性Csの抽出データからはCsは土壤の無機相に結合していると見られ、この無機相は土壤粘土鉱物であろう。腐植物質はCsの固相分化については何の役割も果たしていない。

—その他—

(11) Pitfalls at the measurement of tritium distribution in different components of biological samples. M. A. Kim & F. Baumgartner

トリチウムの生物試料における成分間分布を測定する際の問題点。

自由水と他の生物に結合した形のトリチウムは相互に関連し、動的平衡状態にあるが、これらの間の分離ファクターは成分間の移行反応の同位体効果によって起き、それぞれの成分間の比放射能比によって表される。

この研究は以下のようなトリチウム結合形の同定、分離、比放射能測定の際にぶつかる問題点を扱ったものである。即ち、(1)気体、液体、固体状態の自由水、(2)巨大分子表面への水素結合で結ばれた水、(3)O、S、N原子へ結合したH、(4)C原子へ結合したHである。移行過程としては蒸発、物理・化学的吸着、合成による化学結合とそれぞれの逆反応である。

in vivoでの平衡(T/H)比を保つための方法を代表的な例で示した。それらは次のような過程を含む、即ち、まず最初に、成分の選択的分離と重複程度の決定。2番目は必ずそこ

に存在する同位体効果の最小化、つまり、自由水の蒸発あるいは空气中湿分との同位体交換のような他の効果、また、残留効果の定量化である。3番目は、考慮している生物中各成分が試料採取時に平衡を達成していることの確認である。

(12) Isotopically pure ^{236}Pu , ^{237}Pu , ^{235}Np as tracers for environmental and biomedical research. S. N. Dmitriev et al.

環境、生物医学研究用トレーサーとしての同位体的に純粋な ^{236}Pu , ^{237}Pu , ^{235}Np
 ^{236}Pu , ^{237}Pu , ^{235}Np は環境や生物学的試料中の微量Pu, Npの定量の際に非常に便利なトレーサーである。このレポートでは高純度の ^{236}Pu , ^{237}Pu , ^{235}Np を調整する際の問題点を述べたい。また、 ^{237}Pu はin vivoでの代謝実験に使用するための医学的要求に見合う唯一のPu同位体でもある。

^{237}Pu は $^{235}\text{U}(^4\text{He}, 2n)$ 反応で得られる。有効厚さ 20 mg/cm^2 の濃縮U(99.993%)ターゲットにFLNRのU200シンクロトロンの内側チャンネルで27MeVの ^4He を照射した。平均イオンビームカレントは $2.5\text{ }\mu\text{A}$ 、 ^4He のトータルチャージは $9.5 \times 10^3\text{ }\mu\text{A}\cdot\text{hr}$ であった。 ^{237}Pu の収率は $2.5\text{ kBq}/\mu\text{A}\cdot\text{hr}$ であった。照射ターゲットからのPuの単離はフッ化La法と陰イオン交換クロマトグラフによって行った。 ^{236}Pu , ^{237}Pu , ^{238}Pu の放射能比(Bq/Bq)は $1 \times 10^{-3}/1/8 \times 10^{-4}$ であった。 ^{237}Pu の追加濃縮は電磁マスセパレーターYASNAPPによって行われた。要求される純度に応じて最初の ^{237}Pu を1段あるいは2段の質量分離に掛けた。1段分離後の ^{237}Pu の収率は30%であった。2段分離によって得られた ^{237}Pu の純度はこれまで報告された中でもっとも高いものである($^{236}\text{Pu} : ^{237}\text{Pu} : ^{238}\text{Pu} = \leq 3 \times 10^{-8} : 1 : \leq 3 \times 10^{-8}$ (Bq/Bq))。

^{236}Pu は $^{235}\text{U}(^4\text{He}, 3n)$ と $^{235}\text{U}(d, n)$ 反応で得られた。最初の反応では製造のスキームは ^{237}Pu の場合と似ている。しかし、 ^4He イオンのエネルギーは36MeVである。 ^{236}Pu の収率は $35\text{ kBq}/\mu\text{A}\cdot\text{hr}$ であった。最初の ^{236}Pu の純度は $10^{-2}\text{ Bq/Bq}(^{239}\text{Pu})$ であり、1段の質量分離後には $10^{-5}\text{ Bq/Bq}(^{238}\text{Pu})$ 以下であった。 ^{235}U を18MeVの重水素で照射した場合、 ^{236}Pu の収率はわずか $7\text{ Bq}/\mu\text{A}\cdot\text{hr}$ であったが、純度は $8 \times 10^{-4}\text{ Bq/Bq}$ であり、同時に ^{235}Np も生じた。

得られた ^{237}Pu はHarwellで静脈注射後のPuの血液からのクリアランス、排泄、肝臓への蓄積を調べるために、現在、使われている。 ^{236}Pu と ^{235}Np は(n, f)や(γ , f)反応により ^{239}Pu や ^{237}Np を定量するためのトレーサーとして使われた。

(13) Transfer of radionuclides to fruit. N. Green et al.

放射性元素の果実への移行

土壌-作物移行係数は事故や通常時に環境へ放出された放射性元素の放射線医学的インパクトのアセスメントにとって重要である。果実は重要度を増している食品であるが、土壌作物移行係数のデータは少ない。このため、いくつかのアセスメントモデルでは果実への移行を予測するために他の作物での移行係数を使用している。この発表では、そのようなモデルで使うことのできるパラメーターを与えることを目的としている。

イングランドの北西海岸にある海からの埋め立て地が野菜や穀物での放射性元素移行の大規模な研究に利用されてきた。最近になって、種々の果樹が栽培され、土壌作物移行係数が求められている。関心の持たれている放射性元素は ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{239}Pu 、 ^{241}Am である。しかしながら、このサイトの放射性元素は本質的に海洋起源であり、他の状況への外挿は正当とは言えない。このため、かけ離れた3種類の土壌を人工的に汚染させ、これを用いたライシメーターで作物を育てた。2組のデータを組み合わせることにより、広い範囲に適用できる土壌植物移行係数を与えることが可能である。その結果をNRPBのダイナミック食物連鎖モデルFARMLANDで現在仮定されている値と比較する。

以上のように長半減期アクチニドの低レベル定量法として、質量分析器を用いる手法が広がっている。特に、ICP-MSにより極低レベルの測定が行われてきており、人体代謝実験などに使われ始めている。環境試料への応用も広がってきている。これとは別に90年代に入ってアクチニドやアルカリ土類金属に対して優れた選択性を持つ抽出クロマトグラフ樹脂が商用化され、環境試料の分析に使われつつある。従来のイオン交換樹脂法や溶媒抽出法に比較して選択性が高いため、幅広い試料への適用が可能である。また、環境中での放射性核種の化学形を探ることは従来から行われてきたが、最近、現場でのシリル化反応によって腐植物質を可溶性とし、限外ろ過によって分子量の分布を探る試みが行われ、興味深い結果を提供している。一方、環境での移動をモデルでシミュレートするため、各種パラメーターの整備が必要であり、この一環として、従来、実測パラメーターが少なかった果樹についての実験が行われていた。このような、パラメーターは地域依存性があるため、日本においても同様の整備が望まれる。

4.1.1.7 International Symposium on Nuclear Energy and the Environment ('96 NBE)
(1996.10.14-18 中国)

核エネルギーと環境に関する国際シンポジウム

開催地：北京（中国）

開催日時：1996年10月14-18日

主催：中国放射線防護学会、中国原子力学会、中国環境科学会

本国際会議では招待講演とその他の11のセッションからなっており、セッション名（講演数）は次の通りであった。

1. 招待講演（7）
2. 原子力発電と環境保護政策（8）
3. 情報公開と社会的理解（5）
4. 放射線の環境基準と有害性の評価（27）
5. 原子力とその他のエネルギーが環境及び健康に及ぼす影響の比較（4）
6. 環境放射線の生物影響（6）
7. 原子力とその他のエネルギーの気候変動への影響の比較（5）
8. 放射線モニタリング技術（11）
9. 環境放射線モニタリング（26）
10. 放射性廃棄物管理（12）
11. 原発事故の環境影響（15）
12. 緊急対策（7）

シンポジウムは原子力に関する広い範囲をカバーするものであったが、長半減期放射性核種の挙動・分布及び分析法に関する講演は、上記のセッションの、放射線の環境基準と有害性の評価及び環境放射線モニタリングに見られた。以下に長半減期核種に関連した講演題目と講演者を記すことにする。

－放射線の環境基準と有害性の評価－

- (1) "The Environmental Risk of Radioactive Materials in Gaseous Effluents from

Nuclear Power Stations Under Normal Operation Conditions”

Wang Ying, Zhang Shaodong; Institute of Chemical Protection, Beijing (China)

原子力発電所からの希ガスの環境影響評価のためのコンピュータープログラム開発。

- (2) “Comparison of Tritium Production, Release, and Radiation Dose for Korean PWR and PHWR”

Song Myung Jae, Kwak Sung Woo, Park Jong Kil; Electric Power Research Institute, Daejon (Korea)

韓国の原子力発電所から環境放出されたトリチウム量の評価を行っている。

- (3) “Tritium Concentration as Indicator of Environmental Character around Nuclear Power Plants in Korea”

Sang Bog Kim, Kwang Hee Hong, Myung Ho Lee, Ho Choi, Chang Woo Lee; Korea Atomic Energy Research Institute (Korea)

韓国の原子力発電所周辺のトリチウム濃度のモニタリング結果を報告している。

- (4) “Migrational Ability of Plutonium and Americium Radionuclides in Typical Soils of Belarus”

G. A. Sokolik, E. P. Petryaev, S. L. Kolchitskaya, T. G. Lvanova, N. V. Zhukovitch; Belorussian State University, Minsk (Belarus)

チェルノブイル原発周辺土壌のPuとAmの分布を報告している。

- (5) “Basic Pathways of Caesium-137 and Strontium-90 Radionuclides Uptake by Plant Root Systems”

A. I. Sokolik, G. G. Demko; Belorussian State University, Minsk (Belarus)

放射性核種の植物への取り込みを生理学的立場から説明している。

- (6) “Entrance of Radionuclides into the Soil Solutions is Important Factor of their Migratory Ability”

G. A. Sokolik, E. P. Petryaev, S. V. Ovsiannikova, E. A. Bismont, A. V.

Kudelskly, A. A. Petrovich; Belorussian State University, Minsk (Belarus)

チェルノブイル原発周辺土壌での ^{137}Cs の分布を土壌固相と溶液の関係から考察している。

- (7) "Consequences of Chernobyl Caesium-137 and Strontium-90 Migration in the Topsoil of Belarus"

E. P. Petryaev, G. Arapis, G. A. Sokolik, T. G. Ivanova, S. Ya. Rubinchik;
Belorussian State University, Minsk (Belarus)

チェルノブイル原発周辺で ^{137}Cs と ^{90}Sr の土壌から植物への移行を論じている。

- (8) "Long-term Consequences of Nuclear Accidents: Factors Influencing Soil-to-Plant Transfer"

G. Kirchner, S. Ehlken; University of Bremen, Bremen (Germany)

原発事故に伴う放射能の土壌、植物、家畜、ミルクへの移行をモデル計算し、線量評価に影響を与える因子を検討している。

- (9) "Behavior of Tritium Gas Released Continuously to the Atmosphere"

S. Yokoyama, H. Noguchi, S. Fukutani, N. Kinouchi, M. Murata, H. Amano, M. Atarashi; Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura (Japan)

カナダで行ったトリチウムガスの放出実験結果の報告を行っている。

- (10) "The Results of Tritium Monitoring in the Dnieper Basin (1992-1994) "

D. I. Gudkov, M. I. Kuzmenko; Institute of Hydrobiology, Kiev (Ukraine)

ウクライナの主要水源となっているDnieper川のトリチウム濃度を報告している。

- (11) "Changes in Liquid Radioactive Waste Discharges from Sellafield to the Irish Sea: Monitoring of the Environmental Consequences and Radiological Implications"

G. J. Hunt; Fisheries Laboratory, Lowestoft (United Kingdom)

シェラフィールド周辺で採取したwinkelsのいくつかの長半減期放射性核種濃度を

測定している。

- (12) "The Radiological Impacts of Processing Recycled Uranium at BNFL Fuel Division's Springfields Site"

J. R. Nobbs, R. M. Wilson; BNFL, Springfield (UK)

核燃料加工過程でのウランの環境放出の可能性について論じている。

- (13) "Artificial Radioactivity in Tagus River and Radiological Consequences to Population"

M. C. Vaz Carreiro, M. M. A. Sequeira; DGA/DPSR, Sacavem (Portugal)

スペインの原子力発電所からの排水が流れ込んでいるポルトガルのTejo川周辺の環境モニタリング結果を報告している。

- (14) "Behavior of Chernobyl Origin ^{137}Cs and ^{90}Sr in Soil-Water Environment"

A. V. Konoplev; Institute of Experimental Meteorology, Obninsk (Russia)

土壌中の放射性核種が溶液、交換サイト、固定サイトにあるとしてその挙動を論じている。

- (15) "The Studies of Mechanisms of ^{137}Cs , ^{90}Sr and $^{238}, ^{239}, ^{240}\text{Pu}$ Migration through Ecological Chains as Pertinent to Radionuclides' States and Forms"

I. I. Karachev, N. V. Tkachenko, L. I. Nagovitsina, V. O. Voloshchenko, I. V. Kakura, V. D. Sorokobatkina; Ministry of Health, Kiev (Ukraine)

チェルノブイル事故由来の ^{137}Cs と ^{90}Sr の環境中での長期的な挙動について論じている。

—環境放射線モニタリング—

- (1) "Monitoring Results and Its Preliminary Study in the Ambient Environment around Qinshan NPP"

Zhang Rongsuo, Yang Bin, Liu Hongshi, Zhao Minghua; Zhejiang Province Environmental Radiation Monitoring Center, Hangzhou (China)

Qinshan 原子力発電所の3年間のモニタリング結果を報告している。

- (2) "Determination of ^3H , ^{14}C , ^{36}Cl , ^{63}Ni and ^{55}Fe Activities in Reactor Decommissioning Wastes Using Liquid Scintillation Counting"

Yang Huaiyuan, Wang Zhihui, Liu Wei, Wen Xuelan, Zheng Hong; China Institute for Radiation Protection, Yaiyuan (China)

核燃料棒中の ^3H , ^{14}C , ^{36}Cl , ^{63}Ni , ^{55}Fe の分析法を論じている。

- (3) "Sampling and Determination of Carbon-14 in Air"

Yang Huaiyuan, Liu Wei, Wen Xuelian; China Institute for Radiation Protection, Yaiyuan (China)

大気中の ^{14}C 測定法について論じている。

- (4) "Carbon-14 Activities in the Environmental Samples in Japan"

H. Kawamura, N. Matsuoka, Y. Takashima, N. Momoshima; Kyushu Environmental Evaluation Association, Fukuoka (Japan)

一般環境大気中の ^{14}C 測定結果を報告している。

- (5) "Distribution of ^{239}Pu , ^{238}Pu and ^{241}Pu in Soils and Mosses of Korea"

Myung Ho Lee, Yong Ho Choi, Sang Bog Kim, Geun Sik Choi, Chang Woo Lee; Korea, Atomic Energy Research Institute, Taejeon (Korea)

韓国的一般環境土壌中のプルトニウム濃度について報告している。

4.1.1.8 Report of an Expert Consultation on ^{85}Kr and ^{222}Rn : measurements, effects and applications (1995.3.28-31)

世界気象機関 (WMO) 全球大気監視計画 (GAW) における ^{85}Kr と ^{222}Rn の観測について

Report of an Expert Consultation on ^{85}Kr and ^{222}Rn : measurements, effects and applications (Freiburg, Germany, 28-31 March 1995), Executive summary部分の翻訳を以下に述べる。

—業務要約—

世界気象機関 (WMO) が取りまとめた全球大気監視計画 (GAW) の全体目標は、大気全体の挙動ならびにその海洋、生物相との相互作用についてのわれわれの理解を一層深める目的で、大気中の化学成分および関連する物理的な性質に関するデータおよびその他の情報 (例えば、トレンド) を提供することである。GAWのモニタリングステーションで収集されるデータは、変化しつつある大気成分と全球および地域的な気候変動との相互関係、潜在的に有害と想定される物質の大気中での長距離輸送と陸上、湖水、海洋生態系への有害物質の沈着および元素の全球大気/海洋/生物系における自然の循環、そしてそれぞれの系への人間活動の影響を理解するために、必要不可欠である。

GAWのプログラムに ^{85}Kr と ^{222}Rn のモニタリングを含める理由は、 ^{85}Kr からの放射線が将来、大気中のなんらかの物理および化学過程に影響を及ぼし、そのために気候の変動が生ずることがないとは言えないという仮定に基づいている。さらにまた、 ^{85}Kr と ^{222}Rn の両核種とも、大気の輸送と混合過程を知るのに適したトレーサーと成り得ることや、したがって、GAWのモニタリングステーションでの他の観測項目についての結果を解釈する際に有用であると言える。

本報告は、1995年3月28日から31日にドイツフライブルグ市で開催されたGAWの ^{85}Kr と ^{222}Rn に関する専門家会議の結果をまとめたものである。

さまざまな科学的、技術的および運用上の側面についての集中的な議論の結果として、専門家会議は以下の結論と勧告に達した：

- (1) 大気中の ^{85}Kr 濃度は、過去20年間にわたって倍増したにもかかわらず、現時点では、大気中の ^{85}Kr の存在によるイオン生成率の著しい変化や、他の気候関連過程への影響は認められない。しかしながら、大気中の ^{85}Kr の蓄積傾向の把握のために、観測を少なくとも全球で2地点（北半球、南半球各1地点）において継続する必要がある。
- (2) ^{85}Kr と ^{222}Rn の両核種ともに、大気の輸送、混合、温室効果気体およびその他の微量物質のフラックスの研究ならびにモデル化について、良いトレーサーである。
- (3) 大気の輸送および混合の諸過程をよりよく理解するために、全球のすべてのWMOのGAWモニタリングステーションにおいて、 ^{85}Kr と ^{222}Rn の試料採取および測定が実施されるべきである。必要な時間分解能は、 ^{85}Kr については1週間、 ^{222}Rn については、1時間である。これらのトレーサーの種々の応用に必要な精度および確度は、第6章で述べられる。
- (4) ^{85}Kr と ^{222}Rn より得られる情報に対して、付加的なあるいは同様な情報を与え得る補助トレーサーとして、 SF_6 と ^{220}Rn がある。これらについてもGAWモニタリングステーションでの観測項目リストに含めるよう考慮されるべきである。
- (5) いくつかの3-D大気輸送モデル（現存するほとんどについて、が望ましいが）によって、全球スケールでの ^{85}Kr と ^{222}Rn 分布のシュミレーション研究が実施されるべきである。このような研究の結果より、全球ネットワークに最適なモニタリングステーションの位置と数が確定されるべきである。
- (6) すべての ^{85}Kr の放出源（主として核燃料再処理工場）からの月間放出率データが、歴史的な ^{85}Kr 放出データとならんで利用可能とされるべきである。
- (7) ^{85}Kr と ^{222}Rn 観測に参加する研究機関では、品質保証プログラムが必須である（詳細は6章を参照）。
- (8) ^{222}Rn 鉛直分布の地域スケールでの定期的な観測研究は支援されるべきである。

4.1.2 国内学会

4.1.2.1 日本保健物理学会 第31回研究発表会 (1996.5.31-6.1 北海道)

(1) 飲食物 (日本酒) 中のトリチウム濃度 (II)

大阪薬大: 木村捷二郎、岩本晶子、辻岡和雄、南 彰代

'94年に醸造販売された日本酒の内、特に、純米酒に限定して都道府県別に購入した。ただ、宮崎、鹿児島および沖縄県産の試料については焼酎とした。'90から'92にかけて日本酒の水分の ^3H の平均濃度は、1.49から0.96Bq/Lに減少したが、'92と'94年度産試料ではほぼ同じ値となった。一方、アルコール分の ^3H の平均濃度は'92、'94年度産では1.60および2.01Bq/Lであり、経年的に大きい値を示した。

(2) 海浜における天然放射性核種の分布 (2)

福井県原子力環境監視センター: 早川博信、五十嵐修一

若狭湾に面する海岸から海砂を採取し天然放射性核種濃度を測定した。砂中の天然放射性核種濃度を、①海浜における海砂の採取位置、②粒径依存性、③砂中の高濃度鉱物成分の観点から述べた。測定対象核種は、 ^{224}Ra , ^{226}Ra , ^{228}Ac , ^{137}Cs , ^{40}K である。

(3) 海洋環境における人工及び天然放射性核種の挙動

動燃東海: 中野政尚、渡辺 均、清水武彦、片桐裕実、赤津康夫

金沢大学理学部LLRL: 山本政儀

東海沖海域で採取した海水、海底土及び海産生物中について、人工放射性核種 (^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239, 240}\text{Pu}$, ^{241}Am)及び天然放射性核種 (^{40}K , ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{238}U)について測定を実施し、その比較検討を行った。

本報告では、①濃度分布、②海産生物の濃縮係数の試算、③海産生物の摂取による被ばく線量の推定、についての評価結果をまとめた。

(4) 雲仙普賢岳の火砕流による放射性核種の再浮遊

島根県衛生公害研究所: 寺井邦雄

金沢大学理学部LLRL: 小村和久、山本政儀

東京大学工学部：中澤正治

雲仙普賢岳は、過去1663年(330年前)及び1792年(198年前)に噴火しており、いずれも溶岩流の発生があった。今回1991年～1994年は溶岩ドームが出現し、火砕流が多発した。その際、火砕流は上昇気流を発生させた。それに伴い山肌を崩落した溶岩は土壤に蓄積していたフォールアウト核種 ^{137}Cs を再浮遊させることは前回報告した。今回 ^{238}Pu 、 ^{240}Pu について調査を行ったので、その結果を報告した。

(5) 土壤から農作物へのCs-137およびCsの移行について

環境科学技術研究所：塚田祥文

放射線医学総合研究所：渡辺輝久

土壤から農作物へのCsおよび ^{137}Cs の移行係数について報告した。圃場土壤中Csおよび ^{137}Cs 濃度は、それぞれ1.9-10 (平均値:5.4) $\mu\text{g/g}$ および $2.8\text{E}-3-3.8\text{E}-2$

(平均値:1.6E-2)Bq/gと共に1桁の変動範囲内であった。農作物中Csおよび ^{137}Cs 濃度は、それぞれ $5.4\text{E}-3-3.0\text{E}-2$ (平均値:4.6E-3) $\mu\text{g/g}$ (fresh weight) および $2.3\text{E}-6-4.6\text{E}-4$ (平均値:5.3E-5)Bq/g (fresh weight)と極めて低い値であるが、数種類の農作物が含まれていることも原因して2桁の変動範囲を示した。

(6) チェルノブイル周辺環境における放射性核種の移行挙動研究 (2)土壤中分布

原研 環境安全研究部：天野 光、上野 隆、柳瀬信之、松永 武

(財) 放計協：小沼義一

青山学院大・理工：渡辺美紀

チェルノブイル周辺環境では、原子炉事故起因の ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 及び超ウラン元素等が蓄積している。本研究では30Km圏制限区域内の土壤中に存在している放射性核種の深度分布の特徴を把握するため、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm について、逐次分析法により核種を定量した。これらの結果について報告した。

(7) チェルノブイル周辺環境における放射性核種の移行挙動研究

(3)地表面における存在状態

青山学院大・理工：渡辺美紀

原研：天野 光、上野 隆、松永 武、長尾誠也

(財) 放計協：小沼義一

チェルノブイル周辺環境の土壌表面に蓄積している放射性核種の存在状態とその特徴について、土壌を化学的に分画した結果に基づいて報告した。

- (8) チェルノブイル周辺環境における放射性核種の移行挙動研究 (4)河川による流出
原研 東海研：松永 武、上野 隆、長尾誠也、天野 光

(財) 放計協：小沼義一

青山学院大・理工：渡辺美紀

ウクライナ研究工業機構プリピャッチ-RIAP：A. K. Sukhoruchkin

事故地域における河川の汚染過程、下流への移行過程を明らかにすることを目的に、事故地近傍における河川汚染の実態、特徴を報告した。

- (9) 放水口沖の海水トリチウム濃度に対する原子力発電所の影響

京都府保健環境研究所：藤波直人、西内 一、渡辺哲也、都築英明、伊吹勝蔵

原子力発電所周辺の環境放射線モニタリングの一環として、高浜発電所から海水中に放出されるトリチウムの影響範囲を推定するため、放水口から沖合約8Kmに至るいくつかの定点で定期的に採取された海水試料のトリチウム濃度について検討を行った。

- (10) 杉林中における ${}^7\text{Be}$, ${}^{210}\text{Pb}$, ${}^{210}\text{Po}$ の分布

九大RIC：大崎 進、杉原真司

九大理：吉田明日香、田川祐子、前田米蔵

九大農：井倉洋二

大気から降下している自然放射性核種 ${}^7\text{Be}$, ${}^{210}\text{Pb}$, ${}^{210}\text{Po}$ を用いて、人工林として代表的な杉樹木中の分布を測定した。

- (11) 大阪大学吹田キャンパスにおける環境試料中トリチウム濃度の測定 (I)

大阪大学ラジオアイソトープ総合センター：山口喜朗、山本幸佳

大阪大学工学部：吉田茂生、高橋亮人

これまで5年間にわたり吹田キャンパス内の4ヶ所において、松葉自由水及び土壌水分中のトリチウム濃度の変化を知るため、自作の簡易サンプル処理システムを用い

て水分を抽出し測定してきた。その動向から環境中トリチウムバックグラウンドレベルについて報告した。

(12) 日本原子力研究所周辺における環境試料中トリチウム濃度の解析

原研：佐々陽一、松浦賢一、三原 明、中村 力、片桐 浩、加藤正平

環境影響評価の精度の向上を図ることを目的として、現在稼働中のトリチウム放出施設周辺において、空気中トリチウム濃度の測定を行うとともに空気水分中HTO濃度に対する松葉中及び雨水中HTO濃度との関係を調べ、モニタリング指標等についても検討した。

4.1.2.2 第33回理工学における同位元素研究発表会 (1996.7.1.-3 東京)

(1) 水田作土存在する ^{137}Cs の滞留半減時間

農業環境技術研究所: 駒村美佐子、津村昭人、結田康一、山崎慎一

水稲による土壌中の ^{90}Sr や ^{137}Cs などの経根吸収は、主として表層から約20cmの作土が対象になる。従って、これらの核種が作土に留まる滞留時間や作土から圏外(下層)への溶脱を明らかにするため、水田作土中の ^{137}Cs 含量の経年推移から、 ^{137}Cs の作土中での滞留半減時間と作土から下層への溶脱率を算定した。

(2) 固体高分子電解質膜を用いた環境水中トリチウムの電解濃縮

八戸工業大学: 村中 健、法官 淳、海老川誠

トリチウム濃度は自然レベルにまで低下してきており、100mlバイアルを用いても測定限界に近く、試料の濃縮処理が必要不可欠になってきている。水試料の濃縮方法としては従来、対向するニッケル電極板を用いて、試料水に過酸化ナトリウムを添加し、アルカリ溶液にして電気分解する方法がおこなわれてきたが、最近、固体電解質重合体を用いる方法が発表された。この方法は添加剤なしに試料水を電解でき、濃縮工程が単純で実用化の可能性が高いため、自作した電解装置による濃縮実験について報告した。

(3) 固体高分子電解質方式トリチウム自動濃縮装置の開発

東京都立アイソトープ総合研究所: 齊藤正明、高田 茂

固体重合体電解質(S. P. E.)電解装置に水位センサを取り付け、電解セル中の水量を直接に検出することによって自動停止する機能を持たせた。さらに、自動停止機能を活かして、濃縮前水量および濃縮水濃度だけから試料水濃度を決定する手法を開発した。

(4) 西太平洋における大気中の ^7Be 濃度と ^{210}Pb 濃度

国立環境研究所 明治大学理工学部: 土井妙子、村井 浩、佐藤 純

オーストラリア西岸のフリーマントルから神戸へ向かって西太平洋を航海する兵庫県が実施した大学洋上セミナーの船上で、約2週間にわたって毎日採取されたエアロ

ゾル試料を用いて航路に沿って ^7Be と ^{210}Pb の大気中の濃度分布を観測した。

- (5) 琵琶湖湖水中溶存炭酸の ^{14}C 濃度と湖水循環（加速器質量分析法を用いた環境試料の ^{14}C 濃度の測定-X1）

名古屋大学年代測定試料研究センター：中村俊夫、小島貞男、太田友子、小田寛貴
愛知医科大学核医学研究センター、滋賀件琵琶湖研究所：池田晃子、横田貴一郎
富山大学理学部：水谷義彦

湖水中の無機炭酸の回収方法と、無機炭酸の濃度、さらにその ^{14}C 濃度について測定結果と、その結果から推察される湖水循環について考察した。

- (6) メタノール液シン法による埋没スギ材の ^{14}C 年代測定 II

阪府大、先端研、アイソトープセンター：柴田せつ子、川野暎子
国立環境研究所：木村勝彦

埋没スギ材71本（福井県三方町黒田）の相対的生育年代を決定しその中から保存状態の良好なスギ材7本を選出してその ^{14}C 濃度を測定した。さらに ^{14}C 年代を求めてStuiverらの ^{14}C 年代補正カーブとの整合性を検討した。

- (7) HPLC/ICP-MS による環境中の ^{99}Tc 測定

東京都立アイソトープ総合研究所：武藤利雄、下川利成

同重体の ^{99}Ru および分子イオンの ^{98}MoH が干渉するため、ICP-MSに高速液体クロマトグラフ(HPLC)を接続し(HPLC/ICP-MS)、妨害となるRuおよびMoを分離すると同時に ^{99}Tc を測定する方法を検討した。試料は有機物を灰化した土壌試料50gに8M HNO_3 を加えてTcを抽出した後、これをTc分離用のTBVAレジン(Bichrom社製)に通してTcを粗分離した。

- (8) 陰イオン交換膜を用いたトリチウムの電解濃縮

新潟大学工学部：上松和義、山崎 寿、佐藤峰夫

陰イオン交換膜のトリチウム電解への適用の可能性を調査した。陰イオン交換膜には旭化成のACIPLEX A-201を用いた。この両側から各種電極ネットで挟み、これを濃度既知のトリチウム水中に入れて電解を行った。250mAcm⁻²の定電流法により、体積

濃縮率5～6まで電解を行い、電解後のトリチウム濃度を液体シンチレーションカウンタで測定した。

4.1.2.3 1996年度日本地球化学会年会(1996.8.27.-31 北海道)

(1) 北太平洋海水中の ^{232}Th 濃度 —表面電離型質量分析計による定量—

東京大学海洋研究所: 井田雅也、天川裕史、野崎義行

Thは半減期が異なる同位体を持つことから、海水中からの元素の除去過程を調べる上での重要なトレーサーとして用いられる。現在、海洋における様々な現象を解明するためにより多くかつ高精度な測定データが求められている。そのため、少量の試料で精度の高い測定が可能な表面障壁型質量分析計を用い北太平洋海水試料中の ^{232}Th の定量を行った。

(2) 東シナ海の堆積速度について

名古屋大学大気水圏科学研究所: 小栗一将、松本英二、松野圭二

^{210}Pb 法により東シナ海陸棚から大陸斜面、沖縄トラフ内部にかけてexcess-Pbインベントリーを測定するとともに、堆積物中への有機炭素フラックスの算出を行った。

(3) 沖縄トラフ・熱水噴出域における ^{226}Ra , ^{210}Pb および ^{210}Po の挙動

東京大学海洋研究所、海洋科学技術センター: 山本恵幸、日下部正志

中部沖縄トラフの2か所の海域で発見された熱水噴出活動に関連した物質循環過程を解明するため、熱水噴出孔周辺域におけるウラン系列の放射性核種 ^{226}Ra , ^{210}Pb および ^{210}Po の測定を行った。

(4) 森林内の植物・きのこにおける放射性セシウムと微量元素

放射線医学総合研究所: 吉田 聡、村松康行

森林内での放射性Csの移行を解明するためには、安定Csやその他の微量元素を含めた総合的な研究が必要である。そこで、放射性Csと各種の微量元素について森林内での分布と挙動を明らかにすることを目的とし、植物・きのこ及び土壌を分析して土壌から植物・きのこへの各元素(核種)の移行について考察した。

(5) ^{210}Po および ^{210}Pb エアロゾルの粒径分布

山形大学理学部：鈴木利孝、丸山裕

大気中の ^{210}Po 、 ^{210}Pb は大気中 ^{222}Rn の放射壊変、鉱物、海塩粒子等、様々な自然発生源から供給される。供給源により粒径や $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比が異なるため、ソースの時間変化は、エアロゾルにおける放射能比の粒径分布変化として現れるはずである。そこで、エアロゾル中の両核種に対する各種供給源の寄与率を明らかにするため、大気中 ^{210}Po 、 ^{210}Pb 濃度の粒径分布を測定した。

(6) 宍道湖の底質の堆積速度について

地質調査所：金井 豊、井内美郎、山室真澄

富栄養化した汽水湖の一例として宍道湖を調査した。15のコア試料について、 ^{210}Pb と ^{137}Cs の放射線強度を測定して堆積速度を算出し、堆積環境について考察した。

4.1.2.4 日本原子力学会1996年秋の大会 (1996.9.23-25 仙台)

(1) ゲル懸濁法を用いた環境中 ^{14}C の簡易測定

九大・工: 若林源一郎、岡井富雄、大浦廣貴、納富昭弘、的場 優

九大・理: 柿内秀樹、百島則幸

九環協: 川村秀久

環境中の ^{14}C のモニタリングに有用な液体シンチレーション測定用の簡易測定法を開発した。測定試料は試料炭素を CaCO_3 としてゲル懸濁法によって試料調製し、この方法の特性を調べた。また、実際の環境試料についても測定を試みた。

4.1.2.5 第40回放射化学討論会 (1996.10.22-24 埼玉)

(1) チェルノブイル周辺環境の森林土壌における放射性核種の存在状態

青学大理工: 渡邊美紀、木村 幹

原研東海: 天野 光、上野 隆、松永 武、柳瀬信之

(財) 放計協: 小沼義一

チェルノブイル事故炉から約6km西方に位置するサハン川近傍の森林土壌において腐植の進み具合の異なる三層(AoL, AoF, AoH)及び土壌鉍物層(深さ0-1cm)の四層を使用した。目的に応じて3つの選択的抽出法により分画を行った。各分画フラクションについてGe半導体検出器により ^{137}Cs 等の γ 線放出核種を定量し、その後放射化学的分析手法により ^{238}Pu 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Am を定量した。

(2) 中国・吐魯番盆地におけるSr-90及びCs-137の分布、挙動

青学大理工・理研: 齊藤裕子、高崎雅子、新城則子、川島晴海、木村 幹、矢吹貞代

地球規模で問題となっている砂漠化の原因の一つとしてあげられる土壌の塩類化に関する知見を得るために、昨年、高温高乾燥地域である中国・吐魯番盆地の環境試料について化学分析を行った。蒸発および毛管現象による塩類の析出とそれに伴う主要・微量元素の分析・挙動について報告した。今回、更なる解明をするために、同試料の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs に注目し、化学分析を試みた。

(3) 琵琶湖湖底堆積物中の天然(^7Be 、 ^{210}Pb)及び人工放射性核種(^{137}Cs 、 239 、 ^{240}Pu)

金沢大学LLRL、滋賀県琵琶湖研究所: 吉田義久、山本政儀、横田喜一郎、小藤久毅、
小村和久

自然の動的側面に時間軸を導入するために、大気由来の天然放射性核種 ^7Be ($T_{1/2}=53.3\text{d}$)、 ^{210}Pb ($T_{1/2}=22.3\text{y}$)、及び人工放射性核種 ^{137}Cs ($T_{1/2}=30\text{y}$)、 239 、 ^{240}Pu ($T_{1/2}=2.4\times 10^4$ 、 $6.5\times 10^3\text{y}$)をトレーサーとして湖底堆積物の短期的長期的な動態を解明することを試みた。 ^7Be は短期的な挙動を、一方 ^{137}Cs 、 ^{210}Pb 、 239 、 ^{240}Pu は長期的な堆積挙動を把握する目的で用いた。

(4) 琵琶湖におけるウランの地球化学 —堆積物・湖水間のUの移行挙動—

金沢大・理・LLRL、滋賀県琵琶湖研究所：小藤久毅、山本政儀、横田喜一郎、
吉田義久、小村和久

粒子沈降に伴う湖水中Uの堆積物への除去量、及び湖底から湖水中への溶出量の推定、更にU溶出のメカニズムを明らかにするために、堆積物中の粒子表面及び間隙水中のUの深度分布を測定した。Uは酸化還元環境により挙動が大きく変化するため、同時に堆積物中のFe、Mn分布についても測定した。

(5) 大気中での飛程が長い土壌粒子塵中のPu-239, 240濃度

金沢大理：柴 由美子、古谷奈己、ハク M. A. 、中西 孝

粒径 $1.1\mu\text{m}$ 以上の大気浮遊塵についての昨年度までの研究（柴・ハク・中西、第39回放射化学討論会予稿集、3C05(1995)）に引き続いて、粒径 $1.1\mu\text{m}$ 以下の大気浮遊塵についてのPuの分析と中性子放射化学による土壌粒子成分の見積を行い、大気中での飛程が長い（永久浮遊塵的な）土壌粒子塵中のPuの昨今の濃度レベルに関する若干のデータを得たので、ここに報告した。

(6) 高エネルギー物理学研究所周辺的环境水中のトリチウム濃度

高エネ研：三浦太一、高原伸一、穂積憲一、平 雅文、神田征夫、近藤健次郎

1982年に本所敷地内に環境放射能観測用井戸を設置し、1983年以後定期的に本所地下水及び周辺河川水等のトリチウム濃度を、また1990年以降は、 γ 線放出核種についても同様に定期的に採水し、その放射濃度を測定した。

(7) 筑波大タンデムを用いた ^{36}Cl 測定法の開発

筑波大AMS グループ：宮崎紀彦、関 李紀、馬場隆行、船屋仁奈、高橋 努、
皆倉輝志、長島泰夫、池田龍一

筑波大AMSグループは、筑波大のタンデム型静電加速器を用いて、 ^{36}Cl や ^{41}Ca などの測定をするための装置の製作や資料の調製などを行っている。本報告では、 ^{36}Cl の測定法に関してほぼ実用段階に入った経緯に付いて報告した。

(8) 土壤微生物の関与した大気 —土壤系での分子状トリチウムの環境動態

九大理、九大工、九大RI：柿内秀樹、百島則幸、前田米蔵、岡井富雄、杉原真司

大崎 進

実験室内において環境試料に対してトリチウムガス、トリチウム水のばく露を行いトリチウムガスの酸化率およびトリチウム水の有機物組織への取り込みを評価した。

(9) 土壤の酸化還元状態変化とTcの挙動について

放医研：田上恵子、内田滋夫

湛水条件にすることによりTcを土壤に吸着し、さらにこの土壤を乾燥後、いくつかの抽出剤を用いて選択的に土壤の画分を抽出し、土壤の酸化に伴うTc抽出量の経時変化について検討した。

(10) 深海底堆積物中のPu-239, 240蓄積量

金沢大理：ハク M.A.、中西 孝

昨年度（ハク・中西、第39回放射化学討論会予稿集、3C04(1995)）に引き続いて、北太平洋とその隣接海の深海底堆積物についてPuの深度分布および蓄積量の測定を行い海水柱中のPu蓄積量のデータ等も用いて海水柱中をPuを担って沈降する粒子の平均沈降速度と平均粒径に関しての一次近似的な解析を行った。

(11) 本邦河川中の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs および ^{239}Pu の分析

青学大理工：斉藤裕子、西村幸洋、北田善則、戸谷 輝、長谷川将彦、原川裕章、

古里直久、木村 幹

過去10年間に採取された日本各地の神通川、那珂川、多摩川、富士川で地点を定めまた日本各地として石狩川、信濃川、利根川、天竜川、木曾川、吉野川、旭川そして筑後川で表面流水を採取し、地域的な特徴、経年的な変化を踏まえて、挙動および分布を考察し検討した。

4.1.2.6 日本放射線影響学会 (1996.11.18-20 大阪)

(1) 旧ソ連核実験場(セミパラチンスク)とその周辺の研究調査

-環境放射能の測定調査-

金沢大・理・低レベル放射能実験施設: 山本政儀

1994から1996年にかけて計4回セミパラチンスク核実験場及びその周辺地域の放射能調査期間中に採取した土壌について現在の残留放射能レベルと分布の把握を目的に、 ^{137}Cs やPu同位体の測定を実施した結果を述べた。

(2) 現地における環境放射線・放射能調査2-2 30Km圏内における長半減期核種の分布及び移行の特徴

原研東海・環境安全研究部: 天野 光

チェルノブイル事故炉周辺30Km圏内の長半減期核種の分布や移行の特徴について報告した。

(3) 東シナ海陸棚縁辺部における $^{239+240}\text{Pu}$ のフラックス -1995年秋季-

放医研・放生セ: 山田正俊、青野辰雄

海洋中でのプルトニウムの輸送過程を明らかにするため、東シナ海陸棚縁辺部での簡易型セジメントトラップ実験の結果について報告した。

(4) 筑波の気象研究所における ^{85}Kr のモニタリング

(^{85}Kr Monitoring at MRI, Tsukuba)

気象研究所(MRI): 五十嵐康人 他

全地球規模の ^{85}Kr のモニタリングの重要性を紹介し、ドイツ大気放射能研究所(Bfs-1AR)との協力のもと、液体窒素冷却活性炭捕集によるBfs-1AR方式により大気中のクリプトンを捕集し、分析した。 ^{85}Kr 濃度は季節変動を示し、 $1.0\sim 14\text{Bq/m}^3$ であった。

(5) 筑波で観測された高⁸⁵Kr濃度の原因

(Case Studies for High ⁸⁵Kr Concentration Observed in Tsukuba)

気象研究所: 宮尾 孝 他

筑波の研象研における⁸⁵Kr濃度は5月～6月及び9月～10月にかけて13～14Bq/m³となり、地球規模でのバックグラウンドレベルでは7月～8月となる。気象及び大気中の⁸⁵Krデータならびに正規型プルーム拡散モデルにより、前記の現象を解明した。結論とした北東の風により60Km離れた動燃東海再処理施設からの⁸⁵Krの寄与であることが判った。

(6) 日本沿岸のウミトラノオのテクネチウム-99濃度

放医研: 平野茂樹、山田正俊、青木辰雄

ウミトラノオ、*Sargassum thunbergii*は日本海側で高く太平洋側で低い傾向が観察された。その低い方は千葉県千倉で4.5～4.7、同県富浦で5.6～7.9、同鴨川で6.8～9.7であった。太平洋岸では和歌山県の古座で23.6の高い値が得られている。また青森県の太平洋岸でも比較的高い値が得られており六ヶ所村では12.2～18.4であった。日本海沿岸では北海道の余市が11.7で一番低く、青森県深浦で36.2の最高値が得られた。このことから、テクネチウムは日本近海ではまだ平衡状態になっていないと見られる。

(7) β線測定法とICP-MS法による環境試料中の⁹⁹Tcの定量について

放医研: 田上恵子、内田滋夫

セリビア大学: Manuel Garcia-Leon

過去にβ線測定法では検出できなかった試料をICP-MS法で再測定し値を求めることにより、Tcの環境挙動の解明のための貴重なデータが得られる。本研究はスペインで低バックグラウンドβ線測定法により定量された環境試料を用い、ICP-MSにより⁹⁹Tcを再測定するためTEVAレジン(Bichrom社製)を用いた方法について検討した。

4.1.2.7 第38回環境放射能調査研究成果発表会 (1996.12.4 千葉)

(1) 環境中の ^{14}C の濃度調査

放射線医学総合研究所: 府馬正一、井上義和

自然生成および核実験起源の ^{14}C の環境レベルを把握する目的で、1960年代初頭より現在に至るまで、主に植物精油と発酵アルコールを測定試料として ^{14}C 濃度(比放射能、dpm/gc)を測定した。

(2) 環境中のトリチウムの測定調査

放射線医学総合研究所: 井上義和、宮本霧子、加瀬由美子

千葉市、茨城県東海村および青森県六ヶ所村を対象地域として、月間降水・地下水・河川水などの測定調査を行った。

(3) 最近の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 降下量について

気象研究所 地球化学研究部: 五十嵐康人、広瀬勝己、宮尾 孝、青山道夫

茨城県つくば市の気象研究所で観測された最近の ^{90}Sr および ^{137}Cs 降下量について述べた。

(4) 最近の日本の大気中 ^{85}Kr 濃度

気象研究所 地球化学研究部: 五十嵐康人、宮尾 孝、吉川(井上)久幸、伏見克彦

茨城県つくば市の気象研究所で1995-96年に観測された ^{85}Kr 大気中濃度について述べた。

(5) つくばにおける大気中トリチウム(HTO) 濃度

気象研究所 地球化学研究部: 緑川 貴、吉川久幸

トリチウムの大気中における動態を明らかにする目的で、つくばにおける水蒸気中の HTO 濃度の測定を長期間継続して行った経年変化の結果について報告した。

(6) つくばにおける最近のプルトニウムの降下量について

気象研究所: 広瀬勝己、五十嵐康人、宮尾 孝

つくばにおける最近のプルトニウムの降下量について報告した。

(7) 尾駿沼における湖底堆積物中の放射性核種の分布調査

財団法人 環境科学技術研究所：植田真司、川端一史、五代儀 貴、長谷川英尚、
近藤邦男

再処理施設稼働前の尾駿沼の湖底堆積物中における放射性核種の地理的分布状況を調査した結果について報告した。

(8) 福井県における環境水中のトリチウム調査(1995年度)

福井県原子力環境監視センター：徳山秀樹、早川博信

1995年4月から1996年3月まで、福井県で行った環境水中のトリチウム調査結果について報告した。

(9) 日本周辺海域の放射能の解析調査

放射線医学総合研究所：山田正俊、平野茂樹、青野辰雄、中村 清、
長尾 裕 (現 海生研)

海水と海藻中の ^{99}Tc および相模トラフ海底堆積物中の $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs の結果について報告した。

(10) 日本沿岸の海水と海産生物中の人工放射性核種濃度とその挙動

(財) 海洋生物環境研究所：笠松不二男、長屋 裕、石川雄介、丸茂恵右

原子力発電所と核燃料再処理施設(以下、核燃施設、1991年より調査)沖合漁場の海洋環境放射能調査から得られた資料に基づき日本沿岸の海水と海産生物中の放射性核種の濃度、分布とその挙動について概説した。

(11) 陸上試料の調査研究

—環境中におけるテクネチウム等長半減期核種の挙動に関する研究—

放射線医学総合研究所：田上恵子、内田滋夫、横須賀節子、渡辺輝久

大型燃焼装置を用いてTcを土壌から揮散させ溶液中に捕集し、次に、捕集溶液から溶媒抽出(シクロヘキサノン使用)によるTcの分離・濃縮を行った。燃焼装置の使用

により分析上妨害となる多量の共存元素からTcを分離するのに有効であり、溶媒抽出は測定妨害となるRuをほぼ100%除去できることがわかった。

(12) マイクロ波導入プラズマ質量分析装置の ^{129}I 測定への適用

動力炉・核燃料開発事業団：吉田美香、渡辺 均、片桐裕実、赤津康夫

超微量分析装置として開発されたマイクロ波導入プラズマ質量分析装置(MIP-MS)を用いて ^{129}I 測定への適用について検討した。

4.2 液体シンチレーション測定に関する最近の話題

4.2.1 光子 (γ 線) / 電子 (β 線) - 排除アルファ液体シンチレーション (PERALS) スペクトロメトリーのまとめ

(Photon / Electron-Rejecting Alpha Liquid Scintillation (PERALS) Spectrometry: A Review)

W. Jack McDowell: Radioactivity & Radiochemistry, 3, No. 2, 26-52 (1992)

(1) 要旨

液体シンチレーションによる α スペクトロメトリーはここ3~4年の間に実用のものとなってきている。現在の、事実上全ての $\beta \cdot \gamma$ 線からのパルスを確認して除去する能力(< 99.95)、及び有用な(5%) α エネルギーの分解能を得ることにより、 α 液体シンチレーションスペクトロメトリーを以前とは様変わりで見ることが可能にした。器具と試薬が現在では手軽に利用でき、放射化学実験者たちは α 液体シンチレーションをこれまでの α 計測と分析の手法に加わる有効なものとなし得るようになってきている。この装置を、効率の良い光出力と与えられた放射性核種について高い液-液抽出の選択性を持つ抽出シンチレータと組み合わせることにより、 α 計測にすばらしい感度と高い精度を与える系が実現する。かくしてこの手法は、環境中の低レベル放射能(0.001cpm)の検出、及び法律で義務づけられた目的のための α 放射性核種の正確な定量(精度の限界はサンプリングエラーのみによる)の両方に応用できる。この論文では、 α 液体シンチレーションの既知の利用法を概説し、現在発展中の幾つかの付加的な利用法の下調べを試みる。

(2) 序論

液体シンチレータは α 放出体の検出に利用し得ることが知られている。液体シンチレーションは α 計測に効率的な方法である。それは次のような点で魅力的である。即ち4- π 計測法であること、適切に調整されたシンチレータの光出力が α エネルギーに対して正比例すること(図4-1)、自己吸収の問題がないこと(故に α 粒子についての計数効率 は事実上100%である)、比較的簡単な試料調整がしばしば利用可能であることなどである。

BroserとKallmannが1947年に初めて核放射線の検出のために、シンチレータ溶質 (fluors) を溶かした芳香族溶媒の利用を示した。三年後にM. Agenoとその協力者らは、ナフタレンのキシレン溶液中における、 β 及び γ 線同様 α 線誘起のシンチレーションについても報告した。1954年にはBassonとSteynが α 計測のための液体シンチレーションの利用をさらに詳しく示した。

これら早期の発展についての信頼のおける報告が出版されている。

(3) 機器および試薬の基礎事項

近年 α -液体シンチレーション (α -LS) のために設計される装置、シンチレータ構成物、及び試料調製法が進歩して、 α -LSは α スペクトロメトリーに優れた方法となっており、また多くの状況下で最上の方法となっている。

過去において液体シンチレーションは、多くの理由により α 計測にほとんど用いられなかった。第一にそれはもともと β 計測のために開発されたのであり、最近まで市販の液体シンチレーションの装置は全て β 計測のために設計されていた。第二に、 α 線・ β 線・ γ 線とシンチレータとの相互作用の仕方のために、バックグラウンドのカウントレベルを調整し、そのバックグラウンドのカウントを正確に知ることには問題があった。三番目に、興味ある放射性核種をシンチレータに導入する際、同時に様々な量の水、酸、あるいは塩といった、シンチレータの性能を低下させ、スペクトルのピーク位置を変化させ、バックグラウンドのカウントを変えてしまう望ましくない物質を導入させない効果的な方法が無かった。 α -LSの新しい技術と装置がこれらの問題を解決した。

(i) 放射線とシンチレーターとの相互作用

最適な光出力のためには、シンチレータ溶液には酸素、塩化物、アルコール、ケトンその他といった光を生成すること無しにエネルギーを吸収する分子を最小限に、かつ最大限に、光(蛍光)を生成あるいは容易にエネルギーを光生成分子(芳香環)に移す分子が含まれている必要がある。励起状態にある分子、つまりイオン化放射線からエネルギーを吸収した分子は、電子に依存した種類と程度に依存するどの状態にも存在でき、これらは励起状態の増加する順に S_1 、 S_2 などと呼ばれる。

シンチレータ溶液とイオン化放射線の初期の相互作用は主に溶媒分子とであるが、これは溶媒分子が溶液中の全分子中で最大のフラクションを構成するからである。イオン化が

起こるとすぐに、残留エネルギーを消散する過程が始まる。これにはイオン再結合、イオン-分子反応、エネルギー転移が含まれる。これら三つの過程のうちはじめの二つは光の生成には至らない。最後のもの、即ち光を放出し得る分子へのエネルギー転移のみが光を生じる。これらの機構の詳細をエネルギーから光への低い転換効率と、 α 線、 β 線、 γ 線について観測された効率の差を説明するために示すことができる。

β 線と γ 線は液体シンチレーションの系において α 線よりも効率的に光を生成する --- エネルギーの単位吸収あたりおよそ10倍である。もし我々が5MeVの α 線と0.5MeVの β 線の液体シンチレーションスペクトルを同じシンチレータ中で比較するならば、0.5MeVの β 線のスペクトルが5MeVの α 線に重なることに気づく(図4-2)。故に、 α 壊変に伴う $\beta \cdot \gamma$ 線からの、また α 核種と共にシンチレータ中にうっかりと含まれた β/γ 放出核種からの、そして外部線源の γ 線からのバックグラウンドの寄与は、 α -LS法の利用に深刻な問題となる。結果として生じる β - γ バックグラウンドは試料から試料によって変化し、それらを予測し、減少させる信頼できる方法は使用されていない。化学分離とグラフ上での $\beta \cdot \gamma$ バックグラウンドの削除が利用できるが、精確で感度のよい α -LSは β/γ 線と α 線誘起のパルスの電氣的弁別が発展するまで可能ではなかった。

(ii) 放射線の飛跡

シンチレータ中を貫通する γ 線の飛行距離は、通常試料容器の限界によって決められる。シンチレータ中での0.5MeVの β 粒子(電子)の飛程はおよそ1650 μm であり、5MeVの α 粒子の飛程は約50 μm である。故に、 β 線と γ 線が放射線の筋道に添って励起またはイオン化された分子をとびとびに生成するのに対し、 α 線はラディカルや分子群を α 粒子が横切った非常に短い飛程に添って集中的に生成する。明らかに、 γ 線と β 粒子によるはっきりとしたイオン化(飛程の単位長さあたりに生成されたイオンの数)は α 粒子によるものよりも大幅に少ない。 γ 線と β 粒子は主として一重項励起(S_1)の分子を生じるが、一方 α 粒子は三重項励起(T_1)の分子やその他の電荷の分子群やイオンを大きな割合で生成する。

α 粒子によって生成されたような三重項励起の分子や、分子群、イオンは一重項励起の分子よりもゆっくりとエネルギーを解放する。これは拡散に支配される過程(おそらくは高い密度のイオン化、励起、そして損傷を受けた分子のため)のようであり、一重項励起の分子がそのエネルギーの消散に1から2nsしかかからないのに対し、200から300nsを必要とする。これらの効果は、 β 線や γ 線によって生成されたエネルギーよりも α 線によって

生成されたエネルギーのより多くの割合が無放射過程へと散逸する状況をもたらす。この種の損失は“ダイナミックエンチング”として言及されてきた。

(iii) γ 線エネルギー

貫通力のある γ 線はその飛程とエネルギーに依存した量のエネルギーを残す。低エネルギーの γ 線 ---- あまり貫通しない ---- は、シンチレータ中にそのエネルギーを高エネルギーの γ 線よりも大きな割合で残す。 γ 線により液体シンチレーション中に生じる波高(エネルギー)スペクトルの一般的な型を図4-3aに示した。実際の曲線の形状は γ 線源のエネルギー分布と、それがシンチレータの内部か外部に存在するかに依存するが、一般的な形状を示したようになる。スケールは通常の α エネルギーの範囲を含む。

(iv) β エネルギー

β エネルギーは普通シンチレータ及びその容器内で完全に吸収される。通常の興味あるエネルギー範囲では、光出力は β エネルギーに比例する。このようにして、意味のあるエネルギーまたは波高スペクトルが得られる。しかし、個々の β 粒子についてのエネルギー分布はゼロからその最大値にわたり、図4-3bに示した様な波高スペクトルを生じる。幾つかの β パルスは常に低エネルギーなので、光電子増倍管に検出されるのに十分な光を生成しない。故に、スペクトルは β エネルギーがゼロに達する前に落ち込む。

(v) α エネルギー

α エネルギーもまたシンチレータとその容器中で完全に散逸される。生じる光の量は α エネルギー(図4-1)に比例し、完全にシンチレータ中で起こる全ての α 壊変(容器内壁との衝突の影響を除いて; “検出効率”参照)が検出される。図4-3cに、最適なエネルギー分解能を持つ α 液体シンチレーション上に現われるように5.0MeVの α 線のスペクトルを想定してプロットした。この半値幅(FWHM)は245keVであり、これは現在利用できるシンチレータ、光電子増倍管、電子機器により達成できる α エネルギー分解能である。

(vi) 合成スペクトル

上述した液体シンチレータと三種類の放射線との異なる相互作用により、液体シンチレーションによる α 粒子のスペクトル的弁別は非常に困難となってしまう。図4-3dに一つの

シンチレータ中に γ 放出体、 β 放出体、 α 放出体を組み合わせた場合の効果を示す。ここで α ピークは、 β/γ 連続線の上に重なっている。 β/γ 連続線が増大、減少、あるいは試料の構成物によってシフトしているこのような組み合わせのタイプのスペクトルは、おそらく液体シンチレーション法による α 計測とスペクトロメトリーにとって唯一・最大の問題だろう。それは結果として、予測通りでなく試料によって変化するようなバックグラウンドや、形状や位置の一定しない α ピークを生じる。これらの問題を扱う方法は後に述べる。

(vii) 検出効率

多くの適用において検出効率は100%として扱うことができる。しかしながら全ての場合において、試料容器の器壁から50 μm 以内で発生するような α 壊変のうち幾つかは器壁へと向かい、そのエネルギーの一部もしくは全てをガラス中に残すことになるので、シンチレーター溶液の光生成のためには不十分なエネルギーが使われる。この効果は、ごくわずかなカウントのロスや、 α ピークの低エネルギー側へのわずかなテールを起こすと予想されるが、これらの幾つかはカウントの積分の際に含まれることになる。この“壁効果 (wall effect)” の量は様々なサイズの容器について見積られてきている。一般的に器壁へのエネルギーロス は試料体積の小さなものほど大きい。これは、表面積と体積の比が大きくなり、そのために α 粒子が壁に衝突する可能性が高くなるからである。シンチレーターの深さ1cm、直径が1.5cmの容器では、 α 粒子の部分的及び全エネルギーのロスは0.4%と見積られている。より小さな、内径約8mm深さ2cmの容器における壁効果は、表面積と体積の比が幾分大きくなるために0.6%と見積られる。

実験では壁効果によるロスは、数学的に示唆されたものほど高い値を示さない。Ihleらは実験における壁による損失は深さ1cm直径1.5cmのバイアルで0.1%未満であると報告した。オークリッジ国立研究所では壁による損失の実験的な測定にNBS ; National Bureau of Standards (現在はNational Institute of Science and Technology) の試料 U_3O_8

(NBS標準参考成分 950 b) を用いた。 α 線の放射能を求めるための標準試料が必要とする確度のものではないために、重量測定した天然ウランが試料として選ばれた。重量測定で調製したこの標準線源の溶液を6つに分け、図4-4に示した容器中で抽出性のシンチレーターと平衡状態にした。この容器により、水溶性試料に導入したウランのシンチレーター中への完全に量的な回復が可能となった。6つの試料の平均結果は0.32%であったが、こ

れは ^{238}U と ^{234}U の永続平衡、及び0.72%の ^{235}U 存在量を仮定した U_3U_8 の重量から計算された値より小さい。これらの試料の標準偏差は平均で0.058%であった。標準試料については既知の、確度は $\pm 0.02\%$ と与えられた。標準線源に帰する不確かさとカウントの計算に帰する不確かさで線形結合を用いると、カウントの0.31%から0.46%がサンプルチューブの壁への衝突によって失われることが示される。これは、計数効率が99.54~99.69%であることを意味する。測定値の平均と標準線源から得られた値の平均を比較することにより、計算された計数効率は上述の不確かさを伴い99.68%となる。

(viii) 試料サイズと形状

Hanschkeは、1mlの試料を密封した毛細管状の首を持つ球状アンプルに満たしたものがエネルギー分解に最適であることを実証した。我々の実験からは、様々な形の大容量の容器ではエネルギー及び時間分解に不利となることが分かった。これはおそらくフォトカソードへの光の放出と反射が一定でないことによるであろう。また、上述のセクションに記載したように、壁効果によるカウントのロスサンプルセルのサイズの減少に伴い大きくなる。PERALSスペクトロメーターで推奨されている1.0-mlの試料の入った10- \times 75-mmの試験管は、実用的ではない球状のセル（満たすのが難しい）と大容量の試験管もしくはバイアル（エネルギー及び時間分解能を劣化させる）の妥協点である。10- \times 75-mmの試験管は容易に用いられる標準的なサイズであり、1.0-mlの試料は、ミクロな技術を必要とするほど少なくはなく、また、試薬の経済性や廃棄処分の簡便性にとっても好都合な量である。

(ix) 転換電子

大部分の α 放射性核種では、全ての α 放出がその娘核種をすぐに基底状態に到達させるのに十分なエネルギーではない。故に、ほとんどの α スペクトルは数十keV異なる α エネルギーのグループから成り立っている。基底状態に達しない α 壊変は娘核種を様々な励起状態として残す。その後励起状態の核は、 γ 線、転換電子及びオーージェ電子、X線の放出を伴って脱励起する。この付加的なエネルギーの解放が最初の α 線放出から30nsもしくはそれ以上の時間の後に起こったとき、そのパルスはPSD回路によって除去される。しかしながら、これら多くの励起状態の半減期はとても短く、液体シンチレーターや検出器の時間分解能よりも短いので、そのような壊変の光子及び電子に由来するどんな光の放出も α 壊変からの光出力と組み合わせられるように思われる。光子や電子は α 粒子よりも効率的に

光を生成するため、これらの積算パルスは初めの（基底状態に達する） α パルスよりも大きくなる（マルチチャンネルアナライザー；MCAの高エネルギー側に検出される）と予想される。この“転換電子効果”は液体シンチレーションピークの高エネルギー側に肩もしくはテーリングを引き起こすと予想されるだろう。多くの実際の α 液体シンチレーションピークは僅かに高エネルギー側にゆがんではいるが、現在利用可能なエネルギー分解能のMCAスペクトルの観察からこのゆがみを検出するのはしばしば困難である。

実際の α 液体シンチレーションスペクトルの観測において転換電子が光を生成する可能性は、転換電子が0.4~0.1-MeVの β 粒子と同程度の光出力であるとの仮定下で予想されるものよりも大きくはない。Voltzの研究でもこのような結果が示されている。実際の分析作業において、我々はスペクトル解析の障害となるような転換電子の妨害という状況に遭遇したことはない。標準線源に基づく解析及び同定では、転換電子効果が問題を引き起こすとは考えられない。純粋な放射性核種のスペクトルが比較できないときには放射性核種の同定は問題となってくるであろう。すなわち、高エネルギー側の歪みが他の放射性核種のコンタミネーションとして間違われる可能性がある。現在では、比較のための標準スペクトルを得ることは、純粋な放射性核種を得ることの困難性により妨げられている。全ての α 放射性核種の、高分解能の液体シンチレーション α スペクトルを得、公表する計画は価値あるものとなるだろう。

(4) 装置の開発

(i) β -液体シンチレーションスペクトロメーター

α 線を液体シンチレーションカウンタで計測するための一般的なアプローチは、容易に利用可能な β -液体シンチレーションカウンタ(もしくはそれを改良したもの)を用い、それへの α 線放出核種を含む水溶性試料を水溶性受容型シンチレーターに導入することにより行なわれてきている。このようなシステムでは、次に挙げるような α -液体シンチレーションにとって深刻な制限がある。

- (a) 水相を溶解・混合させるシンチレーター成分が光の出力、またそれに伴ってエネルギー分解能を非常に劣化させる。
- (b) 水性試料の付加もまた、光の生成の妨害や波高応答のシフトを強める。この効果は試料ごとに様々であり、試料によって異なった分解能や α ピークの位置を与える。この効果は試料が硝酸もしくは塩化物媒質のときに特に深刻となる。

- (c) β -液体シンチレーションカウンタの光の捕集光学は、パルスエネルギーやパルス時間分解能に最適ではない。従ってこれらの機能は有効に作動しない。
- (d) β -液体シンチレーションカウンタの電気回路は α スペクトル解析に必要なエネルギー及び時間分解用には設計されていない。
- (e) β -液体シンチレーションカウンタに非常に要求される試料容器のサイズや試料変換機構が α スペクトル解析のためのエネルギー及び時間分解能の最適化を不可能にする。
- (f) 試料成分、検出器光学、スペクトロメーターのエレクトロニクスが、時間分解能を制限するように組み合わせられているため、 β/γ パルスからの α パルスの完全かつ能率的な分離が行えない。

このように、 β -液体シンチレーションカウンタ/スペクトロメータを用いると、未知成分の試料は、変化しやすいクエンチング（ピーク位置のシフト）、一定しないパルス-時間応答及び、これによる α カウントへの β/γ の変わりやすく未知の寄与（即ち、一定しない未知のバックグラウンド）を受ける。この方法は既知の放射性核種純度で、できることなら既知の一定量の母体（マトリックス）成分の試料にのみ有効であり、これらの制限はこのアプローチを厳しく制限している。これらの制限は多くの人達に α 測定に液体シンチレーションを用いることを拒絶させてきた。大部分の β -液体シンチレーションカウンタにおけるブランクのシンチレーターのバックグラウンドは5~10cpmである。最近導入された装置では1cpmと報告されており、最適なシンチレーター/試料条件下でのこれらの装置の検出限界に近づいている。 β -液体シンチレーションカウンタの一定しないクエンチングやバックグラウンド問題に加えて、 α エネルギー分解能がこれらの装置では一般的に低く、半値幅(FWHM)にして0.6~1.0MeVである。表1に、 β -液体シンチレーションスペクトロメータを用いた α スペクトル解析に関連する幾つかの利点と問題点を示した。

(ii) パルス波形（時間）測定

適切なシンチレーターと、 α 液体シンチレーション中の波形（パルス幅時間）弁別は、 β と γ 線が生成するパルスを事実上完全に除去することができ、従って、バックグラウンドレベルは汚染のない表面障壁型検出器が到達できるレベルと似た具合になる。通常、 β もしくは γ のパルスが0に戻るまでの時間とアルファのパルスが0に戻るまででは、約30nsの時間差がみられる(図4-5)。 β/γ パルスの除去にこの差を効率的に用いるためには、有

効な時間計測エレクトロニクスに加えて検出器の光学やシンチレーターと試料の化学組成を適切にするように注意すべきである。幸運にも、高エネルギー分解能のために必要なシステム特性は、良い波形分解能をもたらすものである。

数年前、有用な α エネルギー分解能（ $\sim 300\text{keV}$ 、FWHM）が α スペクトル測定用に特別に設計された液体シンチレーション装置から得られた。 β 液体シンチレーション装置の使用は、貧弱な α エネルギー分解能と重大で変動に富む β/γ 線の妨害をもたらした。幾人かの研究者は、 β 液体シンチレーションスペクトロメーターをエネルギースペクトルを示すように改造し、これらをその制限枠で α をカウントするために用いた。しかしながら、このアプローチは上述のような理由のために満足のいくものではなかった。

α スペクトル解析のためにより適当な液体シンチレーションスペクトロメーターのニーズに応じて、いくつかの製造メーカーが現在 α 計数や α スペクトル解析により有効なように設計した市販の液体シンチレーションスペクトロメーターをだしている。Packard Instrument Co.、Beckman Instrument Co.、Wallac Oy of Turku, Finland、及びテネシー州のオークリッジにあるOrdera, inc. (Oak Ridge Detector Laboratory, Inc)が、著者が知っているものである。だが、上述の最初の3社の液体シンチレーション装置は、最初は β 計数装置として設計されたものであり、それを α スペクトル特性の改良とある程度の β/γ 除去を得るためにエレクトロニクスを改造したものである。Ordera, Incによって作製された装置は、明確に α 液体シンチレーションスペクトロメーターとして設計されている。Wallac Oyは2つの液体シンチレーションカウンタを市場に出しているが、両方とも α 液体シンチレーションにこれらを用いることが可能なように設計されたという特徴がある。両者とも“波形解析”として設計された回路を含んでいる。2つの装置をより精密にしたもののバックグラウンドが、テフロンバイアルを用いると0.005cpmでガラスバイアルを用いたものでは0.03cpmと宣伝している。 $\beta-\gamma$ 妨害の効果的な除去は α カウントの約5%のロスを要するようである。クエンチングを起こすシンチレータもしくは試料を用いたときにはこの値は増加する。 α エネルギー分解能は、標準的な β 液体シンチレーションスペクトロメーターで得られるものよりも幾分良くなる。Packard社は $\beta-\gamma$ 除去用電気回路がある α 液体シンチレーションスペクトロメーターと β 液体シンチレーションスペクトロメーターとを組合わせたものを製造した。 α のロスまたは $\beta-\gamma$ の α カウントへの参入は避けられない。典型的には、 $\beta-\gamma$ 除去は98%で α カウンティング効率は95%である。エネルギー分解能は、標準的な β 液体シンチレーションスペクトロメーターのものと似た

ようなものだとされている。

Beckman Instrumentもまた、Packard Instrumentと同様な α 液体シンチレーションスペクトロメーターと β 液体シンチレーションスペクトロメーターとを組合わせたもの製造した。エネルギー分解能は、よい条件下において約6%であると報告されている。 α からの β - γ の分離は98~95%の範囲である。

上述のスペクトロメーター中に、標準的な β 液体シンチレーションのバイアルが用いられ自動サンプル交換機構が与えられている。状況に応じて使用者が好むシンチレーションカクテルを用いてもよいが、特別な成分のカクテルが最適なエネルギー及び波形分解能のためには必要とされるであろう。

Orderaによって造られた PERALS (Photon/Electron Rejecting Alpha Liquid Scintillation)スペクトロメーターは、特に α スペクトル解析のために設計されたものであるが、30keV以上の β エネルギー用の β スペクトロメーターとしても使用することができる。この装置は、高い α エネルギー分解能と β - γ 除去のために特別に設計された検出器とプリアンプ、リニアアンプ、 β - γ パルス除去のための波形弁別器を含んでいる。装置はエネルギーパルス、時間パルス、ゲーティングパルスを出力する。ゲーティングもまた、 β - γ 妨害のない α エネルギースペクトルを出力するために内蔵されたものである。出力は簡便なマルチチャンネルアナライザーを通して図4-6aに示されるようなスペクトルに表示することができる。また、オプションの電気回路である“data map”を用いそれぞれに分離された α ピークと β - γ バックグラウンドの両方を表示することもできる(図4-6b)。

一般にPERALSスペクトロメーターは、 α パルスのロス無しで β - γ の99.95% (36時間測定の確度の限界) 以上を除去する能力がある。この β / γ 除去の度合いは検出器中に置いたシンチレーター中のブランク、通常の周辺の放射能、周囲の気温、及び遮蔽がない状態での α エネルギー測定範囲に亘って0.001cpmもしくはそれ以下の全装置のバックグラウンドを可能とする。

(5) α -LSスペクトロメトリーの為の試料組成

α エネルギーに直接比例して直線関係にある光出力と α ピーク位置を持ち(図4-6a)、有用なエネルギー分解能と α パルスからの効率のよい β / γ パルスの弁別を備えた、一定で再現性のよい試料組成を得るためには、シンチレータは高い光出力効率を持ち、試料によらず一定の組成でなければならない。試料を水溶液中で水溶性シンチレータに加える際

は、同じ種類の試料による操作においてさえ、一定の試料組成を保つことは不可能である。水や酸、塩は全てシンチレータの光生成効率を変え（クエンチ消光作用）、よって α エネルギーピークの位置をずらしてしまう。図4-7に通常のウランのスペクトルにおけるクエンチングの効果を示す。加えて、シンチレーションカクテルを水溶性にする成分もまたシンチレータの光出力を減少させて、エネルギーと α - β/γ の分解能を妨害するが、これにより α と β/γ パルスの時間分離はひどく減少し、二つの種類のパルスのきれいな分離は不可能となる。 α 放出性核種を、比較的小さな体積の有機相複合体中のシンチレータに加えることにより、適切で一定な試料組成を保つ助けとなり、また光出力に（従ってエネルギー分解能に対しても）有利な試料を作り出すこととなる。しかしながらこのアプローチにはそれ自身不利な点を有している。おそらく最も重要なことはシンチレータに加えることが出来る放射性核種量に限界があることであり、そしてサンプルが加えられる時のシンチレータへの希釈効果であろう。これらの事実が、他の成分が無くかつシンチレータを検出可能な種にはモディファイすることなしに、放射性核種を導入する幾つかの方法を強く論議している。

(6) 抽出シンチレータ

“抽出シンチレータ”の概念は、 α 液体シンチレーションのよい結果を生むための操作には不可欠のものである。抽出シンチレータとは、分析する放射性核種のための蛍光体やエネルギー転換試薬、液-液抽出剤あるいは相間移動試薬を含んだ非水溶性の溶液である。取り扱う放射性核種の有機シンチレータ相への分配は非常に高くなるはずであり ($D = \frac{[\text{METAL organic}]}{[\text{METAL aqueous}]} \geq 100$)、故に水相から有機相への移動は本来定量的になる。抽出は充分に選択的のはずであるから、結果として関心のある放射性核種（あるいは2、3種の放射性核種）のみが抽出される。シンチレータに移されたわずかな物質が放射性核種であろうから、その結果としてシンチレータは、様々な種類の試料からのものでさえ既知の α エネルギーに対する光出力は一定となるであろう。このため、システム（検出器/シンチレータ）はエネルギー校正可能で、クエンチ効果からは一貫して免れるだろう。同じシンチレータを用いて分析された様々な放射性核種は、その適切な α エネルギーを示すチャンネルに現れ、また PSDのために事実上 β/γ バックグラウンドから免れるはずである。故に、シンチレータの核種選択性と再現性のある応答を組み合わせることにより、 α 放出核種の効果的な同定が可能となる。

試料がこのようにして、効率のよい蛍光体と無色の試薬からなる抽出性シンチレータを用いて調製され、そしてその試料が、適切な検出器と電子機器、即ち高いフォトカソード応答性と効率のよい光集積、及び集光システムにおける最小限の屈折率境界面を持つ検出器とともに使用されると、著しく改良されたエネルギー分解能のスペクトルがもたらされる。図4-8は現在使用できる技術による、そのようなスペクトルの例である。

抽出シンチレータの使用により、検出限界と α の定量・同定の精度の両方を妥協させる α -LSにおいて、高くて変わりやすい β と γ のバックグラウンドという大きな問題を事実上取り除くことができる。しかし、検出器を遮蔽し、望ましくない核種を化学分離し、 α ピークから $\beta \cdot \gamma$ 連続スペクトルををグラフ的に、あるいはコンピュータの助けを借りて除去することは、 β/γ バックグラウンドを扱うのに便利な助けではあったのだが、 α スペクトロメトリーのための液体シンチレーションの効果的な利用は、 β/γ 誘起のパルスと α 誘起のパルスを電氣的に弁別し、前者 (i. e., β and γ pulses) を排除する有効な方法が発展して始めて可能となった。逆に、波形弁別のエレクトロニクスは、必要とする明瞭な波形情報を含んだ、定常的なエネルギーパルスをもたらすシンチレータ/サンプルの調製法が発展するまで、効果的に機能しなかったのである。

上述したそれぞれの因子(シンチレータ/サンプル組成、サンプルサイズ、検出器の形状/光学機能、及び検出器の増幅機能/時間計測のエレクトロニクス)が、良いエネルギーと時間分解能に寄与し、そして、それぞれの影響は望ましい結果を得るために存在しており、最適化しなければならないことに注目して欲しい。

抽出シンチレータの効率の良い性能発揮のためには、使用する成分は高い純度で精製されるべきであり、これによってその光生成/転移能は最大化され、抽出性は良好となる。抽出剤は高分子量、親油性の有機化合物で、ほとんどのものは高真空蒸留や金属イオン複合体として沈殿させるなど、特殊な生成法を必要とする。溶媒は通常シンチレーショングレードのトルエンが使われるはずである。エネルギー転換試薬が効率的な光生成に必要であり、溶液はこのために特別に精製されたナフタレンでほぼ飽和に達しなければならない。調整済みのシンチレータが利用可能である。

(7) 分析への考慮

ちょうど、適切な分析手順として満足のいく電着版が板状試料計測法に必要なように、 α -LSにとっても適切な試料をつくる手順が必要である。しかしながら、通常、PERALSの

試料を作る手順の方が、板状試料の調製に必要とされるものより簡単で速い。抽出シンチレータとPERALSのスペクトロメータを用いた α スペクトロメトリック法は“PERALS method”の手順と呼ばれる。以下の手順はPERALSのスペクトロメータの使用のために開発されてきたものであるが、他の α -LS計測法の試料調製についても利用できることがわかるだろう。

ここで述べられる手順は定量的であるように設計されており、それは Oak Ridge National Laboratory及び他の研究所によって証明されている。PERALSの手法において通常化学回収率が確立されているその技術は、既知の試料の分析である。しかしながら、同じ放射性核種や同じ核種の同位体のスパイクもまた可能である。

(i) 試料の溶解

正確な α 解析をするための処理の大部分において、固体試料を溶液に置き換える必要がある。シンチレータ中に固体試料を直接導入することは、アルファ放射能の存在の定性的な情報以上のものは与えず、波形弁別の使用もやっとならざるを得ない。測定や隠れている因子(masking factor)を用いてさえ、信用のおける定量的な値をなんら示さない。かくして、正確な結果を得るためには、試料を溶液中に完全に移さなければならない。不幸にも、固体試料を完全に溶解させることは困難で分析化学にとって悩みの種であった。しかし、ここ数年では容易で高効率な幾つかの方法が開発されてきている。

もし融解法を好むならば、この技術はC. WSillらにより科学的な手法にまで高められて来ている。幾つかの文献がこれらの手法をことこまかに記述している。

固体試料を溶解させる本当の大進歩は、Bureau of Minesの職員によってなされた。有機物及び無機物中の試料は、硝酸、塩酸、フッ酸の混合物中で圧力をかけた状態で溶解する。反応は、上部に圧力除去弁がついたテフロンバイアル中で圧力一定下で行なわれる。改良されたマイクロウェーブオーブンが熱源として用いられる。試料1~2グラムを約20分で溶液中に置き換えることができ、幾つかの分離した試料を同時に溶解させることも可能である。Parr Instrument Company は、普通のオーブンで加熱する(1時間処理)テフロンを内張りした耐圧容器や、一般的な料理用電子レンジで加熱(30分処理)が可能なものを製造した。ノースカロライナ州のMatthewsにあるCBM corporationは、耐圧容器から漏れた場合にガスを除去するシステムを有するこの溶解法のために特別に設計された市販用マイクロウェーブオーブンを製造した。上述した方法は完全に数分のうちで固体試料を溶解する。かくして、以前そうでなかった多くの操作を実用化せしめた。

植物、動物組織及び有機成分を含む他の試料は、有機物質を酸化する手法を用いることが必要である。500℃ではビーカー中、高温においてはセラミックまたは金属るつぽに試料を入れての炉の中で燃焼するのは古典的なアプローチの一つである。しかしながら、湿式酸化法も有効であり、時々これは望ましい二者択一の一つである。この処置は硝酸と30%過酸化水素水を用いて成し遂げることができる。しかしながら、少量の過塩素酸2水和物（2水和物はその一般形）と硝酸の使用はより効果的であり、ある簡単な注意を払っていれば安全である。それは、

- (a) 少量の過塩素酸を使うこと。大部分の試料では使用量は1~2mlである。
- (b) 茶色や黄色をもたらす、有機成分による全ての可視領域の着色が消失するまで硝酸を5~10倍過剰量に体積を保つこと。
- (c) 無着色溶液が得られたときのみ、過塩素酸2水和物の白色の蒸気が現れるまでサンプルの温度を上昇させる。
- (d) 過塩素酸蒸気を排気するときは全面の金属製過塩素酸用のフードやろうとを反対にしたものを通してウオーターアスピレーターに接続されたスポットフードを用いること。

過塩素酸2水和物の使用法や安全な扱い方に関しての、特性記述の優れたものやつりあいのとれたものがGPS化学カタログ中に見ることができる。硫酸は、その沸点が338℃と過塩素酸2水和物の203℃より高いために、過塩素酸を置き換えるために用いられる。

(ii) 溶媒抽出の関連

一つの「抽出シンチレーター」は、抽出剤とシンチレーターの両方からなる。溶媒抽出系では、分析対象物もしくは興味のある物質は、一つの相（通常は水相）からもう一つの相（通常は有機相）に移される。二つの相は混ざりあわず、適当な状態下では、一つまたはそれ以上の化学種の相移動が、有機相/水相の界面を通して起きる。二相を含む容器を穏やかにかき混ぜることによる表面積の拡大は、相平衡を素早く、通常は一、二分で達成させる。そのような抽出系では、平衡時の二相間の金属Mの分布は、分配係数 DM (式1) で表される。ここで $[M]$ は金属の濃度を表す。

$$DM = [M]_{org} / [M]_{aq} \quad \dots (式1)$$

このことは、いかなる相の比 V_{org}/V_{aq} においても等しい。しかしながら、 DM は濃度比であり、回収された金属の全量も、相の比に依存するというをおぼえておくべきであ

る。もし、回収された全金属の比を回収係数FRとよぶなら、その関係(式2)は全有機相/水相の金属比を記述する。

$$FR = DM (V_{org} / V_{aq}) \quad \dots (式2)$$

有機相に移された金属の割合は(式3)で表され、

$$\%R = 100 \times \{V_{org} [M]_{org} / (V_{org} [M]_{org} + V_{aq} [M]_{aq})\} \quad (式3)$$

さらに(式4)の形に簡単にできる。

$$\%R = 100 \times \{DM / (DM + V_{aq} / V_{org})\} \quad \dots (式4)$$

それゆえ、もし、DMが1000 (ありえない値ではない) で、 V_{org}/V_{aq} は1だとすると、FRも1000になり回収率は、 $100 (1000 / (1000+1))=99.9$ になる。しかし、もし、 V_{org}/V_{aq} が1/100 もしくは1/1000だとすると回収率はより少なくなる。1:100の(有機相/水相)の比に対して90.9%で、もし相の比が1:1000だと、回収率はたったの50パーセントになる。これらの簡単な計算は溶媒抽出の分析的適用における相比の重要性を明らかにする。

分配係数もまた、有機相と水相の組成に依存するという事は強調されるべきである。もしいずれかの相の構成が変えられたら分配係数は変化する。分配係数と相の比、抽出シンチレーターを用いた引き続く分析手順を修正したり、進めていくよう気配りすることは明らかである。

(8) 操作手順

(i) セルロースフィルター上のウランのアクティビティー

きれいなものであれ、汚れているセルロースエアフィルターであれ、容易に溶液中に入れ得、以下のように分析される。ただし、必ずラグファイバーもしくはクレイフィルターを含まないフィルターを用いるよう確認すること。これらの物質を含むフィルターもしくはガラスファイバーフィルターはSiを除去するためのふっ化水素酸を用いた溶解を含む予備段階を必要とする。半径2インチまでの濾紙は、2ドラム(約3.6グラム)のねじぶた付きのホウケイ酸塩ガラスのバイアルにいれ、500°Cのオープンもしくは炉で2時間加熱後、蓋をあける。約50個のバイアルは5×7の受け皿に適するだろう。紙は今は、小さな灰の固まりに減少しているだろう。取り出してして冷却した後2~5滴の濃硝酸、3滴の30%過酸化水素、1滴の飽和硫酸アルミニウム溶液をバイアルに加える。バイアルを、その後200度まで加熱し、硝酸を除去する。残っている固体は1molの硫酸ナトリウムと0.01molの硫酸に再び溶解する。測定される分量のETRAC URAEX抽出シンチレーターをその後バイアルに

加えると、2相は2~3分後に平衡になる。相が分離してから、有機相の1.0mlを、PERALSスペクトロメーターで測定する。 ^{232}U スパイクの付加が化学収率の決定に用いられるが、この操作の結果は一般的に定量的である。それゆえ得られた α スペクトルは、そのウランが天然なのか、劣化なのかということを決定できる。分析の結果は、濾紙の直接係数や蛍光分析法よりも非常に正確である。表の2と3にPERALS法を用いたウランに対するこれらの分析法の結果を比較する。

(ii) 環境の物質中の全 α

液体試料を除くと、環境試料は土壌や植物もしくは動物組織が多い傾向となり、これら試料からの透明な完全な溶液を得るには大変な困難と出合う。しかしながら、 α 放出元素の多くは天然の有機、無機物質と強い錯体を形成するため、試料を完全に溶液中に移すことは重要である。この注意が、 α 分析のPERALS法とプレート法両方の試料に等しく適用される。

硝酸溶液中の試料に、0.5gの過塩素酸リチウムと1.0から1.5mlの0.1mol過塩素酸を加える。ヒートランプ下もしくは160°Cのアルミニウムブロック中で試料の沸騰がおわるまで蒸発させる。最初に過塩素酸の煙があらわれる。もし実験室の決まりで過塩素酸が禁じられているときには、過塩素酸の代わりに硝酸と30%過酸化水素を試料を処理するために用いる。しかしながら、硝酸/過酸化水素を用いた湿式酸化は硝酸/過塩素酸を用いたものよりも時間がかかる。ビーカーを冷却し5~7mlの水を加えてどろどろした（もしくは固体の）残渣を溶解する。溶液のpHを測定する。pHは2から3.5の間になければならない。溶液を小さな分液ロウトに移し、測定される分量、1.2から1.5mlのETRAC ALPHAEXシンチレーターを加える。抽出操作は、ラジウム、ラドンを除いて α 放出核種のほとんどをシンチレーターに移す。ランタニドもまた抽出される。PERALSスペクトロメータにおける計数は、通常放射性核種の正確な定量だけでなくそれらの同定も可能にする。手に入れる最も良い α 分解能はこの手順を最高に価値あるものにするため必要である。

(iii) ウランとトリウム

上記の様な溶液のサンプルを用いて、硫酸と硫酸ナトリウムを加えpH1~2の硫酸塩形に置換する。全硫酸イオン濃度は0.5~1.0Mでなければならない。一段目のETRAC URABEXへの抽出は、トリウムを水相に残しながら選択かつ定量的にウランを抽出する。ETRAC

THOREXを用いての同一の水溶液からの二段目の抽出は、トリウムを水相から取り去る。他の数種のイオンも抽出されるが、 α の計測に妨害とならない。THOREXはウランも抽出するため、抽出はこの順序でなければならない。各々の有機抽出シンチレーター溶液を採取し、PERALSスペクトロメーターで測定する。多くの磷酸塩系でないサンプルでは、ウランは水酸化マグネシウムの共沈あるいは他の方法で濃縮してから、URABEX抽出シンチレーター中に硫酸塩系から抽出することが出来る。 ^{238}U と ^{234}U が放射平衡にある天然ウランは、これらの放射性同位体によるダブルピークを示すであろう。しかしながら、自然の過程において水中あるいは堆積物中の ^{234}U が濃縮したり、人為過程が ^{234}U 、 ^{235}U を濃縮させてきたりした為、現在環境中にあるウランがすべて“天然ウラン”であるとは限らない。ガス状の拡散、あるいは遠心分離作用でウランが ^{235}U を高濃度に行っているならば、 ^{234}U は ^{235}U よりも効率的に濃縮されるので、スペクトルは ^{234}U の顕著なピークを示すであろう。濃縮工程で残渣からのスペクトルでは、 ^{238}U の際立ったピークを示すであろう。

(iv) リン酸塩中のウランとトリウム

例えば肥料、骨、歯、動物組織、汚水などといった様々なリン酸塩を含む物質から、ウランとトリウムは分離することができる。試料は溶解され、硝酸あるいは硝酸-過塩素酸塩溶液に置換される。この溶液に、充分な量の硝酸アルミニウムをリン酸塩と錯体を形成させるよう加える。そしてこの溶液を、0.1M濃度のトリオクチルホスフィン酸化物 (TOPO) と接触させる。ウラン、トリウムとも両方有機相に抽出される。これらの系の分配係数 (有機相/水相) は図4-9に示してある。ウランとトリウムは有機相から、等量の0.5M炭酸アンモニウム溶液で逆抽出される。炭酸アンモニウムは蒸発させられ、逆抽出中に水相に紛れ込んだ有機物も少量の過塩素酸を含んだ濃硝酸による分解、あるいは30%過酸化水素と共に硫酸を加えることで分解される。この透明な溶液を硫酸の蒸気が出るまで二回煮詰めることで、硫酸塩系に置換する。そして、先に述べた手順でウランとトリウムの抽出が行なわれる。

(v) ポロニウム

ポロニウムの放射性同位体 (通常は ^{210}Po) は、簡便な自動析出法を用いて正確に分析することが困難であった。したがって、ポロニウムについていかなる分析も行わない慣例が起こってきた。 ^{210}Po は、ウランの娘核種であり、ほとんどの肥料中に高濃度で存在しており、多くの植物によって濃縮され、そして一般的なテトラオキサイドが体脂肪に溶解

するので、ポロニウムの分析が行なわれないことは大変に不運である。PERALSを用いたポロニウムの分析は、簡便で迅速で正確である。 ^{210}Po は、 ^{238}U の壊変系列の末端付近で、そして分析がより困難な ^{210}Pb や ^{210}Bi の存在の代替として使うことができる。手順は次に述べるようなものである。溶液のサンプルを用いて、3~5mlの濃リン酸を加え他の酸を取り除くために蒸発させる。このリン酸溶液を3~5mlの純水で小さな溶媒抽出容器に移す。1mlの0.1M塩酸を加え、1.2~1.5mlのETRAC POLBX抽出シンチレーターを測り取る。抽出平衡曲線を図4-10に示す。ポロニウムの移行は比較的遅いので、抽出平衡時間は30分間とし、1.0mlをPERALSスペクトロメーターで計測する。必要な化学操作が最短なので、この定量の確度は±1%以上が容易に得られる。

(vi) プルトニウム

プルトニウムの化学的な分離と分析は、ことによると他のどんな元素よりも難しいかもしれない。しかし、この方法を使うと、ネプツニウムを除く他の全ての元素から、プルトニウムを化学的に分離することができ、 $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ とのエネルギーの違いで ^{237}Np のピークが分けられるので、定量的に計測を行える。この手順での最初の抽出は、0.3Mトリオクチルまたはトリラウリルアミン硝酸塩 (TANO) トルエン溶液である。手短に言うと、操作は試料溶解、溶液調製、プルトニウムの酸化状態の調整、予備的なプルトニウムの分離と濃縮、予備抽出からのプルトニウムの逆抽出そしてシンチレーター中へのプルトニウムの再抽出である。

プルトニウムは溶液中に同時に+3、+4、+5、そして+6の酸化状態で存在している。これらの酸化状態は、それぞれ大変異なった化学挙動を示す。その為、定量的な分離がなされる前に、行おうとしている分離に適した酸化数にプルトニウムの酸化状態を調整しなければならない。4M全硝酸塩濃度で1M硝酸のサンプルに、50~100mgの硫酸第一鉄を加える。ビーカーを揺すり、室温までサンプルを冷やす。+3の酸化状態に、もはや全てのプルトニウムが還元されている。今度は50~100mgの亜硝酸ナトリウムを加え、揺り動かしながら穏やかに加熱する。この時点で全てのプルトニウムは+4価の酸化状態となっているはずである。緊急の場合以外はこの状態で放置してはならない。プルトニウムはゆっくりにだが確実に+3、+4、+5そして+6価の酸化状態へと不均化反応を起こす。試料を適当な大きさの分液ロートに移し、試料体積の1/4の第3級アミン硝酸塩（プライマリーアミンであってはだめ）を加え、手作業で5分間穏やかに攪拌する。相が分かれるまで放置し、下部の水相

を取り去る。

硝酸塩系の水相と第3級アミン硝酸塩系の有機相との分配係数は、Pu(IV), 4000; U(VI), 1; Fe(III), 0.01である。他の全ての元素はこれらよりさらに小さい分配係数である。有機相は今度はその体積の1/4以上の0.7M硝酸で2分間振り合わせることで洗われる。これを2回繰り返す。この作業で、プルトニウムと一緒に抽出された鉄とウランが取り除かれる。他の核種の分析を行いたいのなら、最初の抽出の水相と2回の洗液を合せてウランや他の元素の分析に使うことができる。有機相は、もう他の元素をほとんど含まずに、プルトニウムの全量を含んでいるはずである。

プルトニウムあるいは抽出された他の金属は、過塩素酸を用いて、アミンを含んだ有機相からストリッピングすることができる。小さなガラス容器（分液ロートかバイアル）にプルトニウムを含んでいる有機相を移し、アミン硝酸塩と反応するだけの充分量プラス僅かに過剰の過塩素酸と数10mgの過塩素酸リチウムを含む溶液を加える。アミン硝酸塩、過剰の過塩素酸、過塩素酸リチウムによって、元々含まれていた硝酸と共にプルトニウムの全量がストリッピング水溶液に戻される。過塩素酸の蒸気が出るまで、溶液を蒸発させる。溶液は透明でなければならない。ビーカーの内容物を5~7mlに希釈する。溶液のpHは1.5~2.5の間にする。もし低いようだったら、溶液を沸騰させもう少し余計に過塩素酸を蒸発させる。ストリッピング作業後の有機相は、過塩素酸を含んでいることに注意しなさい。過塩素酸塩は水酸化ナトリウム、水酸化カリウムあるいは水酸化リチウムで有機相から逆抽出できるでだろう。

澄んだ過塩素酸塩ストリップ水溶液を小さなバイアルまたは遠心管あるいは分液ロートになるべく少量の水で移し、1.2~1.5ml測り取った ALPHAEX抽出シンチレーターと混合平衡にする。シンチレーター溶液の1mlを測り取り、10×75mmの試験官に移し、酸素を含まないガスでパージし、PERALSスペクトロメーターでプルトニウムのスペクトルを得る。有機相を2-エチルヘキサノールで2倍容にした後に、アミン抽出物を10mlの1N硫酸/1M硫酸ナトリウム溶液で5分間接触混合させ逆抽出することができる。ストリップ水溶液の最初の量(5~15ml)を2回3~4mlの洗浄と合わせて用いるべきである。5~7mlの透明な硫酸の逆抽出水溶液を、十分な量の水を用いて小さな抽出平衡容器に移すので、最終的な体積は8~10mlになる。計り取った1.2~1.5mlのTHOREXシンチレーター中に抽出する。抽出シンチレーターについては上述したように処理しなさい。

(vii) ラジウム

固体試料を用いて、表面障壁検出器、ガス比例計測管、硫酸亜鉛（シンチレーション）薄膜を用いた様々な分析手法がラジウム分析に対して使われてきた。ラジウムとラドン以降の娘核種とが永続平衡にあるサンプルでは、ラジウムの娘核種の主に ^{214}Bi の γ 線計測が、ラジウムの検出にしばしば用いられてきた。リチウムドリフトゲルマニウム半導体を用いたこれらの計測と、ルーカスセルへのエマネーションとの比較が報告されている。ラドン計測がラジウムの定量にしばしば用いられてきた。ルーカスセルに加えて、不水溶性のシンチレーター中にラドンを溶解させ β 液体シンチレーションカウンターを用いての液体シンチレーション計測が定量に用いられてきている。ラドンのみの場合とラドンと娘の場合の両方とも定量に使われている。マクロ環状化合物（クラウンエーテル）のイオンサイズ選択特性を利用することで、ラジウムに対して選択的な液体抽出系が開発されている。この抽出系はそれぞれバリウムについて9.3、ストロンチウムについて12.3、カルシウムについては58倍のファクターでラジウムを効率良く分離する。

似たような元素からラジウムを分離するこの能力は、ラジウムの直接分析を実用的にした。さらに、分析法として液体シンチレーションを選択することで、水相から不水溶性の有機抽出シンチレーター（RADABX）中へラジウムを一段階の操作で移行させることが可能となった。次いでラジウムはPERALSスペクトロメーターで直接計測出来る。この分析操作は、ラジウムに対する以前の操作に比べると、単純かつ正確である。溶液中にラジウムのみ、またはラジウムと少量の他のアルカリ土類、アルカリ金属のみを含む水試料は体積を（蒸発で）減少させ、pHを調節し直接に抽出シンチレーター中に抽出できる。

他の妨害イオンを含むような試料に対しては、 ^{133}Ba の既知量と10mgのバリウム担体をスパイクした後の溶液に、最初の分離と予備濃縮としてバリウム/ラジウム硫酸塩共沈をすすめる。沈殿を飽和炭酸カリウム溶液を加え加熱することで、炭酸塩に置換し、単離したバリウム/ラジウム炭酸塩を希酸に溶解する。この溶液のpHを9~10に調製し、ETRAC RADABX抽出シンチレーター中に選択的に抽出する。抽出自身は定量的で、共沈、変換での化学的なロス ^{133}Ba の γ 計測で補正される。しかしながら、これらの操作を注意深く行い、方法を改良することで、ラジウムの回収率をさらに向上させることが可能である。PERALSスペクトロメーターで計測されたとき、ラジウムは最初のうちは存在する ^{226}Ra や ^{224}Ra に対して、それぞれ単一の α ピークを示す。この両ラジウム放射同位体の娘核種の α ピークはそれらの成長を待てば見られるようになる。この定量における相対誤差は、通

常の計測誤差のもとでは、通常は±5%以下、もしくはそれ以下に達せられる。この方法の確度と再現性は、計測統計と測定試料の調製での体積誤差によって決まる。

サンプルが調製された直後に測定された²²⁶Raの典型的なスペクトルを図4-11に示す。ラジウムがその娘核種と放射平衡にあるスペクトルは図4-6に示す。上記の方法、あるいはその変形は、いくつかの研究室において成功している。ラジウムのピークは積算され、サンプル中のもとのラジウム濃度は¹³³Baの最初に導入された値とバリウム/ラジウム炭酸塩の溶解後の値との比を用いて計算される。ラジウム回収率のフラクションは次のようになる。

$$fr = \text{cpm (Bar)} / \text{cpm (Bai)}$$

ここで、Bar = 回収されたバリウム

そして、Bai = バリウムの初期量

そして、ラジウムの毎分あたりの壊変に補正された回収率は

$$\text{dpm (Rarc)} = \text{cpm (Ra)} / fr \text{ (本文では dpmとなっているが cpmの間違い)}$$

もともと抽出シンチレーターの容積が1.0mlで、そして1.0mlが計測されたのなら、もともとの母液中のラジウムの毎分あたりの壊変と、抽出に使われた抽出シンチレーターのものとは次のようになる。

$$\begin{aligned} \text{dpm} &= (\text{Rarvc}) = \text{回収率とシンチレーターの容積補正されたラジウム} \\ &= \text{dpm (Rarc)} \times \text{使用された抽出シンチレーターの容積} \end{aligned}$$

シンチレーター中へのラジウム抽出は、100以上の分配係数を持ち、したがって定量的である（リファレンス37の図4-1を見よ）。dpm(Rarvc)の量は、もとの試料中のラジウムの全量を表すことになる。適当なファクター（1pCiに対しては2.22）ともとの試料物質の容積mlで割ることで、この値はもとの試料中のラジウム濃度を表すことになる。

既知量の放射能を含む試料は、標準値との優れた一致ならびに同一のセット内では優れた再現性を示した。上述の方法の確度と再現性は、計測統計と測定試料の調製における体積誤差にのみに依存している。このようにして、他の計測法に対する γ あるいは α 線放射体の標準としての使用するために、PERALSを用いたラジウムやその他の α 放射核種の定量が可能になってきた。

(9) 他の手順と可能性

(i) グラスファイバーフィルター上の試料の計測

この応用は、調製操作を最短とし、数多くの定量的なデータを生み出す。この方法を成功させるためには、フィルターが比較的きれいでなければならない。すなわち、濃い色の物質がついていてはいけない。PBRALSのエネルギーと時間の最大の分解能を得ることは不可能になる。しかしながら、PBRALSスペクトロメーターを使用しないと、この手順は十分な情報を得ることができない。

グラスファイバーフィルター紙を計測セル中に置き、ETRAC NONEXあるいはALPHAEXシンチレーターを1ml加える。しばらくの間水流アスピレーター圧までセルを減圧し、取り込まれている空気を除去するために乾燥したトルエンで飽和したアルゴンガスを通す。次いでPBRALSスペクトロメーターの様な α -LSで測定する。 α と β 事象の分離は概ね有効であり、 α エネルギーのスペクトルは α 放射体の同定には十分な程度には通常分解されている。 α で汚染された表面と、清潔なフィルターとの選別がこの方法でうまく行なわれた。この場合には定量的な測定を考えられない。定量的な検出にまでアプローチしたいなら、 α 壊変エネルギーがシンチレーターに利用できない細孔中に存在する α 放射体の量の見積もりが必要になる。上記の手順にあるような、フィルターの溶解と放射性核種のシンチレーター中への抽出は α 放射体の正確な定量として推奨される。

上に概要してきた方法は、実試料を用いて研究室で実践され、優れた結果を示した。以下のものは、ある特定の元素についての液液抽出化学の一般知識に基づいた幾つかの概念的な操作法である。ほとんどの場合、データは操作の一部として存在するが、実験室の条件下で実試料を用いて全操作が行われたことはまだない。

(ii) PBRALS法による水中ラドンのサンプリングと分析

この方法は現在フィールドテストが行われている。初期の報告によると、結果は良好である。この方法は契約により開発されたもので、現時点では詳細は所有権側の制限下にある。基本的には、それはラドンを吸収なしで水を捕集する特別な容器が用いており、その容器中で空気と全く接触すること無しに抽出平衡にすることが出来る。試料は非水溶性のRADONSに抽出され、酸素を遮断した状態で特別の計測セルに移され、計測される。

(iii) 生化学分析への適用

幾つかの予備的な研究は、尿のプルトニウムに対する分析においてPBRALSが上手く適用できたことを示している。この研究は、次のことを示している。通常用いられるリン酸塩

の共沈が全てのプルトニウム分析に対して用いることはできない。通常のリン酸塩共沈の沈殿、上澄ともにPERALSで分析を行い、プルトニウムの約半分のみが沈殿に吸着するにすぎないことが明らかになった。通常のリン酸塩共沈の湿式灰化と試料全体の蒸発乾固/湿式灰化とを比較した。蒸発乾固/湿式灰化を組み合わせたものは、プルトニウムのほぼ完全な回収を示した。

未発表の付加された研究が尿のウランとトリウム、そして可能ならばプルトニウムと他の α 放射体の分析が極めて簡便に行えることを示している。50~100mlの尿を蒸発乾固するか、湿式灰化する。試料は硫酸塩に変換される。硫酸アルミニウムをリン酸の複合体に加え、試料は直接シンチレーター中に抽出される。

ほぼこの手順で行なわれた幾つかのテストで、ウランとトリウムに対して良い結果が得られた。マーシャル島民の歯のプルトニウムについての分析が優れた結果を示した。歯は硝酸に溶解させられ、上記のプルトニウムの分析手順が適用された。歯一本あたりに対してピコキュリー量のプルトニウムが検出された。

アメリカウムを注入されたラットの分析が成功し優れた物質収支の結果を示した。この研究は、テネシー大学のComparative Animal Research Laboratoryの研究者によって行なわれた。ラットは解剖され、様々な細胞が湿式灰化され、ALPHAEXシンチレーターを用いて抽出された。このグループの他の人員によって行なわれた他の研究は、RIを添加された食品あるいは（直接注入により）胃管へ摂取されたときに、ラット中に蓄積するアメリカウムとプルトニウムの量を調べることであった。その研究は、プルトニウムとアメリカウムの1%以下が動物中に残留し、残りは排泄されることを示した。この研究がなされた委託側の意向に合致しなかったために、この研究についての出版物はない。

(iv) 考慮すべき利用

PERALSは、非常に正確なアルファスペクトル分析を満足させるために、開発されてきた。この方法はまた非常に感度が良いことが証明されており、現在、非常に高感度であるという点に一番関心が寄せられている。著者は、たびたびある者が“この方法は実に迅速で容易だ。ほとんど特に工夫を凝らさなくても、 $\pm 10\%$ の精度が得られる。”と称賛されていて、驚かされる。この方法は $\pm 10\%$ 以上の精度の達成が可能である。我々が最初に α -LSスペクトロメトリーを用いた時には、 $\pm 1\%$ の良好な再現性を探そうとした。他のアルファの計測法と比較すると、PERALSは50から100倍も、より正確な回答を与える。この容易

さが、PERALS法を ^{235}U 、 ^{239}Pu そして ^{233}U の重量分析と対抗出来るものとしており、比色や蛍光や滴定分析よりずっと進んだ分析法にしている。電着板 α 計測よりもPERALSが優れているもう一つの点は、電着板上に固定出来る ^{239}Pu 、 ^{235}U そして ^{232}Th の様な低強度の放射核種の量を数倍捕獲することが出来るということである。この点が、PERALSの高検出効率と組合わされて、計測時間を電着板計測で必要とされるものの何分の一までに短縮することが出来る。

(v) 河川のモニタリング

連続的な溶媒抽出処理の技術はよく開発されてきており、河川の流れの簡便なサンプリングに適用することができるので、その結果として抽出シンチレーターを連続的に汚水流に接触させておくと連続的あるいは間欠的にPERALS検出器で計測できよう。このような組み合わせは他の計測法よりも感度やコストそして簡便さにおいて有利な点をもっている。

(10) 結論

PERALS法に組み込まれている α 液体シンチレーションスペクトロメトリーが信頼に足る、正確で比較的容易な試料中の放射性核種の定量法であることを示してきた。これは、公認されるような信頼に足る α 放射性核種の定量法となる可能性を持ち、多くの場合、他の計測法より大変優位な点を持っている。Oak Ridge National Laboratory、Savannah River Laboratory、TMA/BerlineそしてFlorida State Universityで繰り返しこの方法の有効性が証明されている。

この観点において、 α -LSの広い公認に対して大きな障害は、ルーチン分析を必要としている多くの企業や政府団体がEPA公認法に規定してきたことや、新しい方法に公認し直す事が非常に困難である事である。PERALS法の公認が、現在積極的に要請されている。

Dedication

この論文は、1992年2月27日に亡くなられたGerald N. Caseの思い出に捧げられる。ここに報告された研究の大部分はGerryなくしては達成されなかったであろう。PERALSはGerryの情熱を注いだものであった。彼はこの方法の最も優秀で最も熱心なセールスマン

であった。彼はまた、一流の研究者であり、魅力的な友人でもあった。我々Gerryを知る者は彼のことを決して忘れないであろう。

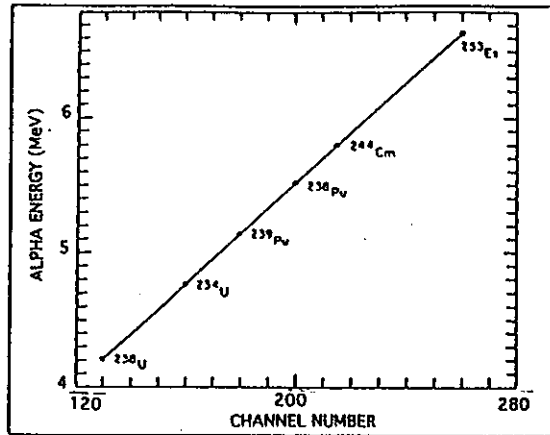


図4-1 α 線エネルギー(MeV)とパルス波高値(チャンネル数)との関係

α エネルギーとパルス波高分析器でのチャンネルの関係。全ての既存のシンチレータについてこの直線性が見られた。シンチレータの組成を変えるとこの関係が変化する。故に異なるシンチレータからのスペクトルは比較できない。

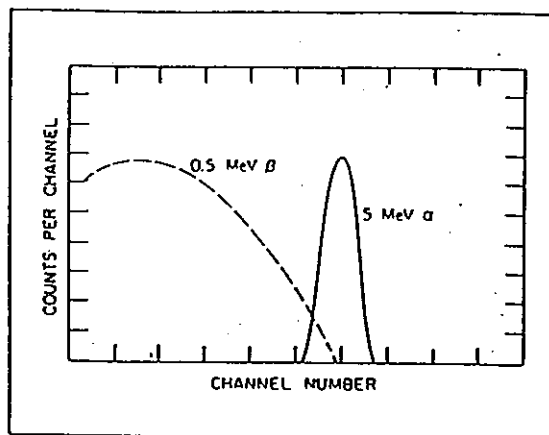


図4-2 α 線及び β 線の液体シンチレーションスペクトル

同じシンチレータ中での5.0MeVの α 線と0.50MeVの β 線の比較。光生成効率のこの差が α -LSで出会うほとんどの問題に掃せられている。

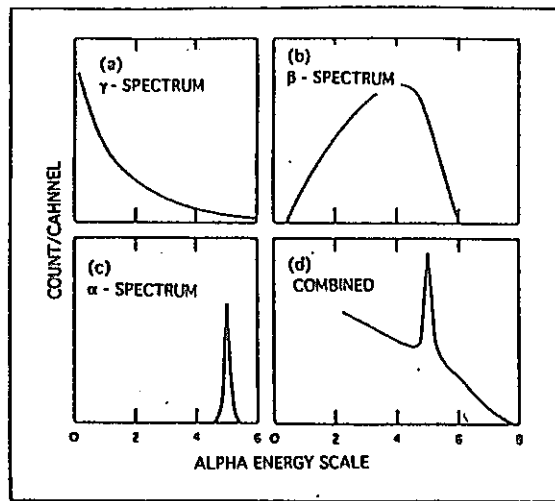


図4-3 α 、 β 、 γ 線による液体シンチレーションスペクトル
液体シンチレーション系における α 、 β 、 γ -誘起のスペクトルの関係。

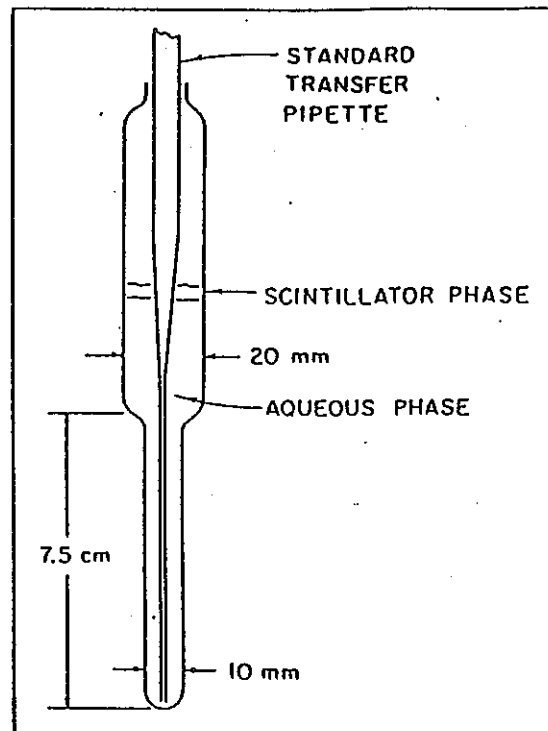


図4-4 抽出平衡/計数容器の組み合わせ

抽出平衡/計数容器の組み合わせ

水溶性試料と抽出用シンチレータ 1.0ml をチューブに移し、バスツールピペットを通したアルゴンの泡で攪拌する。水相を同じピペットを通して引きぬく。それから2、3分アルゴンを試料に通し、その後、ピペットを2、3滴のシンチレータで洗う。ピペットを取り出し、チューブにキャップをして、試料を計測する。PERALS スペクトロメータの試料チャンバーに取り付けた大きくした蓋は、この容器を挿入し計測することが可能である。

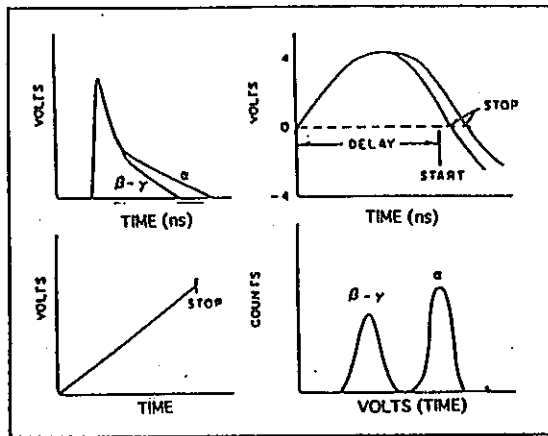


図4-5 液体シンチレーションスペクトロメトリーにおける時間関係

液体シンチレーションスペクトロメトリーにおける時間関係。この時間差を利用する正確な電気回路の手法は様々であろうが、効果的な弁別のためには、十分な時間分解能を与えることがシンチレータに必要である。

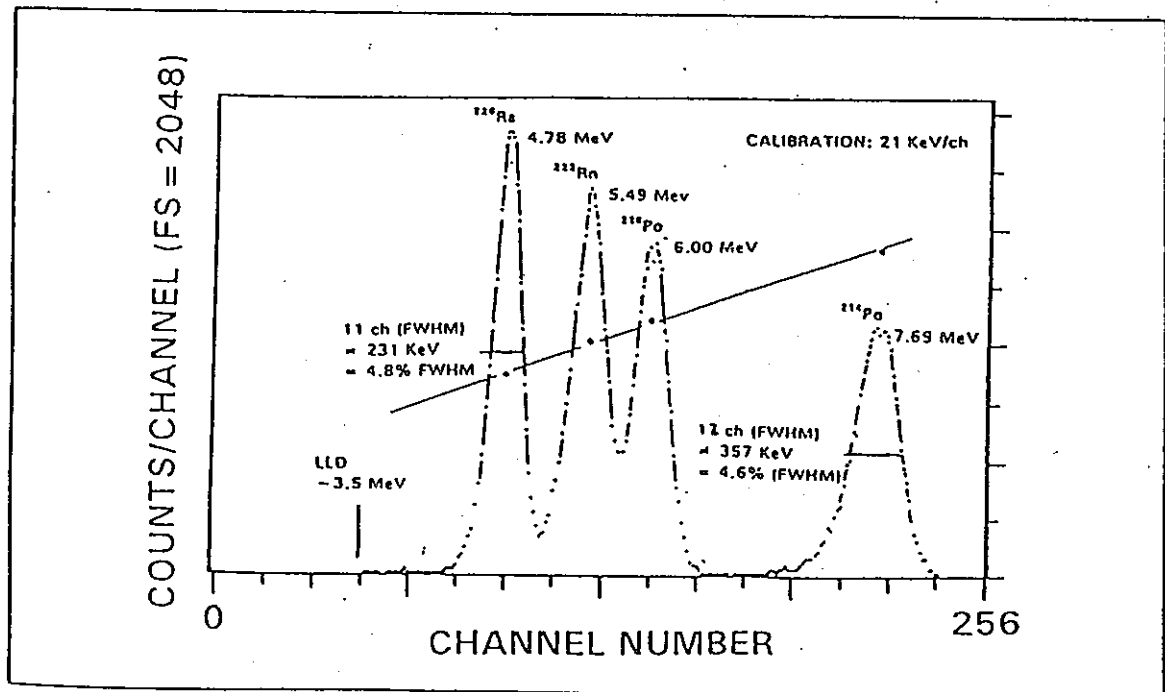


図4-6a PERALSスペクトロメータから得られた ^{226}Ra とその娘核種のスペクトル
通常のMCAを取り付けたPERALSスペクトロメータから得られた ^{226}Ra とその娘核種のスペクトル。

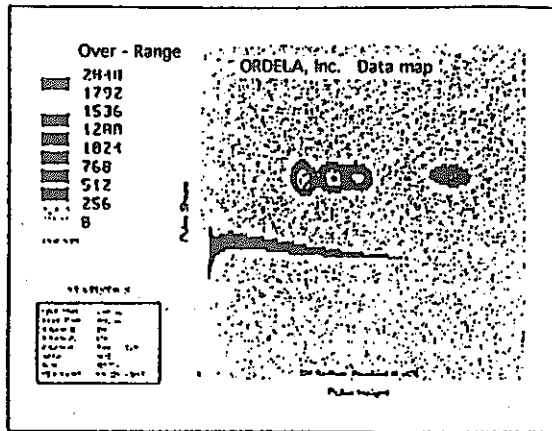


図4-6b PERALSデータマップ付PERALSスペクトロメータによる ^{228}Ra とその娘核種のスペクトル
 PERALS データマップを備えた PERALS スペクトロメータから得られた ^{226}Ra とその娘核種のスペクトル。

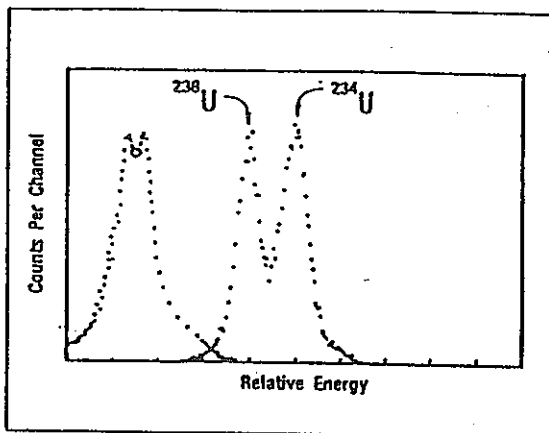


図4-7 天然ウランのスペクトルへのクエンチングの効果
 天然ウランのスペクトルへのクエンチングの効果。エネルギー分解能と時間分解能の両者が影響を受けている。

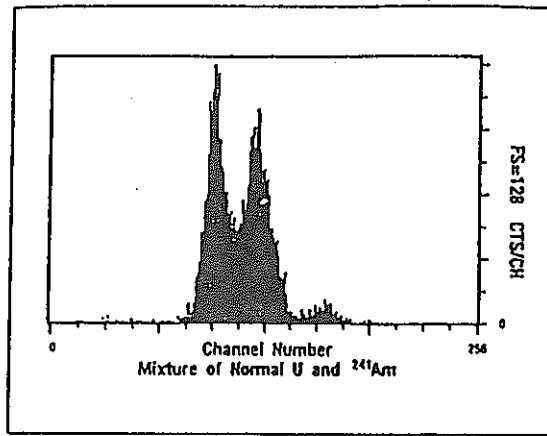


図4-8 ALPHAEX抽出シンチレータで得られたアメリシウムと天然ウランのスペクトル
 PERALS スペクトロメータと ALPHAEX 抽出シンチレータで得られたアメリシウムと天然ウランのスペクトル。

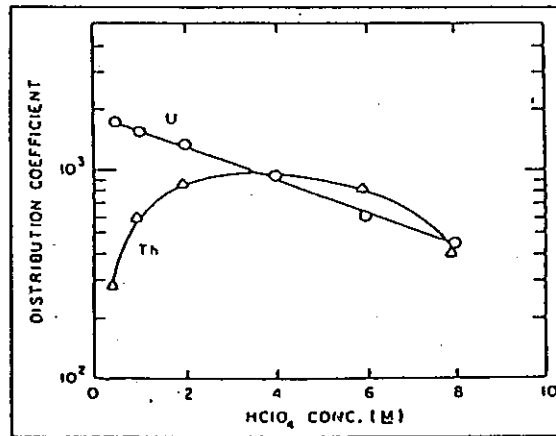


図4-9 ThとUのTOPOへの分配係数
 水溶液のPHの関数としてのThとUのTOPOへの分配係数。

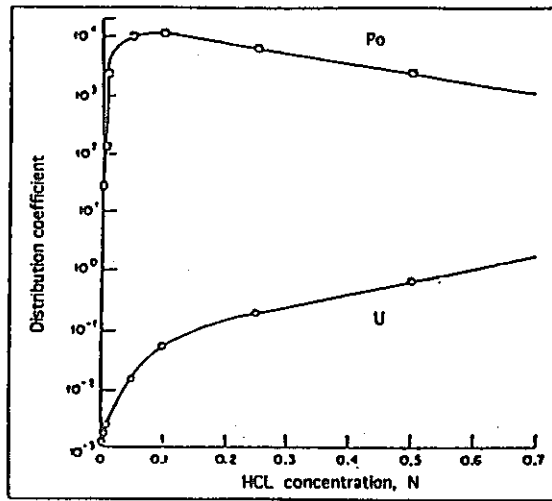


図4-10 POLEX抽出シンチレータによるポロニウムの抽出平衡曲線

7.5M リン酸からの 1.0M $\text{Al}(\text{NO}_3)_3/\text{HClO}_4/0.01\text{M}$ HCl を POLEX α 抽出シンチレータへ混合したものへの HCl 濃度の関数としたポロニウム抽出の抽出平衡曲線。平衡時間はそれぞれの点で 30分とした。HCl なしではポロニウムは抽出されない。

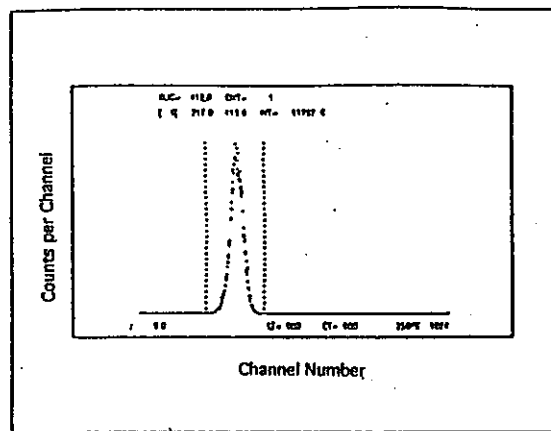


図4-11 RADAEX抽出後の ^{228}Ra のスペクトル

RADAEX に抽出して数分後の ^{226}Ra のスペクトル。

表4-1 β -LSカウンタによる α 液体シンチレーション計測の得失

利点	欠点
事実上100%の検出効率	エネルギー分解能に乏しい
試料の幾何条件の問題がない	β/γ の種々の妨害
試料の自己吸収の問題がない	高く変化しやすいバックグラウンド
試料調製の簡便性	様々なクエンチング

表4-2 ZnSカウンタとPERALSスペクトロメータによるエアフィルターの測定

DPM as counted on filter (ZnS) ^a	DPM PERALS ^b	Ratio $\frac{\text{PERALS}}{\text{ZnS}}$
3044	5340	1.75
1757	2716	1.55
16625	23845	1.43
1925	4982	2.59
2208	1792	.81
74091	83332	1.12
5054	7258	1.44
2213	2374	1.07
3105	5031	1.62
1788	5154	2.88
2023	3767	1.86
16731	36773	2.20
5205	10649	2.06
39615	40907	1.03
4337	7026	1.62
26816	33218	1.24
5034	5877	1.17
7847	28684	3.66
1646	4179	2.54
2191	1763	.80
3125	3813	1.22
12655	13757	1.09
3298	3622	1.10
10562	27229	2.58
13086	18224	1.39
3018	8470	2.81
2136	4013	1.88
6549	6946	1.06

エアフィルターを直接 ZnS カウンターで計測したものと、PERALS スペクトロメータで測定したものの比較。

a: 標準線源から求めた計数効率を用いて DPM に換算したカウント

b: 絶対カウント

表4-3 蛍光分析とPERALS計測の二相分配の一連の比較による水相と有機相の分析結果

Equll. No.	Fluorimetric			PERALS		
	Organic	Aqueous	Σ %	Organic	Aqueous	Σ %
1	0.978	0.106	89.5	0.8185	0.923	95.7
2	0.822	0.121	86.9	0.714	0.102	95.2
3	0.628	0.124	81.6	0.567	0.118	97.2
4	0.458	0.127	81.7	0.420	0.114	94.4
5	0.329	0.141	73.3	0.364	0.126	97.2
6	0.205	0.151	61.2	0.282	0.153	96.5
7	0.157	0.145	69.0	0.159	0.182	95.4
8	0.098	0.174	63.0	0.119	0.209	96.7

表4-4 分離係数

Radium From	Separation Factor
Barium	9.3 ± 0.05
Strontium	12.3 ± 0.1
Calcium	58 ± 3
Magnesium	560 ± 10
Beryllium	$2 \pm 1 \times 10^6$
Zinc	$7 \pm 0.5 \times 10^6$
Lithium	$8 \pm 0.5 \times 10^3$
Cesium	$1.9 \pm 0.1 \times 10^5$
Thorium	$3.7 \pm 0.1 \times 10^6$
Uranium	$6.2 \pm 0.1 \times 10^6$

4.2.2 トリチウム分析におけるバックグラウンド計数の変動

環境中のトリチウム濃度は、大気圏内核実験が数多く行われた1960年代をピークに次第に核実験以前の天然レベルにもどりつつある。現在の環境水中のトリチウム濃度は極低レベルで、液体シンチレーション測定における計数率はバックグラウンドと同レベルである。このような低レベルのトリチウム分析を行う際には、バックグラウンド計数の変動が分析結果の精度に大きく影響する。

現在、使用しているテフロンバイアルは帯電性が高く、計数値の変動が多く見られるため、何度かの繰り返し測定を行い安定した計数値を取り、データ解析している。

ここでは、テフロンバイアル及びテフロンバイアルに比べ帯電性の低い石英ガラスバイアルを用いてバックグラウンド測定を行い、静電気の影響による計数値の変動等を比較・検討した。

(1) 環境トリチウム濃度と分析結果の再現性

日本の陸水と海水の最近のトリチウム濃度レベルはそれぞれ約1Bq/l、0.5Bq/lである。この値は、現在使用している低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタで測定した場合の定量下限値と同程度、あるいはそれを下回るものである。表4-5は、採取場所の異なる海水試料の繰り返し測定結果に再現性が見られない例である。1Bq/l程度の値が検出されていたり、検出されなかったりしている。図4-12は1995年7月から1996年1月までのバックグラウンド試料(パッカー社製Aquasol-2 60ml+バックグラウンド水40ml)の計数率の変化である。夏季に比べ、冬季に高めの計数率を示すことが多い。1cpmは約2Bq/lに相当することから、図中の1月に得られた高めのバックグラウンド計数率とこの測定器のバックグラウンド計数率の平均値から算出した結果には、約1Bq/lの差が生じる。

この差が、表4-5に示したような再現性のない分析結果の一因であり、帯電性の多いテフロンバイアルに起因しているものと推測される。

(2) 静電気の発生と疑似計数

テフロンバイアル(PFA製)を用いて調製したバックグラウンド試料を冷暗所に数日間静置し、10回連続測定をした後ターンテーブルを回し、再び10回連続測定を繰り返す実験を行った。その結果、通常よりも高い計数率が時々見られた。その発現パターンを4つ(A

～Dタイプ) に大別し、安定状態のものとともに図4-13に示す。

Aタイプ 第1回目の計数率が高いが急速に減少し、3～4回目には安定する

Bタイプ Aタイプに似ているが1回目の高い計数率からなかなか減少しない

Cタイプ 計数率が安定していて突然高い計数を示す

Dタイプ 連続測定の中で計数率が高くなるが、次のサイクルではもどに戻る

高計数率の出現は夏季より冬季に多く見られ、年間通じて出現するのはAタイプである。第1回目の計数率が高いのはターンテーブルで試料が回転した時にテフロンに帯電するためである。冬季に高い計数率が多発する原因は、当センターの測定室の温度は年間を通して22～24℃とほぼ一定であるが、湿度は夏季で45～70%、冬季では30%を下回る日が多く、静電気が発生しやすい状態となるためと思われる。

(3) テフロンバイアルと石英バイアルのバックグラウンド計数の比較

静電気による計数値のバラツキを観察するため、テフロンバイアル及び石英ガラスバイアルのバックグラウンド試料を調製した。バイアルの表面をアクリル繊維で2分間摩擦して強制的にバイアルを帯電させた後、測定する実験をした。結果を図4-14に示す。

テフロンバイアルでは図4-13のAタイプと同様に最初の計数値に静電気の影響が現れ、4回あたりから安定した計数値を示した。テフロンより静電気が発生しにくい石英ガラスバイアルでは摩擦の影響は見られず安定した計数値が得られた。この実験における摩擦直後のバイアルの表面の電圧を静電気測定器で測定してみた。テフロンバイアルは約-2900V、石英バイアルは約-130Vであった。

(4) 静電気防止の対処

テフロンバイアルの試料を用いて測定時間を10分間とした短時間での計数値の変化を観察した。また、現在使用している静電気の除去を目的とした静電気防止スプレーの有効性について検討した。結果を図4-15に示す。静電気防止スプレーを噴霧した場合は1サイクル及び2サイクルとも低い計数値で安定した結果が得られた。噴霧しない場合には、1サイクルは若干高い計数値を示し、ターンテーブルが回転した2サイクル目の最初の計数値は非常に高く徐々に減少した。これらのことから、静電気の影響は瞬時ではなく、数十分以

上かけて徐々に無くなり、また静電気除去スプレーが静電気の影響を取り除くのに有効であることがわかった。

当センターにおけるテフロンバイアルを用いたルーチン業務では、測定試料を調製した後、冷暗所で数日間放置し、測定開始直前に静電気防止スプレーをバイアルに噴霧している。また、一部の測定においてはイオンシャワーを用いて測定している。測定結果は、図4-13に示したようにAタイプのものが多いことから、最初の5回分の計数値を無条件に捨て、それ以降の計数値について統計的な棄却検定を行い分析結果を算出している。

しかし、Dタイプや異常計数の出現の仕方によっては棄却検定では異常値を発見できず結果として濃度の高い結果が得られることが予測される。テフロンバイアルを用いた分析結果を得る場合には、この点を考慮する必要がある。

(5) 考察

最近、環境水中のトリチウム濃度は非常に低レベルとなり、テフロンバイアルを用いてトリチウム測定を行う際には、静電気がバックグラウンド計数等に与える影響について十分配慮することが必要である。

ルーチン分析において静電気の影響を抑えた精度のよい分析結果を得るためには、静電気除去スプレーを噴霧するか数十分間のイオンシャワーをかけ、さらに最初の数回の計数値を捨てるなど多くの時間が要求される。

低レベルトリチウム分析を精度よく行うには、

- ① 20ml低カリガラスバイアルを用いて長時間測定する
- ② 電解濃縮法を取り入れる
- ③ 100ml石英ガラスバイアルを用いる

等考えられるが、効率の良い測定を行うにはさらに検討が必要である。

表4-5 海水試料の分析結果

試料	^3H (Bq/ℓ)		
	1回目	2回目	3回目
A	0.68 ± 0.18	* (0.49 ± 0.19)	0.70 ± 0.16
B	1.2 ± 0.19	* (0.45 ± 0.19)	* (0.19 ± 0.16)
C	1.1 ± 0.19	* (0.12 ± 0.18)	* (0.45 ± 0.16)

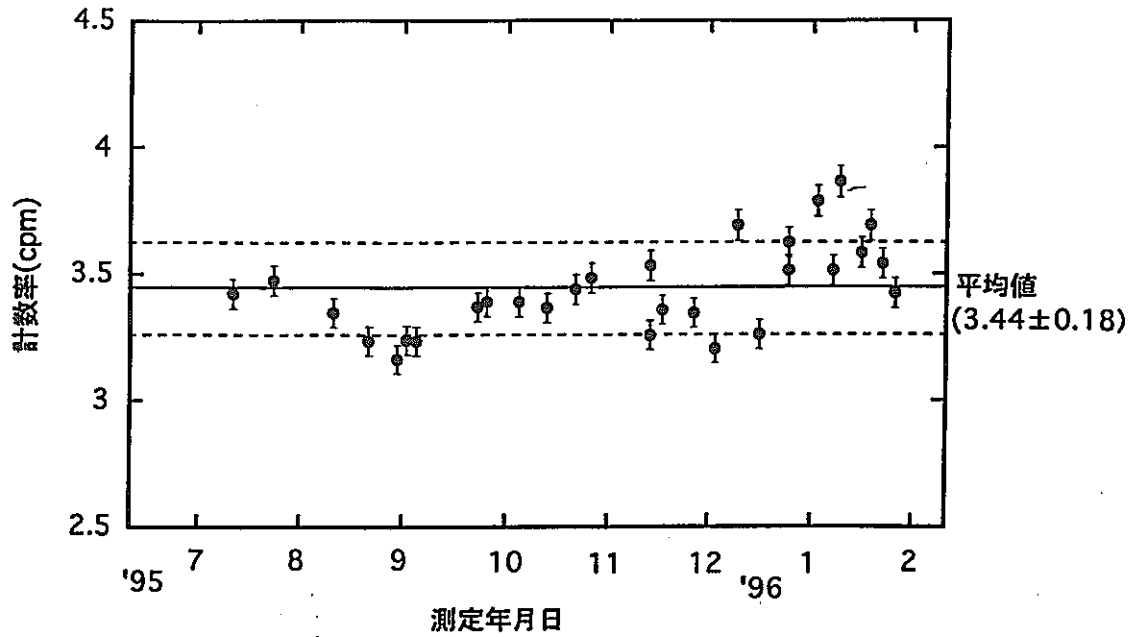


図4-12 バックグラウンド計数率

測定条件：Aloka社製 LB3型
 試料：バックグラウンド試料（水40ml+シンチレータ60ml）
 各データは、2つのバックグラウンド試料を用い、それぞれ500分計測したものを平均した値

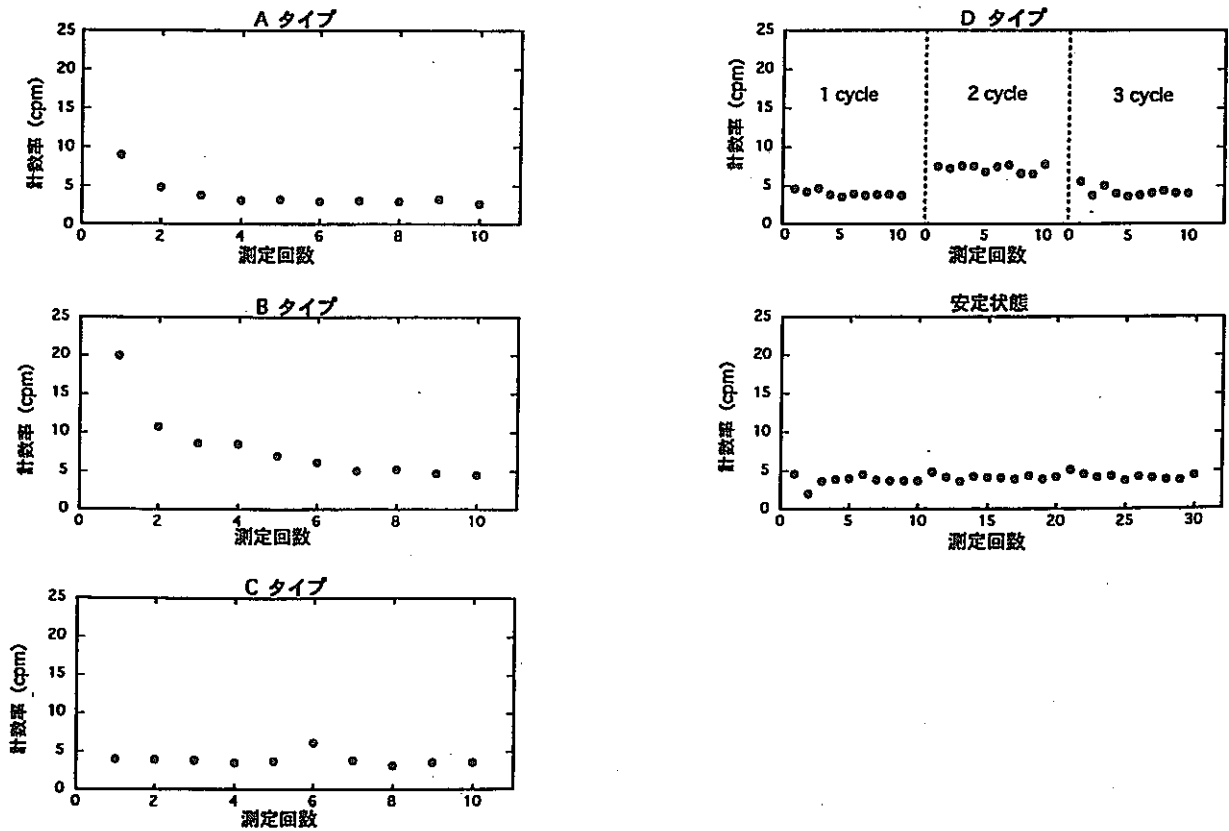


図4-13 異常計数値の発現パターン

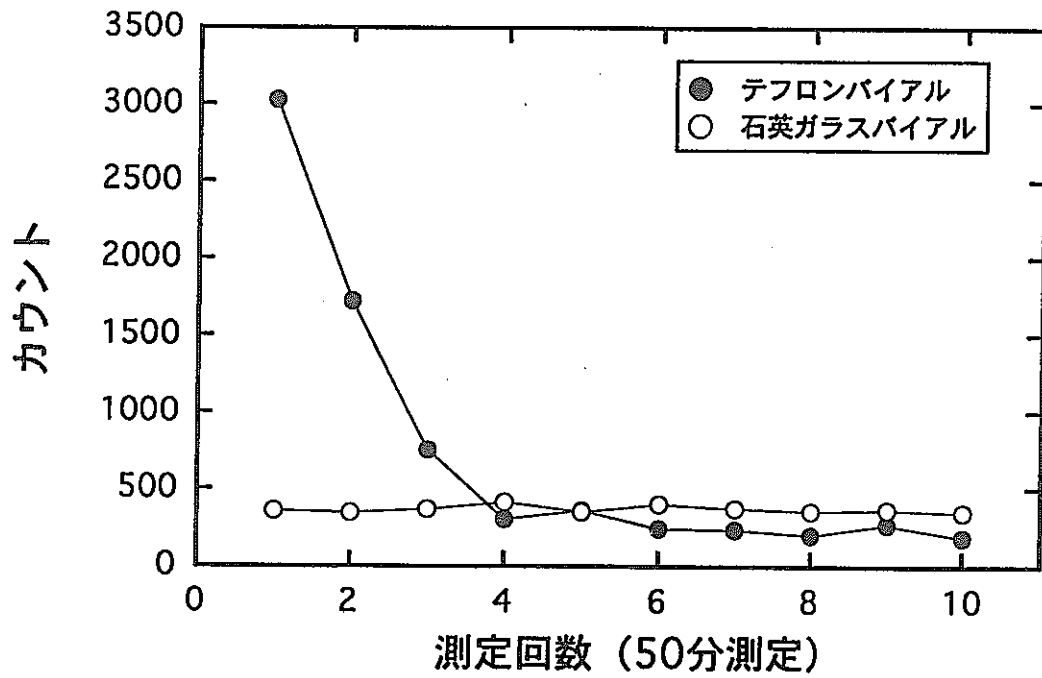


図4-14 バックグラウンド計数值(帯電後)

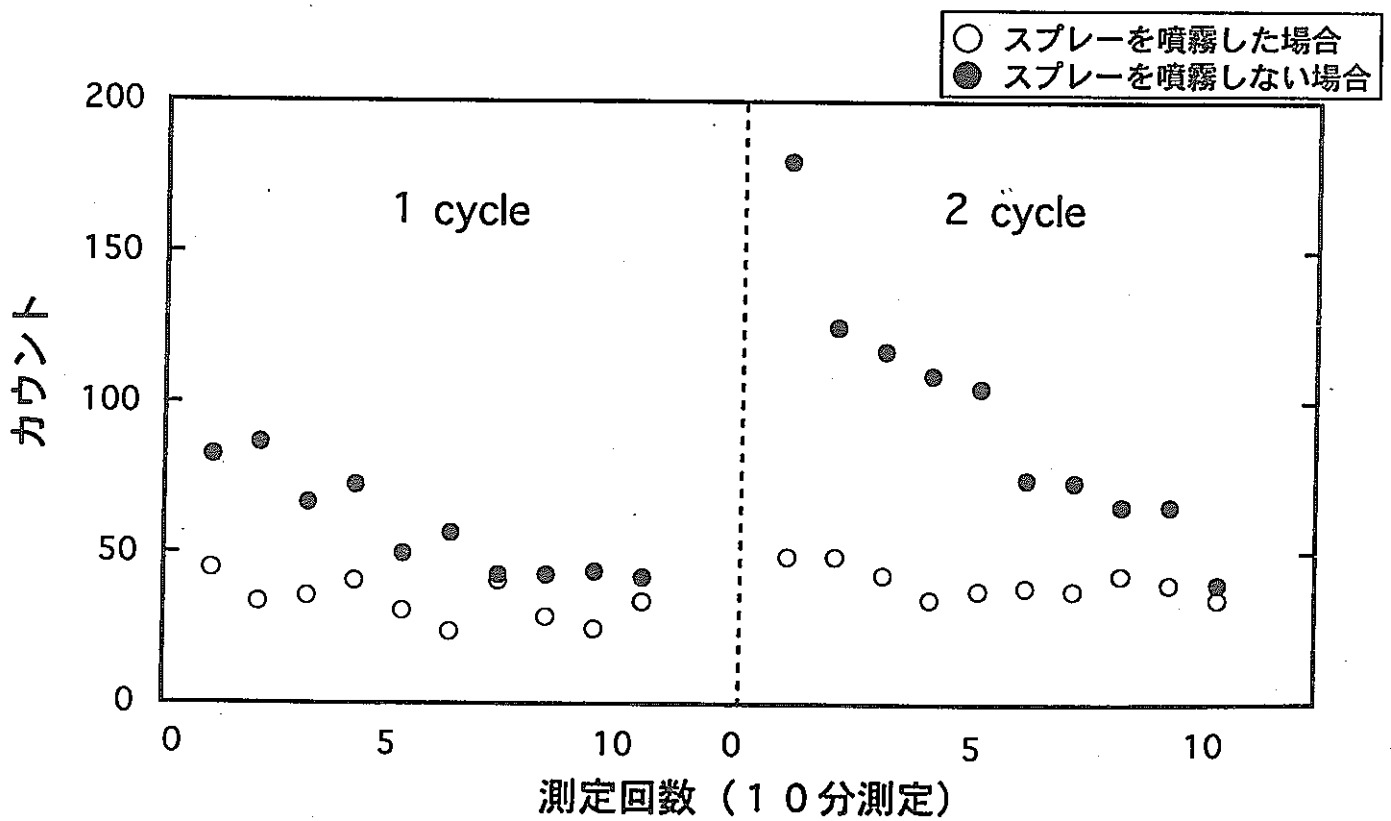


図4-15 静電気防止スプレー使用の有無によるバックグラウンド計数值

4.3 分析精度とクロスチェック

4.3.1 環境放射能分析における分析精度

分析化学の分野における最近の世界的傾向として、分析精度を一定のレベルに維持し、これを確認すること、即ち質の保証 (QUALITY ASSURANCE) が重要であるとされ、その体制の確立のための指針が I S O 等の国際機関から提出されている。

環境放射能分析の分野においてもこの世界的な傾向は避けられないものとなっており、分析機関では質の保証のための体制整備に向けて動きだしているのが現状である。では、環境放射能分析における分析精度とは一体何であろうか？どこまで分析精度を高めなくてはいけないのか？ これらの疑問は常日頃、環境放射能分析を行っている技術者の頭を悩ませる問題である。その答えは環境放射能分析の目的によって決まると言っても過言ではない。環境放射能分析の目的は放射能の観点から環境の状況、即ち、放射性核種の濃度の時空間的分布および挙動を正確に把握することにあることから、これらの事項が把握できる分析精度であれば十分なものと言えるのではないだろうか？

環境放射能分析の目的を明確にした後、次に、この目的に合致できるどのような分析操作、手順 (工程) が必要であるとか、全体の分析精度に合わせた各工程毎の精度を考慮することが重要である。環境放射能分析は、サンプリング、試料の前処理、分離・精製、放射能測定、そして最終的なデータの解析・評価から成っているため、これらの各段階の精度が、ほぼ同程度であることが望ましい。ある操作段階だけ精度を高くしても意味は無く、分析結果の精度は精度の悪い段階で決まることになる。以下に、各分析操作段階での分析精度に及ぼす要因を概説する。

サンプリングでは、環境試料はミクロ的に見た場合には均一では無く、このため環境を代表できる試料をサンプリングすることは非常に困難なことである。また、生体試料の場合には個体差、部位による違いにも注意する必要がある。次に、採取された試料についての前処理段階では、灰化等の減容化、ホモジナイズ、変性 (海水、河川水等では目的核種の吸着防止のための酸の添加が行われる) を行うが、この段階では外部からの汚染と目的核種の損失の防止に十分な注意を払うことが大切である。測定試料調製のための放射性核種の分離・精製には沈殿法、イオン交換法、溶媒抽出法等が使用されるが、マクロ量の分析化学操作を可能にし、目的核種の化学回収率が測定できる担体が一般に用いられている。この分離・精製段階の分析精度に影響をおよぼすことは化学回収率測定の精度、目的核種

と担体との化学形の統一が挙げられる。

分析段階の最終である測定での分析精度におよぼす要因には測定装置の計数効率決定に伴う誤差や計数値に伴う計数誤差は避けられないことである。計数誤差は計数値の平方根であるため、計数値が多くなればなるほどその誤差は小さくなっていくことになる。従って、目的核種の化学回収率も測定精度に影響を及ぼすことになる。また、低バックグラウンドGMカウンタによる β 線測定の場合には、測定試料による β 線の自己吸収による計数値の低下による誤差の増加がある。Ge検出器による γ 線スペクトロメトリーにおいては妨害ピークの補正に伴う計数誤差の増加が挙げられる。

分析結果の信頼性を確認するには前記の分析工程における分析の精度をいかに確保するかにかかっている。総合的な分析の精度を確認する方法としてクロスチェック分析が有効となっている。

平成元年に改訂された原子力安全委員会制定「環境放射線モニタリングに関する指針」には、モニタリングの質の保証に関する事項が加えられており、その中で、各種機器・装置の品質、計測器の保守・点検および校正、トレーサビリティ等からなる6項目を含むモニタリング行為の全ての段階において、質の保証の確立を図るとともに、それらの項目を総合的に評価するための一つの方法として、外部機関が実施している相互比較分析（クロスチェック）の実施は重要であることが明文化されている。

クロスチェックの結果は質の保証の確立を図る上で役立つだけでなく、種々の角度からの解析から、誤差やバラツキの原因解明ができる他、分析方法の改善、分析者の技術の向上に寄与できるものとされている。

このようなことから、本年度は ^3H 、 ^{14}C 分析のクロスチェックを行った。

4.3.2 トリチウム分析

1973年～1979年に秋田県及び岩手県で採取された日常食中の自由水を用いた。この試料は10～30人分の1日の食事をそれぞれ回収して、個別にホモジナイズし、その一部を取り混合したものである。ホモジナイズ後、分取された試料は -20°C の冷蔵庫に保存してあった。今回のクロスチェック用試料は、試料を凍結乾燥して得られた自由水であり、そのうちの100～250mlを未処理のまま分析実施機関に配布した。分析実施機関は、秋田大学、動力炉・核燃料開発事業団及び日本分析センターである。各機関の前処理法及び分析結果は以下のとおりである。

(1) 前処理法

- ・秋田大学：試料を真空蒸留した。この際、水蒸気を650℃に加熱した酸化銅カラムを通し、有機物を分解した。酸化銅カラムは内径16mmの石英管であり、この中に長さ200mm にわたって元素分析用針状酸化銅を充填した。カラムは電气管状炉内に置かれ、650℃に保った。一端に接続管を介して50mlの試料を入れたナス型フラスコをつなぎ、他端は接続管を介して-50℃に冷却したコールドトラップに接続した。真空ポンプを用いて、蒸留を行ったが、50mlの試料の処理に約1昼夜を要した。捕集した水試料を解凍後、0.02gの Na_2O_2 と KMnO_4 を加えて、常圧蒸留を2回行った。
- ・動力炉・核燃料開発事業団：試料70mlを100mlナス型フラスコにとり、過酸化ナトリウム0.1gを加え、マントルヒータ上で常圧蒸留を2回行った。
- ・日本分析センター：100mlナス型フラスコに試料50mlを取り、過マンガン酸カリウム0.5gを加え、密栓した後、60℃で4～5時間加温した。一晚放置後、過酸化ナトリウムを加えてアルカリ性にした後、常圧蒸留した。

(2) 分析結果

3機関の分析結果を表4-6 示す。

表に示されているように、各機関の分析結果は互いに良く一致している。変動係数は5%から15%であった。各測定値に約10%の計数誤差が伴っていることを考慮すると、測定値の一致性はきわめて良いと言える。

分析センターでは試料を精製後、UVスペクトルを測定し、試料水中の純度を検討している。この結果1試料ではあるが、試料水の純度が計数に影響することが示された（秋田県森吉町のUV吸収がみられた試料をそのまま測定したところ 2.43 ± 0.20 Bq/lであった）。試料数および測定回数に限られているため、ここから直ちに結論を出すことはできないが、試料水の純度が計数率に影響を与える場合もあるという可能性が示された。なお、各機関の測定条件は表4-7 のとおりである。

表4-6 トリチウム分析結果

(Bq/ℓ)

採取地点 採取年月日	秋田大	動燃	分析セ	3機関の平均値と標準偏差
秋田県男鹿市 1973.11.26	2.38 ±0.19	1.99 ±0.20	2.69 ±0.20	2.35 ± 0.35
岩手県高田市 1973.8.2	2.07 ±0.19	1.89 ±0.21	1.89 ±0.19	1.95 ± 0.10
秋田県河辺町 1977.6.21	1.66 ±0.15	2.00 ±0.21	1.75 ±0.19	1.80 ± 0.18
秋田県森吉町 1979.	1.85 ±0.19	2.10 ±0.20	1.59 ±0.28	1.85 ± 0.26

表4-7 トリチウム測定条件

	秋田大	動燃	分析セ
計数装置	Aloka 社製 LSC-LB I 型	Aloka 社製 LSC-LB III 型	Aloka 社製 LSC-LB III 型
測定容器の材質、 容積	石英バイアル 100 ml	テフロンバイアル 100 ml	テフロンバイアル 100 ml
液体シリンダ名、 添加量	777ソル2 60 ml	777ソル2 60 ml	777ソル2 60 ml
分析供試量	40ml	40ml	40ml
計数効率 (%)	約12.5%	約27%	約29%
バックグラウンド計数率	約2.2cpm	約4cpm	約4.7cpm
ケンピング補正法	外部標準線源比法	外部標準線源比法	外部標準線源比法

4.3.3 炭素-14分析

九州大学宮崎演習林から採取した縦の木の1960年、1976年及び1979年に相当する年輪を粉碎したものをを用いた。分析実施機関は、九州大学、動力炉・核燃料開発事業団及び日本分析センターである。各機関の前処理法及び分析結果は以下のとおりである。

(1) 前処理法

- ・九州大学：試料を1M塩酸と約2%の水酸化ナトリウム溶液で4-5回交互に、ほぼ溶液が透明になるまで表面を洗浄した。乾燥後、約10gを燃焼し、発生した二酸化炭素をタスク社のベンゼン合成装置でベンゼンに合成し、液体シンチレーションカウンターで放射能を測定した。計数効率 はNISTシュウ酸で決定し、バックグラウンド試料は試薬のベンゼンを用いた。
- ・動力炉・核燃料開発事業団：試料を1M塩酸と2%水酸化ナトリウム溶液で5-6回交互に、ほぼ溶液が透明になるまで表面を洗浄し、更に水で十分に洗浄した。乾燥後、6~約10gを燃焼させてベンゼン合成装置でベンゼンに合成し、液体シンチレーションカウンターで放射能を測定した。計数効率はNISTシュウ酸で決定し、バックグラウンド試料は試薬のベンゼンを用いた。
- ・日本分析センター：試料を1M塩酸で洗浄し、次いで2%水酸化ナトリウム溶液で洗浄した。さらに、6M塩酸で洗浄し、水で十分に洗浄した後、乾燥した。乾燥した試料5~10gを燃焼してベンゼン合成装置でベンゼンに合成し、液体シンチレーションカウンターで放射能を測定した。計数効率はNISTシュウ酸で決定し、バックグラウンド試料は大理石から調製したベンゼンを用いた。

(2) 分析結果

3機関の分析結果を表4-8に示す。

それぞれの試料の計数誤差が0.002-0.003Bq/gCであることを考慮すれば、炭素-14分析の精度は高く、データは3機関で良く一致していると言える。

炭素-14は誘導放射性核種であり恒常的に大気上層で生成している。その生成と放射壊変は平衡状態にあったが、大気圏内核実験により人為起源の炭素-14が大気中に放出されたため、1963年には大気中濃度は平衡状態の2倍近くまで上昇した。その後

大気中濃度は減少を続け、現在は核実験以前のレベルに戻りつつある。大気中の炭素-14濃度の経年変化がNydalとLovseth(1983)により報告されているが、今回の年輪中の炭素-14は大気中の炭素-14濃度の変化を反映していることがわかる。年輪の分析値を大気データと厳密に比較するためには、植物の炭素取り込みの同位体効果を炭素-13により補正しなければならない。

なお、各機関の測定条件は表4-9のとおりである。

表4-8 炭素-14分析結果

(Bq/gC)

試料名	九大	動燃	分析セ	3機関の平均値と標準偏差
1960年	0.270 ±0.002	0.278 ±0.003	0.274 ±0.002	0.274 ± 0.004
1976年	0.293 ±0.003	0.307 ±0.003	0.307 ±0.002	0.302 ± 0.008
1979年	0.294 ±0.003	0.292 ±0.003	0.296 ±0.002	0.294 ± 0.002

表4-9 炭素-14測定条件

	九大	動燃	分析セ
計数装置	Packard 社製 TRI-CARB 1050 TR/LL 型	Packard 社製 TRI-CARB 2560 XL 型	Wallac社製 1220 Quantulus
測定容器の材質、容積	低加ガラスバイアル 7 ml	低加ガラスバイアル 7 ml	テロン/銅 3 ml
液体ソルベント名、添加量	市販ベンゼン500mlにPPO及びPOPOPをそれぞれ21.0g及び0.7gを溶解した。 0.5 ml	市販ベンゼン1ℓにPPO及びPOPOPをそれぞれ42g及び1.8gを溶解した。 0.5 ml	市販トルエン1ℓにフル-PBD 50gを溶解した。 0.5 ml
分析供試量	3.0 ml	3.0 ml	2.0 ml
計数効率	約60%	約60%	約76%
バックグラウンド計数率	約1 cpm	約3 cpm	約0.3cpm
クエンチング補正法	標準試料の測定結果から算出される計数効率をそのまま試料に適用。	標準試料の測定結果から算出される計数効率をそのまま試料に適用。	標準試料の測定結果から算出される計数効率をそのまま試料に適用。

5. まとめ

本年度の調査研究は、核燃料サイクルに関連した長半減期放射性核種のモニタリングについて国内外で開催された国際会議、学会、シンポジウムで発表されたものを纏めると共に、トリチウムと ^{14}C 分析のクロスチェックを行った。

長半減期放射性核種に関する最近の研究では、極低レベルの分析測定手法の開発及び環境中でのレベルと存在状態および移行・分布のモデル化等環境への影響評価に関するものが多くなってきている。

分析測定法においては、 ^{99}Tc 、 ^{239}Pu 等の定量には、放射能を測定する代わりに質量を測定する傾向になってきている。この質量分析法の進展は、今後、核燃料サイクル施設における緊急時の環境モニタリング手法等においても威力を発揮するものと考えられる。放射能測定においては、試料を液状のまま α 線、 β 線の測定ができる液体シンチレーション測定法が今後共益々用いられるものと思われる。このような状態に鑑み、本年度は液体シンチレーションに関する最近の話題を取り上げた。

さらに、最近国際的にも分析測定方法の質の保証が話題となっており、分析手法の信頼性を確認するための手法の一つとしてクロスチェックが重要な役割を担うとされる。そこで本年度は、日常食中の自由水中のトリチウム分析、樅の木についての ^{14}C 分析に関してのクロスチェックを実施した。参加機関から提出された分析結果は相互に良く一致し、各参加機関の分析方法の信頼性と分析精度が確認できたことは本年度の大きな成果の一つである。