

本資料は 〇/年 10月 〆日付けで登録区分、  
変更する。

[技術情報室]

# 長半減期放射性核種の定量法に 関する調査研究

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1993年 3月

財団法人 原子力安全技術センター

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、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。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特に注意して下さい。

本資料についての問い合わせは下記に願います。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術管理部 技術情報室



## 長半減期放射性核種の定量法に関する調査研究

橋本 哲夫\*

### 要 旨

本報告は、本邦での核燃料サイクル施設の本格的稼働を間近に控えたこの時期において、環境中での核燃料サイクルとも関連した長半減期放射性核種の分析定量法を調査した結果をとりまとめたものである。各核種につき既に汎用化されている従来法はもとより、放射能測定を伴わない質量分析器を最終検出器とする最新の分析定量法についても、サーベイした。また、幾つかの核種については、分析対象物質毎に試料の前処理を詳しく記述し、実際の分析に役立つよう配慮した。

本報告書は（財）原子力安全技術センターが動力炉・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――040D0125

事業団担当者：桜井 直行 東海事業所 安全管理部長

\* 新潟大学理学部 教授



PNC J1545 93-004  
MARCH, 1993

A current survey of radioanalytical methods for long-lived radionuclides  
in environment

T. HASHIMOTO\*

### Abstract

A literature survey on the radioanalytical methods was carried out for the long-lived radionuclides related to environmental samples. This survey is intended to include the mostly recent analytical techniques of concerning nuclides such as an inductively coupled plasma and an accelerator mass-spectrometric technique as well as some familiar radioanalytical methods, in which radioactivity was finally determined. The contents in this volume will be helpful for the practical analysts of environmental radionuclides because of involving the pretreatment techniques of some samples prior to the chemical procedure for each nuclide.

Work performed by Nuclear Safety Technology Center under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

PNC Liaison ..... Naoyuki SAKURAI Health and Safety Division  
Tokai Works, PNC. Director

\* Professor, Faculty of Science, Niigata University

長半減期核種定量法調査委員会委員

委員長	橋本哲夫	新潟大学 理学部 教授
委員	久松俊一	秋田大学 医学部公衆衛生学教室 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 助手
	百島則幸	九州大学 理学部化学科 助手
	五十嵐康人	運輸省気象研究所 地球化学研究部 研究官
	磯貝啓介	(財)日本分析センター 分析部第4課 上級技術員
アドバイザー	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	木下睦	理事
	粕川博信	研究調査部 部長
	有吉繁樹	研究調査部 参事
	田島基伸	研究調査部 参事

# 目 次

はじめに	1
1. 概 要	2
2. 調査目的	2
3. 調査方法	3
4. 最新の分析技術の現状（各論）	
4.1 トリチウム	4
4.1.1 トリチウムの測定法	4
4.1.2 水試料の前処理	6
4.2 炭素-14	12
4.2.1 液体シンチレーションカウンターを用いた測定法	12
4.2.2 ガスカウンターを用いた測定法	15
4.2.3 加速器質量分析法	16
4.2.4 バックグラウンドと炭素-14標準物質	16
4.3 テクネチウム-99	20
4.3.1 測定法	20
4.3.2 化学分析法	22
4.3.3 トレーサー	24
4.4 ヨウ素-127、129、131	31
4.4.1 試料の前処理（捕集、燃焼・捕集、溶媒抽出-PdI <sub>2</sub> 沈殿）	32
4.4.2 中性子放射化分析法	39
4.5 ウラン	56
4.5.1 はじめに	56

4.5.2	分析法概要	58
4.5.3	定量法	59
4.5.4	電気分析法	61
4.5.5	ICPおよびICP-MASS	61
4.5.6	その他	62
4.5.7	オクロ現象	63
4.5.8	ICP-MSによるウラン等の分析	72
4.6	ネプツニウム-237	74
4.6.1	化学分離・ $\alpha$ 線スペクトロメトリー	74
4.6.2	放射化分析法	75
4.6.3	質量分析法	77
4.7	プルトニウム	94
4.7.1	化学分離・ $\alpha$ 線スペクトロメトリー	94
4.7.2	液体シンチレーション法	95
4.7.3	$^{239}\text{Pu}$ と $^{240}\text{Pu}$ の分別測定法	96
4.7.4	質量分析法	96
4.8	アメリシウム	108
4.8.1	アメリシウム測定法	108
4.8.2	アメリシウムの放射化学的分離	108
4.8.3	低エネルギー $\gamma$ 線スペクトロメトリー	111
5.	まとめ	122

## 目 次

図4.1.1	トリチウム水の生成に用いられる蒸留器 .....	11
図4.2.1	名古屋大学に設置されている加速器質量分析装置 .....	19
図4.3.1	アルミ吸収板によるテクネチウム-99 計数値の変化 (Calment 1987) .....	30
図4.3.2	表面電離型質量分析器を用いて同位体希釈法で測定した テクネチウム-99 のスペクトル (Anderson 1980) .....	30
図4.4.1	燃焼管 (石英製) .....	52
図4.4.2	燃焼装置 .....	52
図4.4.3	ヨウ素封入装置 .....	53
図4.4.4	(1/3~3/3) ヨウ素封入工程 .....	53~55
図4.6.1	$^{237}\text{Np}$ の $\alpha$ 線の妨害核種と $^{237}\text{Np}$ の $\alpha$ 線スペクトル .....	84
図4.6.2	環境試料中の $^{237}\text{Np}$ の分析スキーム .....	85
図4.6.3	一般環境土壌および堆積物試料中の $^{237}\text{Np}$ 分析スキーム .....	86
図4.6.4	堆積物試料中の $^{237}\text{Np}$ の $\alpha$ 線スペクトル .....	87
図4.6.5	中性子放射化分析による環境試料中の $^{237}\text{Np}$ 分析スキーム (Germainらの方法) .....	88
図4.6.6	四重極型の ICP-MS 装置の概念図 .....	89
図4.6.7	土壌試料 (福井県, 冠山) 中の $^{237}\text{Np}$ のマススペクトル .....	90
図4.6.8	Irish 海沿岸のRavenglassで採取した堆積物 (1 g 使用) に対して得られた マススペクトル (ETV ICP-MS) .....	91
図4.6.9	二重収束型のHR-ICP-MS 装置の概念図 .....	92
図4.6.10	四重極型のICP-MSと二重収束型のHR-ICP-MS の (a) バックグラウンドと (b) $^{99}\text{Tc}$ , $^{237}\text{Np}$ , $^{239}\text{Pu}$ に対する感度の比較 .....	93
図4.7.1	$\text{Pu}$ の $\alpha$ 線の妨害核種と $\text{Pu}$ の $\alpha$ 線スペクトル .....	103

図4.7.2	$\alpha$ 線スペクトロメトリーによる $^{238}\text{Pu}$ , $^{239,240}\text{Pu}$ と液体シンチレーション カウンターによる $^{241}\text{Pu}$ の同時測定のための分析スキーム	104
図4.7.3	環境試料から分離・精製, 電着して得たPu線源に対しての Ge-LEPS スペクトル (10~35keV)	105
図4.7.4	ICP-MSによる $^{239}\text{Pu}$ と $^{240}\text{Pu}$ のマススペクトル	106
図4.7.5	電離型質量分析法による海洋試料中のPuの検出限界	107
図4.8.1	科学技術庁によるAmの分析操作 (イオン交換法) の概要	114
図4.8.2	科学技術庁によるAmの分析操作 (溶媒抽出, イオン交換法) の概要	115
図4.8.3	Afsar によるAm分析操作の概要	116
図4.8.4	Livens によるAm分析操作の概要	117
図4.8.5	Ge半導体検出器による低エネルギー $\gamma$ 線スペクトルの例	118

## 表 目 次

表 4. 1. 1	日本各地の工業用酸素ボンベ中のトリチウム .....	9
表 4. 1. 2	各種市販酸素中のメタン含有量 .....	10
表 4. 2. 1	市販の二酸化炭素吸収剤一覧 .....	18
表 4. 3. 1	テクネチウム-99の測定に利用されるベータ線 カウンター (小村1991) .....	29
表 4. 5. 1	各種 $\alpha$ 線検出法の特性比較 .....	57
表 4. 5. 2	$U4f_{7/2}Z=92$ .....	62
表 4. 6. 1	環境試料中の $^{237}Np$ 測定の比較 .....	80
表 4. 6. 2	長寿命放射性核種に対しての四重極型ICP-MSでの検出限界 .....	81
表 4. 6. 3	試料導入に際して、BVT とネブライザーを用いた場合の ICP-MS測定の比較 .....	82
表 4. 6. 4	長寿命放射性核種に対しての二重収束型HR-ICP-MS での 測定感度と検出限界 .....	83
表 4. 7. 1	液体シンチレーションカウンター (アロカLB-1) での $^{241}Pu$ 測定条件 .....	100
表 4. 7. 2	$^{239}Pu$ と $^{240}Pu$ 分別測定法 .....	101
表 4. 7. 3	ICP-MSとフィッシュトラック法による $^{239}Pu$ と $^{240}Pu$ 同位体比測定の比較 .....	102
表 4. 8. 1	環境試料に適用されたAm分離法 .....	119
表 4. 8. 2	環境試料中Amのクロスチェック .....	120
表 4. 8. 3	環境試料中Amのクロスチェック結果 .....	121

はじめに

我が国最初の本格的核燃料サイクル施設の事業化も、いよいよ最終段階を迎えるにいたった。核燃料サイクルを完成させるためには、核燃料物質の処理施設はもとより輸送を含めた核燃料サイクル関連施設等の安全性を確保することが必要であり、そのためには各研究機関が同一の分析水準で環境中の長半減期核種の分析・測定が実施できることが重要である。

近年、長半減期核種の定量法は従来の放射能測定法に代わる方法として質量分析法が導入される等、過渡期を迎えようとしている。かかる現状に鑑み我が国の主要な環境放射能研究機関が長半減期核種の分離・分析法などに関する方法論を総合的に調査し、その分析・測定法を確立することは不可欠と考える。

本調査の検討に当たっては、「長半減期核種定量法調査委員会（委員長 橋本 哲夫 新潟大学 理学部 教授）」を設置し、本委員会のもとで調査内容についての分析・評価を行い、本調査報告書をまとめた。

本年度は本調査の初年度に当たり、収集文献等により長半減期核種の分析法に関する動向調査等を行った。

## 1. 概 要

核燃料サイクル施設の本格的な稼働を間近に控えた現在、我が国での環境中における長半減期核種の信頼性高い分析定量法の確立及び分析技術水準の維持や向上化は、焦眉の事柄である。しかしながら、分析法自身時代と共に進歩したり、全く新しい概念が導入されたりして従来の分析定量法を全く一変させるような事態も起こりうる技術革新の時代の最中に我々は置かれてもいる。

この事態を踏まえ、この方面における若い研究者の方々に御協力を願い、T, C-14, Tc-99, I-127, 129, 131, U, Np, Pu, Am. の各核種につき、従来の分析法はもとより、内外の文献やご自身の経験に基づき、最新の分析法や分析装置、測定解析装置などの現時点での調査と情報を収集して頂いた。まとめに当たっては、分析または測定法別に記述するとともに、分析対象試料別にもまとめてある。前者については、放射能測定を主体としたもののほか、放射化分析法やICP-MS（高周波誘導プラズマ結合質量分析）装置や加速器質量分析器による最先端の分析法にも力点を注いで頂いた。そのほか、実際の分析の結果得られる放射線のスペクトル例も特殊な場合は挿入していただき、参考になるよう配慮した。只今この方面の分析実務を担当されておられる方はもとより、今後着手されようとする方々にとっても、有用となる調査結果となるようまとめさせて頂いたつもりである。

## 2. 調査目的

核燃料サイクル諸施設から環境中へ放出される放射性廃棄物が環境中でどのような挙動を示すかを把握し、更には長期的な環境への影響等を評価するためには、判断の基盤となる環境中での長半減期核種の分析及び測定法を確立する必要がある。これまでも環境放射能安全研究の一環として種々の長半減期核種について放射能測定による定量法が開発されてきたが近年、これに代わる方法として質量分析法が着目され、種々の利点が強調されるようになってきた。長半減期核種の定量法もこのように新技術の導入により過渡期を迎えようとしている。しかしながら環境放射能研究における長半減期放射能核種の分析・測定においては、各研究機関が常に同一の技術水準で分析し、相互評価できることが極めて重要である。

以上の観点から、国内外の文献等を基に長半減期核種の分離・分析法及び放射能測定法などに関する方法論を総合的に調査研究し、統一的な分析・測定法を確立することを本調

査研究の目的とする。

### 3. 調査方法

調査対象の長半減期核種は、T, C-14, Tc-99, I-127, 129, 131, U, Np, Pu, 及びAmである。本調査を実施するに当たって特に重視した点は、従来の分析法はもとより、最新の分析法や分析装置、測定解析装置などについての情報を可能な限り幅広く収集することにあった。そのため、本分野の専門家として常に第一線で御活躍中の委員の方々に下記の通り調査とりまとめを分担して戴いた。調査結果の詳細は次章（4章）に示す通りである。

- 4.1 トリチウム (T) .....久松委員 (秋田大学)
- 4.2 炭素-14 (C-14) .....百島委員 (九州大学)
- 4.3 テクネチウム-99 (Tc-99) ..... " ( " )
- 4.4 ヨウ素-127, 129, 131 (I-127, 129, 131).....磯貝委員 (財団法人日本分析センター)
- 4.5 ウラン (U) .....橋本委員長 (新潟大学)
- 4.6 ネプツニウム-237 (Np-237) .....山本委員 (金沢大学)
- 4.7 プルトニウム (Pu) ..... " ( " )
- 4.8 アメリシウム (Am) .....久松委員 (秋田大学)

なお、本調査で使用された文献は、各委員の手持ちの文献及び新たにJOISにより検索収集した文献（添付資料参照）等である。

## 4. 最新の分析技術の現状（各論）

### 4.1 トリチウム

#### 4.1.1 トリチウムの測定法

トリチウムの測定法には多くの方法があるが、環境トリチウムの測定に適用でき得るのは以下の方法である。

ガスカウンタ法

液体シンチレーション法

ヘリウム同位体法

加速器質量分析法

このうち、ガスカウンタ法、加速器質量分析法は現在ほとんど用いられない。ここでは、液体シンチレーション法を中心に述べ、ヘリウム同位体法、加速器質量分析法などについても触れる。

##### 4.1.1.1 液体シンチレーション法

現在、最もよく用いられているのは乳化シンチレーターを用いた液体シンチレーション法である。これは、試料の取扱の容易さと、低レベルT測定用のシンチレーションカウンターが比較的安価に市販されているためであるが、国内で普及している低レベルシンチレーションカウンターには2つのタイプがある。1つは大容量の試料バイアルを使用して試料の量を増し、加えて重遮蔽とガードカウンターによってバックグラウンドの低減を計ったもので<sup>1)</sup>、2つ目はバックグラウンドとトリチウムβ線からの信号特性の差を検出して区別するタイプである<sup>2)</sup>。前者はアロカ、後者はパッカー社から発売されている。

アロカ製のものでは、100mlのバイアルを使用し、乳化シンチレータと40-50mlの試料水を用い、1000分間測定で、約1Bq/lのTが定量可能である。パッカー社の測定器は電子的な処理により試料内からの弱いβ線をバックグラウンドから区別するものである。これは、バックグラウンドのパルスではアフターパルスと呼ばれる小さなパルスが数個続きやすいことを利用し、このアフターパルスの数を数えることによりバックグラウ

ンドの信号を弁別して、バックグランド計数率を低減している。通常の20mlバイアルを用いるため、乳化シンチレータを使用すると試料水の量は8-10mlとなる。定量下限はアロカ社の約1.5-2倍であり、感度は劣るが、測定値の安定性は高いと言われている。

アロカ製の測定器で一般的に用いられるテフロン製バイアルには製品のばらつきがあり、測定値に影響を与えることが知られている<sup>3)</sup>。このため、重量を目安にしてバイアルを選択し、ばらつきを押さえることが行われる。また、光電子増倍管にはヒステリシス特性があるため、高計数率の試料を測定した後では注意が必要である<sup>4)</sup>。ラドンの娘核種はバックグランド計数率の不安定性要因と見られており、試料室内に窒素ガスを流す、バイアル表面への娘核種吸着を防ぐために静電気を取り除く、石英ガラス製のバイアルを使用するなどの対策が取られる。

#### 4.1.1.2 その他の方法

ヘリウム同位体法は、Tの崩壊で生じた<sup>3</sup>Heを稀ガス用質量分析器により測定し、Tを定量する手法である。試料中の稀ガスを追い出した後に密閉して放置し、生成した<sup>3</sup>Heを測定するが、空気中のHeの影響を受けないようにしなければならない。蓄積時間を長くすれば感度は上昇すること、試料の形態として水に限らないことが長所である。短所は蓄積時間が必要なことであり、即応性には欠ける。国内では、山形大学で地下水の測定例がある<sup>5)</sup>。最近、Suranoらは環境水試料とワイン試料に適用し、1Bq/l程度の濃度を精度よく測定している<sup>6)</sup>。<sup>3</sup>Heの蓄積期間は1Bq/lのT濃度の水試料100mlについて60日であった。また、環境水については電解濃縮後に液体シンチレーション法での測定を行ない、ワインについては、燃焼によって生成した水を水素に還元し、ガスカウンターによる測定を行なって<sup>3</sup>He法の結果と比較し、良い一致をみている。

この他、加速器質量分析が高感度測定法として有望である。タンデムバンデグラフを用いる場合、3-6MeVまで加速し、妨害する<sup>3</sup>Heをアルミニウム箔によって除去して検出する。数10mgの水試料を用いた1時間の測定で1-10Bq/lのT濃度レベルが測定できるとされる<sup>7)</sup>。欠点は装置が大きく、高価なことであり、普及の障害となっている。

最近、オメガトロンタイプの高分解能質量分析器を用いた水素同位体の測定例が報告された<sup>8)</sup>。多量のTを用いた測定であり、環境レベルに適用できるか不明であるが、H<sub>2</sub>, HD, HT, D<sub>2</sub>, DT, T<sub>2</sub>が相互に分離できる。オメガトロンタイプの質量分析器はサイクロトロン共鳴を利用して同重体を分離するが、装置はコンパクトで、高さ1.8m、縦横1mの

グローブボックス内に設置できている。分解能は質量に依存し、ピークの1%幅で2500/mであった。HT<sup>+</sup>については620であり、スペクトル上でHT<sup>+</sup>ピークをD<sub>2</sub><sup>+</sup>ピークから区別できるが、ベースラインで分離することはできていない。環境レベルのT分析ではピークのテーリングに加えて、H<sup>+</sup>、H<sub>2</sub><sup>+</sup>の散乱をどこまで押さえられるかが鍵であり、この点は不明であるが、大きな期待はできないと思われる。

#### 4.1.1.3 バックグラウンド測定用試料水

バックグラウンド測定用に用いられる試料水、いわゆるバックグラウンド水にはT濃度の低い地下水が一般的に用いられるが、天然ガスの燃焼によって作成することもできる<sup>9)</sup>。Tの物理的半減期は12.34年と短いため、天然ガス中にTはまったく含まれていない。しかし、燃焼に酸素ボンベガスを用いる際には酸素ガス中のTに注意しなければならない。燃焼には酸素ガスが使用されるが、通常の工業用酸素ボンベガスには約0.07mBq/l-O<sub>2</sub>のTが含まれている<sup>10)</sup>(表4.1.1)。工業用酸素ボンベガスは液体空気から作られるが、この際の空气中炭化水素との分離は充分ではなく、酸素ガス中に炭化水素が混入してくる。メタン中のTの比放射能は高いことが知られており<sup>10)-15)</sup>、酸素ガス中のTの原因ではないかと考えられている。液体空気より作られた酸素ガスでは、純ガスでも炭化水素濃度に関しては工業用酸素ガスと同様のものもある<sup>16)</sup>(表4.1.2)。このため、大量に使用した場合には、バックグラウンド水にTが混入してくる。従って、炭化水素を除くか、水の電気分解によって作られる高純度の酸素(電解酸素、99.999%酸素)を使用する必要がある。炭化水素の除去は、触媒を用いての酸化後、生じた水をモレキュラーシーブに捕集することによって行なう<sup>10)</sup>。

また、バックグラウンド水として鉍物の結晶水を利用する方法もある。鉍物の生成年代は問わないが、結晶水が余り低い温度で遊離するものは、自然状態での自由水との交換反応があるために適さない、また、遊離温度が高いと処理が難しくなる。Sutherlandは天然石膏を用い、好結果を得ている<sup>17)</sup>。石膏の結晶水の一部は128℃と163℃で遊離するため、この目的に適しており、石膏100gから約20gの結晶水が抽出できる。

#### 4.1.2 水試料の前処理

水試料の前処理としては浮遊物のろ過による除去と蒸留による精製である。これらの処理は大気中の水分との交換反応を防ぐ形で行なわなければならない。図4.1.1に代表

的な蒸留装置を示すが、蒸留過程での同位体効果を避けるため、残留分が完全に無くなり、乾固するまで蒸留を行なう。有機物が認められる場合は  $\text{Na}_2\text{O}_2$  と  $\text{KMnO}_4$  をそれぞれ  $1\text{mg/ml}$  となる程度に加えて蒸留する。塩濃度の高い地下水や海水の蒸留では少量の留分に  $0.1\text{NAgNO}_3$  を加えて、 $\text{Cl}$  イオンを示す白濁が検出されなくなるまで蒸留を繰り返す。

## 参考文献

- 1) Iwakura, T. et al., in Behaviour of tritium in environment, pp163-171, IAEA, Vienna (1979)
- 2) Kessler, M., Radiocarbon, 32, 381-386 (1990)
- 3) Momoshima, N., Nakamura, Y., Takashima, Y., Int. J. Appl. Radiat. Isot. 34, 1623-1626 (1983)
- 4) 片岡 滋 他, Radioisotopes, 28, 419-423 (1979)
- 5) Takaoka, N., Mizutani, Y., Earth Planet. Sci. Let., 85, 74-78 (1987)
- 6) Surano, K. A. et al. J. Radioanal. Nucl. Chem. Art., 161, 443-453 (1992)
- 7) 中井信之, Radioisotopes, 28, 54-62 (1979)
- 8) Engelmann, U. et al., Nucl. Inst. Meth. Phys. Res., A302, 345-351 (1991)
- 9) 水口義則 他, 保健物理, 24, 31-37 (1989)
- 10) 岡井富夫, 高島良正, 第32回放射化学討論会講演予稿集, 38-39 (1988)
- 11) Oestlund, H. G., Mason, A. S., Tellus, 26, 91 (1974)
- 12) Mason, A. S., J. Geophys. Res., 82, 5913-5916 (1977)
- 13) Mason, A. S., Oestlund, H. G., in Behaviour of tritium in the environment, IAEA-SM-232/62, pp3-15, Vienna:IAEA (1979)
- 14) Okai, T., Takashima, Y., J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 130, 399-407 (1989)
- 15) Okai, T., Takashima, Y., Appl. Radiat. Isot. 42, 389-393 (1991)
- 16) 大林治夫 他, 昭和63年度文部省科学研究費補助金、核融合特定研究、環境トリチウムの変動測定とその解析, pp102-113, 九州大学 (1986)
- 17) Sutherland, J., K., Health Phys. 53, 325-326 (1987)

表4.1.1 日本各地の工業用酸素ボンベガス中のトリチウム

購入場所	T濃度(mBq/ℓ)
札幌	0.079
仙台	0.080
千葉	0.065
新潟	0.069
金沢	0.085
岡崎	0.062
尼崎	0.066
広島	0.060
香川	0.062
北九州	0.067
	0.058
鹿児島	0.065
平均±SD	0.068±0.009

表4.1.2 各種市販酸素中のメタン含有量

ガスの種類	メタン含有量 [ppm]	備 考
大阪酸素工業製 電解酸素	0. 1 <sub>0</sub>	1988年8月2日充填（尼崎工場）
同 上 脱メタン処理	0. 1 <sub>1</sub>	触媒・モレキュラーシーブ通過後
テイサン製 電解酸素	0. 0 <sub>9</sub>	1980年6月23日充填（千葉工場）
テイサン製 普通酸素	1 1. 5 <sub>5</sub>	O <sub>2</sub> =99.9%
高千穂化学工業製 高純度酸素	1 3. 1 <sub>5</sub>	1984年10月29日充填（町田市） リサーチグレード
同 上 脱メタン処理	1. 6 <sub>4</sub>	触媒・モレキュラーシーブ通過後
高千穂化学工業製 高純度アルゴン	0. 2 <sub>8</sub>	1988年4月13日充填（町田市） リサーチグレード

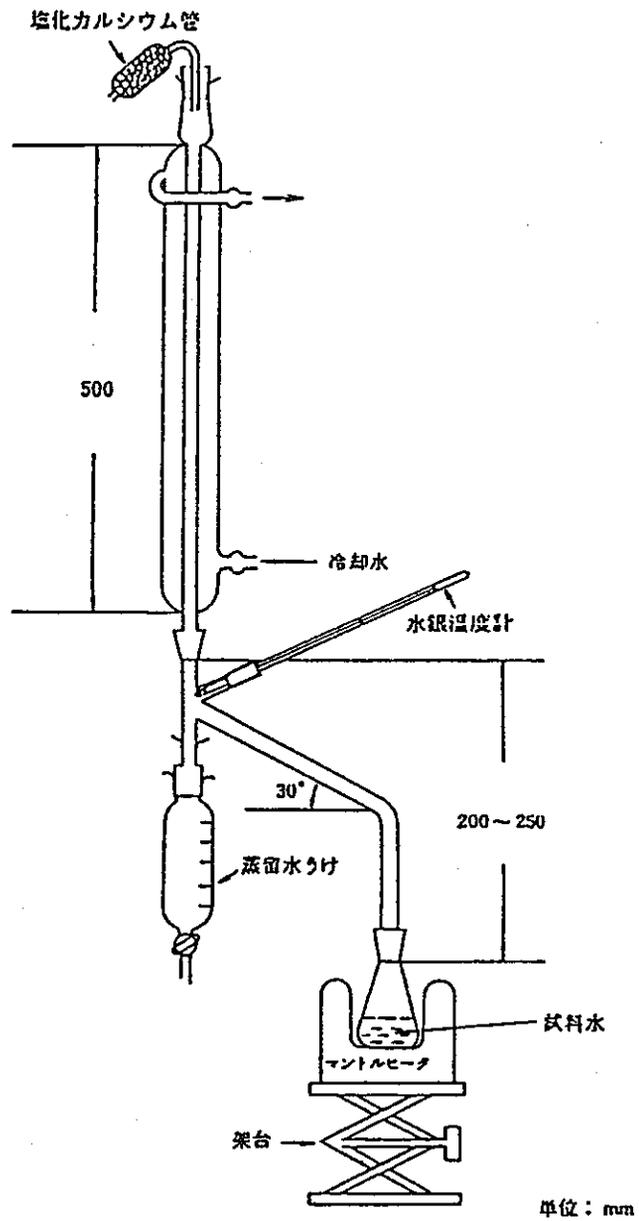


図4.1.1 トリチウム水の生成に用いられる蒸留器

## 4.2 炭素-14

環境中の炭素-14の物理化学形は極めて多様である。環境試料中で炭素-14は安定炭素（炭素-12、炭素-13）と混じり合って存在している。そのため、炭素-14を分析するには試料から炭素をまず回収する必要がある。多くの場合、環境試料に応じた適当な方法で炭素を二酸化炭素に変換してアルカリ溶液に吸収させる。そして、炭素は炭酸塩の沈殿として回収される。この炭酸塩は再び酸で分解して二酸化炭素として発生させ、以下に示すような測定法に供されることになる。先に述べたように環境中の炭素-14の物理化学形は多様であるので、それらの形態に合った前処理法を取ることが必要となる。

### 4.2.1 液体シンチレーションカウンターを用いた測定法

#### (1) 二酸化炭素吸収法<sup>1-3)</sup>

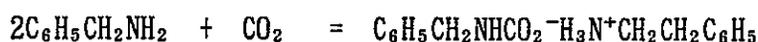
この方法は炭素-14を二酸化炭素として二酸化炭素吸収剤（表4.2.1参照）に化学的に固定し、その放射能を液体シンチレーションカウンターで測定する。二酸化炭素吸収剤にはアミン系の試薬が用いられる。代表的な試薬として、

- ① モノエタノールアミン
- ② フェネチルアミン

がある。

これらの試薬は二酸化炭素を吸収してカルバメイトを生成する。

例としてフェネチルアミンの反応式を示す。



反応は化学量論的であるから吸収操作中の二酸化炭素吸収剤の損失や水分の混入などを避けることができれば、二酸化炭素吸収剤の重量増加分は固定された二酸化炭素量に等しいと見なすことができる。これらの二酸化炭素吸収剤はトルエンベースシンチレータと混和しないのでメタノールを加えて放射能測定試料を調製しなければならない。それらの混合比は一概には言えないが、二酸化炭素吸収剤と同量程度のメタノールを加えることが多いようである。

サンプルオキシダイザー用試薬として販売されている二酸化炭素吸収剤があるので、これらを使用することも可能である。市販されている二酸化炭素吸収剤を表4-2-1に示す。NEN社は現在製造販売を中止している。これらの二酸化炭素吸収剤は炭素-14を用いたトレーサー実験を対象とし、環境試料中の炭素-14の分析を対象としてい

ない点に注意する必要がある。バックグランド、計数効率などに問題がなければ環境試料にも利用できると考えられる。これらの吸収剤には専用のシンチレータが合わせて販売されているので、それらを利用すれば放射能測定用試料を簡便に調製することができる。環境レベルの炭素-14の測定にはなるべく多くの炭素を固定して放射能測定試料とすることが望ましい。低バックグランドの大容量の液体シンチレーションカウンター（アロカ、LBシリーズ）を用いて100mlのテフロンバイアルを使用したときの測定試料中の炭素量を比べてみる。フェネチルアミンを25ml（メタノール25mlとトルエンベースシンチレータ50mlを加える）を使用した場合、理論的には約1.2gの炭素量となる。一方、市販の二酸化炭素吸収剤、例えばパッカー社（OXSORB E）を50ml（専用のシンチレータ50mlを加える）使用すれば最大2.88gの炭素を含むことができる。

二酸化炭素吸収法は以下に述べるベンゼン合成法やメタノール合成法に比べると操作が簡便である。

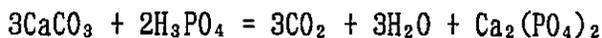
## (2) ベンゼン合成法<sup>4)</sup>

ベンゼンは液体シンチレーション測定では優れた放射能測定特性を示し溶媒としてよく利用される。環境試料中に含まれる炭素からベンゼンを合成すれば精度よく炭素-14を測定できることになる。又、ベンゼンは一分子中に6個の炭素原子を含むことから測定に供する炭素量も高い。しかし、ベンゼンを合成するには多くのステップを踏む必要があり、真空系を備えた合成装置や熟練した合成技術も必要である。

ベンゼン合成は次のようなステップで行なわれる。

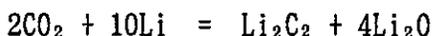
### ・二酸化炭素の発生

炭酸カルシウムの酸分解によって二酸化炭素を発生させる。



### ・リチウムカーバイドの生成

高温で二酸化炭素と金属Liを反応させリチウムカーバイドを作る。



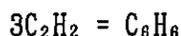
### ・アセチレンの生成

リチウムカーバイドと水を反応させアセチレンガスを発生させる。



- ・ベンゼンの合成

触媒を用いてアセチレンの三重合によりベンゼンを作る。



触媒には酸化バナジウムアルミナペレットや三価クロムアルミナペレットなどが使用される。

合成したベンゼンはPPOなどの蛍光剤を直接溶解させて測定することもできるし、トルエンやベンゼン（炭素-14を含まない試薬）ベースのシンチレータ溶液を加えて測定してもよい。ベンゼン 1 ml は 0.8g の炭素に相当するから、10ml のベンゼンを合成して測定すれば 8 g の炭素を測定試料は含んでいることになる。

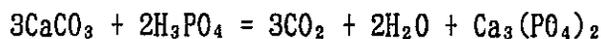
### (3) メタノール合成法<sup>5)</sup>

二酸化炭素からメタノールを合成し液体シンチレーションカウンターで測定する方法である。メタノールは液体シンチレーション測定では弱いクエンチャであるが、その合成はベンゼンほど複雑ではない。

以下に合成法を示す。

- ・二酸化炭素の発生

炭酸カルシウムの酸分解によって二酸化炭素を発生させる。



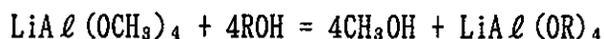
- ・二酸化炭素と水素化リチウムアルミニウムの反応

発生させた二酸化炭素を水素化リチウムアルミニウムを懸濁させたジエチルカルビトール溶液に吹き込み室温で数時間反応させる。



- ・メタノールの合成

十分なブチルカルビトールを加え加熱してメタノールを合成する。



ここで  $R=CH_3(CH_2)_3(OCH_2CH_2)_2OH$  である。

- ・メタノールの精製

精密蒸留法によりメタノールを分離精製する。

回収したメタノールにトルエンベースのシンチレータを加えて液体シンチレーションカウンターで放射能を測定する。水素化リチウムアルミニウムと二酸化炭素の反応

は無水で行なわなければならない。そのため発生させた二酸化炭素は完全に水分を除いた後反応系に導入する必要がある。

メタノール 1 ml は炭素 0.3g に相当するから、10ml のメタノールを合成すれば 3 g の炭素を測定試料は含んでいることになる。

#### 4.2.2 ガスカウンターを用いた測定法

気体計数法による炭素-14の測定は炭素-14が発見された当時から行なわれてきた。測定は炭素-14を含んだ計数ガスを計数管に封入した内部計数法で行なう。計数ガスには二酸化炭素、メタン、アセチレンなどが用いられる。

##### (1) 二酸化炭素法

炭酸カルシウムから酸で発生させた二酸化炭素を精製後計数管に封入して測定する。特に酸素やハロゲンは計数特性を著しく劣化させるので、ガスの精製は十分行なう必要がある。

##### (2) アセチレンガス法

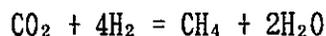
ベンゼン合成法のところで述べた方法と同じである。



炭酸カルシウムを酸で分解して発生させた二酸化炭素からリチウムカーバイドを作り、それを水と反応させてアセチレンを発生させる。精製後計数管に封入して放射能を測定する。

##### (3) メタン法

メタンは計数特性のよい気体である。炭酸カルシウムを酸分解して発生させた二酸化炭素に 4 倍量の水素ガスを混合後、625°C に加熱したルテニウムアルミナペレット触媒を通してメタンを合成する<sup>9, 10)</sup>。



精製後計数管に封入して放射能を測定する。

何れの計数ガスを用いる場合も、ガスを封入したセンターカウンターの周りはガードカウンターで取り囲み逆同時計数で測定する必要がある。ガードカウンターの計数ガスにはプロパンやメタンが使用される。センターカウンターの容積を 1 リッターとし 1 気圧でガスを封入したとき、測定に供される炭素量は、それぞれ、二酸

化炭素では約0.5g、アセチレンでは約1g、メタンでは約0.5gである。

#### 4.2.3 加速器質量分析法<sup>6)</sup>

加速器質量分析法の特徴は数mg程度の少量の試料で測定できることである。装置は高価で大型で国内では名古屋大学と東京大学にある。名古屋大学年代測定試料研究センターに設置してあるタンデトロン加速器質量分析計の構成図を図4.2.1に示す<sup>6)</sup>。加速器質量分析計は、試料に含まれる炭素-14の個数を直接数える。セシウム・スパッタ負イオン源を用いて炭素試料から炭素原子を負イオンとして取り出し、それを加速器で加速してエネルギーを与える。さらに、質量分析装置で質量数13と14のイオンを選び出し、質量数13のイオンは炭素-13として電流値を測定し、質量数14のイオンは重イオン検出器で炭素-14であることを確認してその数を数える。試料中の炭素-14/炭素-13比を測定する。

加速器質量分析法では試料に含まれる炭素を化学処理により純粋な炭素に変換した後、高純度の銀粉と混ぜ、圧縮して炭素ターゲットをつくりイオン源の内部にセットする。そのため、環境試料の前処理は放射能測定のために行なわれる前処理法と途中までは同じである。二酸化炭素から元素状炭素への還元は950°Cに加熱した金属マグネシウムで行なう。生体試料などは炭化して利用される。加速器質量分析法は年代測定において強力な武器となっているが、考古学試料の前処理過程における現代炭素の混入が問題となっている。吉川ら<sup>7)</sup>は金属マグネシウム中の不純物炭素含有量など前処理過程における現代炭素混入を詳細に調べた。加速器質量分析法は極く微量の試料を対象としているため不純炭素の混入は測定値を誤らせる可能性が高い。そのため、環境中の炭素-14の評価に際してもこの点には注意を払う必要である。

バックグランド測定は天然鉱物から取りだしたグラファイトが利用される。

#### 4.2.4 バックグランドと炭素-14標準物質

炭素-14を含まない炭素源としては大理石や石炭が用いられる。大理石は酸で分解することで簡単に二酸化炭素を得ることができる。石炭は燃焼して二酸化炭素にする。試料中にウランが含まれていると発生した二酸化炭素に娘核種のラドンが混入することがあるので注意が必要である。炭素-14濃度がわかった標準物質としてNBSシュウ酸がある。シュウ酸の分解は硫酸と過マンガン酸カリウム混液で行なう。

参考文献

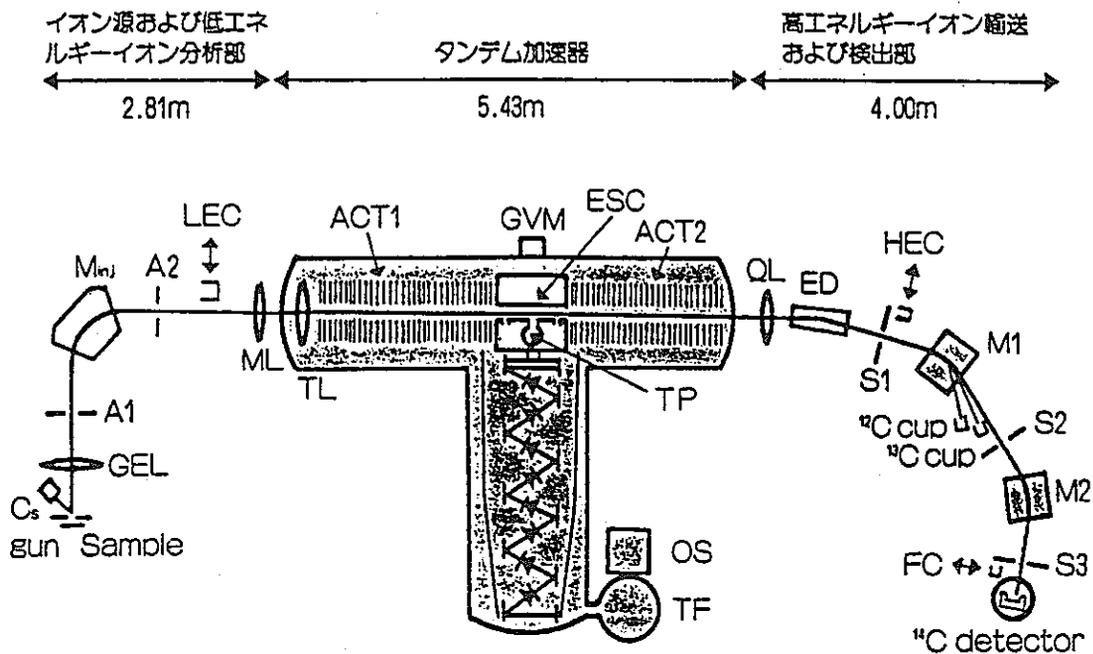
- 1) Momoshima, N and Y. Takashima  
"Analytical Procedures for C-14 Activity Measurement in the Atmosphere"  
Mem. Fac. Sci. Kyushu Univ., Ser. C, 15, 219-224 (1986)
- 2) 加治俊夫、宇都宮賢次、杉原真司、百島則幸、大崎 進、高島良正  
"放射性有機廃液焼却装置周辺における<sup>3</sup>H、<sup>14</sup>C濃度の測定"  
Radioisotopes, 36, 597-600 (1987)
- 3) Eichinger, L and W. Rauert  
"Large-Volume Liquid-Scintillation Counting of Environmental <sup>14</sup>C Using  
the CO<sub>2</sub> Absorption Technique and <sup>3</sup>H in Water", IAEA-SM-252/38, 497-510  
(1981)
- 4) 阪上正信  
"ベンゼン合成によるC-14測定"  
金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設研究概要・年次報告、  
LLRL-AR-1 (1977)
- 5) Nystrom, F. R., W. Yanko and W. G. Brown, Am. Chem. Jour., 70, 4419 (1948)
- 6) 中村俊夫、中井信之  
"名古屋大学タンデトロン加速器質量分析計による<sup>14</sup>C測定の現状"  
名古屋大学加速器質量分析計業績報告書 (I)、86-95 (1988)
- 7) 吉川英樹、佐藤和宏、吉田邦夫、小林紘一、三浦太一、今村峯雄、本間義夫、  
中原弘道、野崎正  
"炭素-14加速器質量分析用試料作製時における現代炭素の混入"、  
BUNSEKI KAGAKU, 36, 755-760 (1987)
- 8) Nydal, R., K. Lovseth and F. H. Skogseth, "Transfer of Bomb <sup>14</sup>C to the Ocean  
Surface", Radiocarbon, 22, 626-635 (1980).
- 9) Burke, W. H. Jr., W. G. Meinschein, Rev. Sci. Instr., 26, 1137 (1955)
- 10) Fairhall, A. W., W. R. Schell, and Y. Takashima, Rev. Sci. Instr., 32, 323  
(1961)
- 11) Bauer, J. E., P. M. Williams, and E. R. M. Druffel, Nature, 357, 667 (1992)

表 4. 2. 1 市販の二酸化炭素吸収剤一覧

二酸化炭素吸収剤	吸収能力	シンチレータ	製造元
CARBO-SORB	5. 8mmol/ml	PERMA FLUOR +	PACKARD
CARBO-SORB E	4. 8mmol/ml	PERMA FLUOR +	PACKARD
LUMASORB I	5. 8mmol/ml	CARBOLUMA	LUMAC
LUMASORB II	4. 8mmol/ml	CARBOLUMA	LUMAC
OXISORB-CO <sub>2</sub>	5. 7mmol/ml	OXIPREP-2	NEN**
OXIFLUOR-CO <sub>2</sub>	1. 4mmol/ml	*	NEN**

\* シンチレータは二酸化炭素吸収剤に含まれている。

\*\*製造中止



■ $^{14}\text{C}$ 測定用タンデム加速器質量分析計の構成

- A1、A2、S1、S2、S3：ビームスリット、
- GEL、ML、TL、QL：静電レンズ系、
- LEC、HEC、 $^{12}\text{C}$  cup、 $^{13}\text{C}$  cup、FC：電流計測用ファラデイカップ、
- Cs gun：セシウム・スパッタ負イオン源、
- $M_{inj}$ 、M1、M2：質量分析用電磁石、
- ACT1、ACT2：加速管、
- GVM：発電型高電圧計、
- ESC：荷電変換カナル、
- TP：荷電変換ガス（アルゴンガス）のトラップ用ターボ分子真空ポンプ、
- OS：高電圧発生用の発振器、
- TF：高電圧発生用のステップアップトランス、
- ED：静電型15°デフレクター。

図 4. 2. 1 名古屋大学に設置されている加速器質量分析装置

### 4.3 テクネチウム-99

テクネチウム-99 (半減期 $2.14 \times 10^5$ 年)は大気圏内核実験のフォールアウトとして広く環境中に分布している。そして最近では、原子力発電所の運転に伴い核分裂で核燃料棒中に生成し蓄積されている。原子力発電所から環境への放出は極めて少ないと考えられる。しかし、核燃料再処理過程においてテクネチウム-99の環境放出が見られ、特にヨーロッパの核燃料再処理施設からは周辺環境へ放出されている。

#### 4.3.1 測定方法

化学分析した試料中のテクネチウム-99の測定(検出)には以下のような方法が用いられる。

- |          |           |
|----------|-----------|
| ① 放射能測定法 | ④ ICP-MS法 |
| ② 放射化分析法 | ⑤ 核反応法    |
| ③ 質量分析法  | ⑥ その他の測定法 |

それぞれの測定法について簡単に述べることにする。

##### (1) 放射能測定法<sup>2, 6, 7, 10-17, 19, 20)</sup>

これまでもっぱら放射能測定法により環境中のテクネチウム-99は分析されてきた。テクネチウム-99から放出される最大エネルギー292keVの $\beta$ 線を測定する(テクネチウム-99は $\gamma$ 線は放出しない)。環境中のテクネチウム-99は濃度が低いため逆同時計数機構を備えた低バックタイプの測定装置が使用されてきた。表4.3.1にテクネチウム-99の測定に利用されるベータ線カウンターを示す<sup>1)</sup>。

##### (a) GMカウンター<sup>2, 7, 10, 15)</sup>

この装置はバックグランドも低く、計数効率も比較的高い。しかし、エネルギー測定ができないので放射化学分析でテクネチウム-99を事前に十分精製する必要がある。テクネチウム-99であることの確認の方法の一つはアルミ吸収板で飛程を測定することである。図4.3.1にアルミ吸収板による計数値の変化を示す<sup>19)</sup>。テクネチウム-99の $\beta$ 線の半価層は約 $7\text{mg}/\text{cm}^2$ である。

##### (b) プロポーショナルカウンター<sup>13)</sup>、液体シンチレーションカウンター<sup>6, 20)</sup>、シリコン検出器<sup>7)</sup>

これらの装置はエネルギースペクトルを測定できるので、テクネチウム-99の同定は濃度が高いときは比較的容易に行なえる。しかし、一般環境試料中のテク

ネチウム-99濃度は低いため、同じようなβ線エネルギーを持つ核種が混入していると弁別できないので、やはり放射化学分析で十分に精製することが要求される。液体シンチレーションカウンターは高い計数効率を与えるがバックグランドが高いことが難点である。

## (2) 放射化分析法<sup>3)</sup>

テクネチウム-99を原子炉で照射し  $^{99}\text{Tc}(n, r)^{100}\text{Tc}$  反応で生成したTc-100 (半減期15.8秒) を測定する。テクネチウム-99は熱中性子に対して約20バーンの核反応断面積を持っている。生成したTc-100の94%は3.4MeVのβ線を出して $^{100}\text{Ru}$ になる。残りの6%は2.2MeVのベータ線と600keVと540keVのガンマ線を放出して壊変する。生成するTc-100の半減期が短いため照射後速やかに分離精製を行ない測定する必要がある。

Fotira<sup>3)</sup> は生成したTc-100をレニウムを担体として水酸化鉄スキャベンジングで精製後、TPAC沈殿として回収した。照射後40-45秒で分離精製を行ないそのβ線を測定した。熱中性子フラックス  $5 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{s}$  の時、検出限界は  $2 \times 10^{-11} \text{ g}$  ( $1.2 \times 10^{11} \text{ atom}$ ) であると述べている。

## (3) 質量分析法<sup>5)</sup>

この方法には表面電離型質量分析法 (TIMS) と誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) がある。質量分析法では直接その質量99を測定する利点はあるが、ルテニウムに質量99の安定同位体が存在しているので、低レベルのテクネチウム-99を測定するにはルテニウムを分離することが必要である。

TIMSでは同位体希釈分析法で測定する。AndersonとWalker<sup>5)</sup> はTc-97 (半減期  $2.6 \times 10^6$  年) をスパイクし、テクネチウム-99を分離精製した後イオン交換樹脂 (0.3mm 直径) に吸着させた。そしてモリブデンの汚染を避けるためレニウムフィラメントを用いて測定した。モリブデンには質量97の安定同位体が存在しているので化学分析でモリブデンを除くことが必要である (図4.3.2参照)。彼らはTc-97を917pgをスパイクしたとき1pgのテクネチウム-99を10%の誤差で測定している。

## (4) ICP-MS法<sup>26)</sup>

放射能測定法に変わる新しい方法として近年ICP-MSによる測定が提案されている。ICP-MS測定器は高温のアルゴンプラズマ中に試料水を導入し生成したイオンを質量分析装置で測定する。従来のTIMSと異なり水試料を直接測定で

きることが特徴である。又、TIMSではTc-97を用いた同位体希釈分析法で分析するが、ICP-MSではTc-95mやテクネチウム-99mをトレーサーとして利用することができる。質量を測定するのでトレーサー由来の転換電子やガンマ線などは妨害しないが、低濃度のテクネチウム-99を分析するには試料は十分精製する必要がある。ルテニウムに質量99の安定同位体があるため特にルテニウムの完全な除去が必要である。

#### (5) 核反応法

電子線加速器を用いる<sup>22)</sup>、 $^{99}\text{Tc}(\gamma, \gamma')$ 、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ や原子炉を用いた<sup>23)</sup>  $^{99}\text{Tc}(n, n')$ 、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ などが提案されているが、環境試料に適用できるかどうかはこれからの問題である。

#### (6) その他の測定法<sup>24)</sup>

グラファイト原子吸光法(GFAAS)、誘導結合プラズマ発光分析法(ICP-OES)、吸光光度法などがあるが、どれも一般環境レベルのテクネチウム-99測定には感度が不足していると考えられる。Brownら<sup>25)</sup>は核燃料廃棄物からテクネチウム-99の漏洩に関してICP-OESによる測定を検討した。そして水試料の $10^{-7}$ - $10^{-5}$ Mのテクネチウム-99を測定できるとした。そして、試料処理が簡単ですむこと、またICP-MSでは問題となるルテニウムも妨害しないと述べている。

### 4.3.2 化学分析法

初期にはルテニウムやモリブデンを多く含む鉱物<sup>10)</sup> (地球生成期から存在する始原テクネチウムの探索)やピッチブレンド<sup>11)</sup> (自発核分裂のテクネチウム-99)が分析された。その後核実験のフォールアウトや核燃料再処理施設から放出される環境中のテクネチウム-99が対象となってきた。

Tcは酸化的雰囲気では過テクネチウム酸( $\text{TcO}_4^-$ )の陰イオンとして、還元的雰囲気では酸化テクネチウムとして存在することから、その化学的性質を利用して分離精製が行なわれてきた。

以下によく用いられる基本的な分離精製法について述べる。多くの分析法はこれらを組み合わせたものである。

#### (1) 共沈法<sup>10, 11, 15, 18)</sup>

テクネチウムは銅を含んだ弱酸性溶液から銅に共沈させ硫化物として回収することができる<sup>10, 11)</sup>。イオン源としては硫化水素やチオアセトアミドが使用される。硫化物はアンモニア水と過酸化水素の混合溶液<sup>11)</sup>に溶解させるか、濃硝酸<sup>10)</sup>で分解できる。

過テクネチウム酸はTPAC (tetraphenylarsonium) と反応して沈殿を生成する。この場合テクネチウムはトレーサー量であるためレニウムなどを担体として使用する<sup>11)</sup>。

(2) 水酸化鉄スキャベンジング<sup>2, 4, 6, 10, 19)</sup>

鉄を含んだ酸性溶液のpHをあげて水酸化鉄を生成させる。この時テクネチウム-99は過酸化水素などの酸化剤で過テクネチウム酸としておく。過テクネチウム酸は水酸化鉄に共沈しないので水酸化鉄に共沈する元素から分離することができる。

(3) 陰イオン交換法<sup>2, 4, 6, 8, 10, 11, 14, 16, 18-20)</sup>

過テクネチウム酸は陰イオン交換樹脂(例えばDowex 1x8)に強く吸着される。分離は濃い硝酸や過塩素酸が用いられる。ほとんどの金属は陰イオン交換樹脂に吸着しないが、モリブデン、ルテニウム、レニウムなどは吸着される。

(4) 溶媒抽出法

溶媒抽出法ではテクネチウムを有機相に抽出し、多くの元素から分離することができる。Boyd and Larson<sup>21)</sup>は各種溶媒について検討を加えたが、以下のような有機溶媒が主に使用されている。

(a) MEK (メチルエチルケトン)<sup>10, 11, 14, 17)</sup>

試料水は5N水酸化ナトリウム溶液とし、数回MEKで抽出を行なう。テクネチウムはMEKをそのまま蒸発させるか、あるいは少し水を加えて蒸発させ回収する。MEKにクロロフォルムを加え水で逆抽出することもできる。

(b) 5% TIOA/キシレン<sup>8, 9, 15)</sup> (tri-isooctylamine/xylene)

1N硫酸溶液から5% TIOA/キシレンに抽出する。テクネチウムの逆抽出は水酸化ナトリウム溶液で行なう。

(c) シクロヘキサノン(cyclohexanone)<sup>2, 4, 6)</sup>

中性か弱酸性溶液からシクロヘキサノンに抽出する。逆抽出はシクロヘキサノンに同量以上のシクロヘキサン(cyclohexane)を加え水で行なう。

(d) TBP (tributyl phosphate)<sup>7, 20)</sup>

弱酸性溶液からTBPに抽出する。逆抽出はTBPにキシレンを加えて水酸化ナトリウム溶液で行なう。

(5) 電着<sup>2, 7, 8, 10, 14, 15)</sup>

GMカウンターなどの放射能測定ではテクネチウム-99は金属板に電着される。RileyとSiddiqui<sup>14)</sup> やMatsuokaら<sup>10)</sup> は0.7Mしゅう酸と0.45M硫酸を電解液として200mA/cm<sup>2</sup>で8-9時間電着している。電着率はほぼ100%である。ChuとFeldstein<sup>16)</sup> は塩酸とアンモニア水でpH4.2 (メチルレッド)に調整後1200mA/cm<sup>2</sup>で電着した。Chenら<sup>8)</sup> は0.5NのNaOHを電解液とし300mA/cm<sup>2</sup>で5時間電着した。又、Holmら<sup>7)</sup> は2NのNaOHから電着しているが電着率の変動を報告している。

#### 4.3.3 トレーサー

テクネチウムには安定元素が存在しないので、どのようにして回収率を決定するかが分析上の大きな問題点である。これまで以下の様なトレーサーが使用されてきた。

(1) <sup>99m</sup>Tc<sup>7, 8, 20)</sup>

テクネチウム-99mはMo-99 (半減期66時間)の娘であり、半減期6時間でテクネチウム-99に壊変する。医療用に広く使用されているので入手は比較的容易である。回収率は<sup>99m</sup>Tcからの140keV (放出率89%)のガンマ線をNaI (Tl)かGeで測定する。あるいは、Surface Barrier Detectorで転換電子 (119 keV, 135keV)を測定する。問題点は半減期が6時間と非常に短いため分析時間が制限を受けることと、親核種モリブデン-99の半減期もそれほど長くないためトレーサーを長期間保存できないことである。テクネチウム-99の測定はテクネチウム-99mの減衰を待って行なわれるが、壊変して生じたテクネチウム-99の寄与はほとんど問題とならない。

(2) <sup>95m</sup>Tc<sup>4, 19)</sup>

Tc-95mは半減期61日であり、生成したTc-95 (半減期20時間)はEC壊変でMo-95 (安定)になる。回収率は<sup>95m</sup>Tcからの204keV (放出率62%)のガンマ線をGeで測定して行なう。試料のテクネチウム-99を放射能測定で求めようとするとき<sup>95m</sup>Tcは妨害すると考えられる。Calmetら<sup>19)</sup>は低濃度の試料を分析するとき<sup>95m</sup>Tcは使用できないとしている。

質量分析法でテクネチウム-99を測定するときはTc-95mは妨害しないため有

効なトレーサーとなる。難点はTc-95mは簡単に入手できないことであり使用者自身で作る場合が多い。製造には加速器が必要で、 $^{93}\text{Nb}(\alpha, 2n)^{95\text{m}}\text{Tc}$ や $^{95}\text{Mo}(p, n)^{95\text{m}}\text{Tc}$ 反応で作る。

(3)  $^{97\text{m}}\text{Tc}$

Tc-97mは半減期89日であり半減期  $2.6 \times 10^6$ 年のTc-97になる。回収率はSurface Barrier Detectorで転換電子(74keVと94keV)を測定する。テクネチウム-99を放射能測定で求めるときは転換電子が妨害する。Kayeら<sup>2)</sup>はアルミ板を被せ転換電子をカットしてテクネチウム-99を測定した。計数効率 $14\text{mg}/\text{cm}^2$ のアルミ板を使用したときは使用しないときの約25%であった。製造は同位体濃縮したRu-96を原子炉で熱中性子照射して作る。

(4)  $\text{Re}^{10-13}$

レニウムはテクネチウムと化学的挙動が似ていることからトレーサーとして利用される。レニウムの回収率は重量測定やICP測定で決定される。レニウムは非放射性で入手は容易だという利点があるが、問題点は化学的挙動が良く似ているとは言え厳密にはテクネチウムと同じ元素ではない点である。

(5) トレーサーなし<sup>6, 14, 15, 17, 18)</sup>

以上述べたようにテクネチウム-99分析には決定的なトレーサーがないため低濃度の環境試料についてはトレーサーを使用しない場合もある。回収率はあらかじめその分析法について適当なトレーサーを用いて決定しておく。実際的には分析毎に回収率は変動することが問題である。

## 参考文献

- 1) 小村和久、宮下文和、KURRI-TR-362、75-80 (1991)
- 2) Kaye, J. H., J. A. Merrill, R. R. Kinnison, M. S. Rapids and N. E. Ballou. (1982). "Radiochemical Determination of Technetium-99." Anal. Chem. 54: 1158-1163.
- 3) Foti, S., E. Delucchi and V. Akamian. (1972a). "Determination of picogram amounts of  $^{99}\text{Tc}$  by Neutron activation analysis." Anal. Chim. Acta. 60: 261-268.
- 4) Foti, S., E. Delucchi and V. Akamian. (1972b). "Determination of picogram amounts of Technetium in Environmental Samples by Neutron activation analysis." Anal. Chim. Acta. 60: 269-276.
- 5) Anderson, T. J. and R. L. Walker. (1980). "Determination of Picogram Amounts of Technetium-99 by Resin Bead Mass Spectrometric Isotope Dilution." Anal. Chem. 52: 709-713.
- 6) Koide, M. and E. D. Goldberg. (1985). "Determination of  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{63}\text{Ni}$  and  $^{121\text{m}}\text{+}^{126}\text{Sn}$  in Marine Environment." J. Environ. Radioactivity. 2: 261-281.
- 7) Holm, E., J. Rioseco and M. Garcia-Leon. (1984). "Determination of  $^{99}\text{Tc}$  in Environmental Samples." Nucl. Instru. Meth. 223: 204-207.
- 8) Chen, Q. J., A. Aarkrog, H. Dahlgaard, S. P. Nielsen, H. L. Jensen, J. Bruun, A. H. Pedersen and K. Mandrup. (1988). "Determination of  $^{99}\text{Tc}$  in Environmental Samples by Anion Exchange. , RISO-M-2739
- 9) Chen, Q. J., A. Aarkrog, H. Dahlgaard, S. P. Nielsen, E. Holm, H. Dick and K. Mandrup. (1989). "Determination of  $^{99}\text{Tc}$  in Environmental Samples by Solvent Extraction at Controlled Valence." J. Radioanal. Nucle. Chem. Art. 131: 171-187.
- 10) Matsuoka, N., T. Umata, M. Okamura, N. Shiraishi, N. Momoshima and Y. Takashima. (1990). "Determination of Technetium-99 from the Aspect of Environmental Radioactivity." J. Radioanal. Nucl. Chem. Art. 140: 57-73.
- 11) Kenna, B. T. and P. K. Kuroda. (1964). "Technetium in Nature." J. Inorg. Nucl. Chem. 26: 493-499.

- 12) Attrep, M., J. A. Enochs and L. D. Broz. (1971). "Atmospheric Technetium-99." *Environ. Sci. Tech.* 5: 344-345.
- 13) Ehrhardt, K. H. and J. M. Attrep. (1978). "Technetium-99 in the Atmosphere." *Environ. Sci. Tech.* 12: 55-57.
- 14) Riley, J. P. and S. A. Siddiqui. (1982). "The Determination of Technetium-99 in Seawater and Marine Algae." *Anal. Chim. Acta.* 139: 167-176.
- 15) Golchert, N. W. and J. Sedlet. (1969). "Radiochemical Determination of Technetium-99 in Environmental Water Sample." *Anal. Chem.* 41: 669-671.
- 16) Chu, N. Y. and J. Feldstein. (1984). "Radiochemical Determination of Technetium-99." *Talanta.* 31: 809-813.
- 17) Hirano, S., M. Matsuba and H. Kamada. (1989). "The Determination of  $^{99}\text{Tc}$  in Marine Algae." *Radioisotopes.* 38: 186-189.
- 18) Boyd, G. E. and Q. V. Larson. (1956). "Report on the Occurrence of Technetium on the Earth's Crust." *J. Phys. Chem.* 60: 707-715.
- 19) Calmet, D., F. Patti and S. Charmasson. (1987). "Spatio-Temporal Variations in the Technetium-99 Content of *Fucus serratus* in the English Channel During 1982-1984." *J. Environ. Radioactivity.* 5: 57-69.
- 20) Otsuji, M., R. Seki and N. Ikeda. (1987). "Determination of  $^{99}\text{Tc}$  in Some Soil Samples." *Radioisotopes.* 36: 473-474.
- 21) Boyd, G. E. and Q. V. Larson (1960) *J. Phys. Chem.*, 64, 988-996
- 22) Sekine, T., K. Yoshihara, L. Lakosi, Z. Nemeth, and A. Veres (1991), *Appl. Radiat. Isot.*, 42, 149-53
- 23) Ikeda, N., R. Seki, M. Kamemoto and M. Otsuji. (1988), *Radioisotopes.* 37, 42-43
- 24) Brown, R. M., S. E. Long and C. J. Pickford(1988), *Sci. Total Environ.*, 70, 265-274
- 25) Brown, R. M., C. J. Pickford and N. J. Portsmouth. (1985). "Determination of 99-Technetium in Aqueous Samples by Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectrometry. , AERE M-3477
- 26) Kim, C.-K., R. S. Seki, S. Morita, Y. Takaku, Y. Igarashi, M. Yamamoto and .

(1991). "Application of a High Resolution Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer to the Measurement of Long-lived Radionuclides." J. Anal. At. Spectrom. 6: 205-209.

表4.3.1 テクネチウム-99の測定に利用されるベータ線カウンター (小村 1991)

Detector Type	Anti-Coin or Coinc. Counter	Type/Author Institution or Company	Specification			Other Remarks
			BKG for Tc-99	Energy Resoln.	Effic. for Tc-99	
GM Counter	GM Counter ? Anti-Coin	LB 5100 Tennelec, USA	<0.5 cpm	No		Expensive
	GM Counter Anti-Coin	GM-25-5 Riso, Denmark	<0.3 cpm 0.15cpm	No	42%?	Cheap
GM Counter Plastic Scint.	Plastic Scinti.- Anti-Coin GM-Coin	Pico-Beta Fuji Electric Co.	<0.3cpm  0.12cpm	No  <100keV at 624keV	<10%  <5%	Expensive  Log-Amp. Gain stability(X)
Proportional Counter	GM Counter? Anti-Coin	Bern Univ., Swiss	0.124cpm (100cc Det)	<30keV?	high	Underground 70m.w.e.
Liq. Scinti.	Liq. Scinti. Special Circuit	LKB Co., Sweden	0.9cpm for C-14	50keV?	70-80%	20ml Special Vial Log-Amp.
	Plastic Scinti.	LSC-LB-1,-2,-3 Aloka Co., Japan	2.5cpm for C-14	50keV?	70-80%	20ml Vial up to 100ml
Si-Detector	Si-Detector	Chwaszczewska IAEA-SM 87/64	0.26cpm/ cm <sup>2</sup>	9keV at 5 deg.	40%?	Noise level 20keV
	GM-Counter	Johnsen IAEA SM 87/4	0.5cpm/cm <sup>2</sup> 150-400keV	30keV?	30%?	Noise level 90keV
	No	Holm et al. IAEA SM252/6				
	NaI(Tl) Anti.	Komura et al. LLRL, Kanazawa	0.13 cpm	18 keV	14%	Noise level 40keV

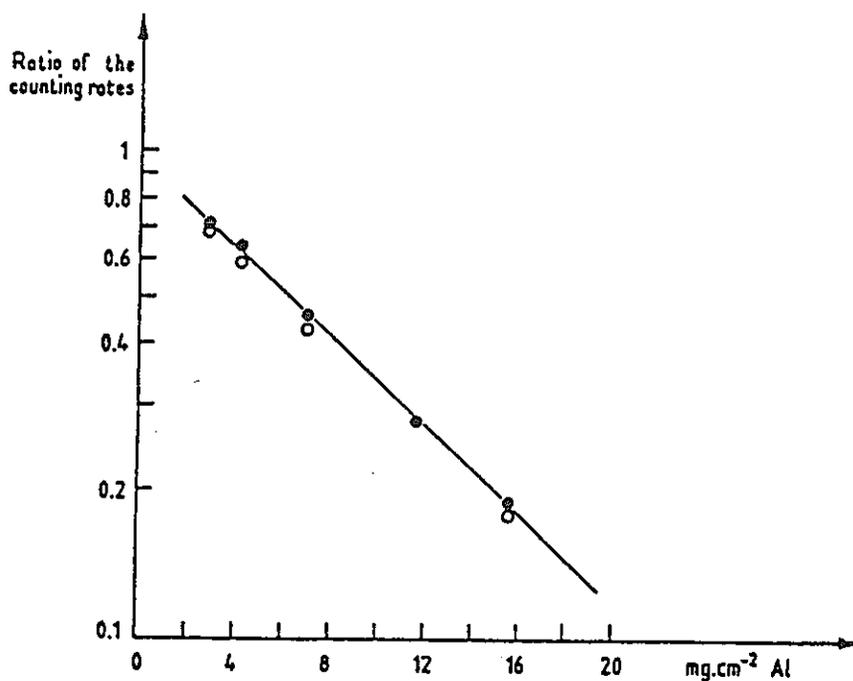


図4.3.1 アルミ吸収板によるテクネチウム-99計数値の変化 (Calmet 1987)

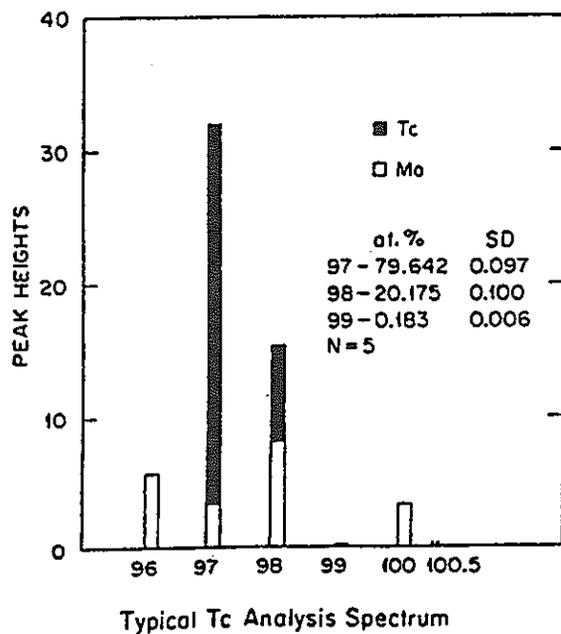


図4.3.2 表面電離型質量分析器を用いて同位体希釈分析法で測定したテクネチウム-99のスペクトル (Anderson 1980)

#### 4.4 ヨウ素-127、129、131

原子力発電所、核燃料再処理施設等の原子力平和利用施設の増加に伴い、施設から排出される放射性核種についての環境レベルの把握とそれらの核種についての環境モニタリングがより重要となってきた。その中で、放射性ヨウ素は人体に取り込まれると甲状腺に移行し、蓄積されるため、特に注目される核種のひとつである。放射性ヨウ素のモニタリング核種としては、ヨウ素-129（半減期 $1.57 \times 10^7$ ）とヨウ素-131（半減期8.04日）があげられる。ヨウ素-131は、緊急時において特に重要な核種であり、分析法についてもすでに整備され、モニタリング方法も確立しているが、ヨウ素-129の分析法はまだ整備されていない。

ヨウ素-129は、自然界において大気中のキセノンと宇宙線の相互作用により生成するほか、人工的には核分裂により生成する。この核種は、核爆発実験または核燃料再処理施設等から放出されると半減期が長く環境に蓄積するため被曝線量評価上重要な核種である。新たに再処理施設の稼働を控え、ヨウ素-129の環境レベルの把握とモニタリングのための分析法の確立が望まれている。

ヨウ素-129の分析には、通常の放射化学分析の他に、中性子放射化分析または質量分析装置を利用する方法がある。現在、環境中のヨウ素-129のレベルは低く、低エネルギー光子スペクトロメータ（LEPS）または低バックグラウンドGMカウンタ（LBC）でヨウ素-129からの放射線を直接測定する放射化学分析法では、環境試料中のヨウ素-129濃度を定量するのが困難なため、これらの定量値を得るには、より低いレベルまで定量できる中性子放射化分析法または質量分析法が利用されている。しかし、これらの高感度分析法は、原子炉の利用または質量分析装置の設置という制約があるため、早急に結果を得る必要があるモニタリングには適用しにくい方法である。ここでは調査対象試料を空气中塵埃、土壌及び農水産物（野菜、精米、牛乳及び海藻）として、放射化分析法を適用した場合の供試料と分析目標値を以下に示す。

試料名	分析供試料	分析目標値	
大気	1000cm <sup>3</sup> 以上	$< 5 \times 10^{-8}$	Bq/m <sup>3</sup>
土壌	100 g 乾土	$5 \times 10^{-4}$	Bq/kg 乾土
農水産物			
野菜	50 g 乾物	$5 \times 10^{-4}$	Bq/kg 生
海藻	50 g 乾物	$5 \times 10^{-4}$	Bq/kg 生
精米	100 g	$5 \times 10^{-4}$	Bq/kg 生
牛乳	5 ℓ	$1 \times 10^{-5}$	Bq/ ℓ

以下に述べる環境試料中の放射性ヨウ素と安定ヨウ素の放射化分析法は、環境試料中の放射性ヨウ素及び安定ヨウ素を中性子放射化分析によって定量する方法である。

通常の分析法は試料中にI-125 を回収率補正用として添加し、放射性ヨウ素と安定ヨウ素の同時定量を行うが、本法では、まず放射性ヨウ素と安定ヨウ素の比を求め、別に試料を取って安定ヨウ素を定量し、この2つの結果から試料中の放射性ヨウ素を計算する。そのため本法は、別に安定ヨウ素を定量する必要があるが、照射試料を調製する際に、ヨウ素含量が少ない試料について担体を添加できる事から、後の化学操作が容易になるという利点がある。

#### 4.4.1 試料の前処理（捕集、燃焼・捕集、溶媒抽出－PdI<sub>2</sub>沈殿）

70～80℃で乾燥・粉碎した試料を用い、石英管中で加熱燃焼させ、発生する気体状ヨウ素を活性炭中に捕集する。溶媒抽出により分離・精製後ヨウ化パラジウム沈殿として分離し、LEPS計測試料または中性子放射化分析試料とする。

牛乳試料については、イオン交換樹脂による捕集方法についても記載する。

##### 4.4.1.1 土壌

###### 1. 試薬、器具及び装置

## 試薬

ヨウ素担体溶液 ( $I^-$ :100mg/ml)  
活性炭 (クロマトカラム用)  
水酸化ナトリウム溶液 (24 w/v%)  
亜硝酸ナトリウム溶液 (10 w/v%)  
四塩化炭素  
亜硫酸水 (6%)  
硝酸  
塩酸  
塩化パラジウム溶液 ( $Pd^{2+}$ :30mg/ml)

## 器具

燃焼管 (石英製、図4.4.1に示す。)  
トラップ管 ( " )  
三角フラスコ (容量50ml、100ml)  
空気冷却管 (長さ30cm)  
ビーカ (容量50ml)  
分液漏斗 (容量100ml)  
分離型ろ過器  
デンケータ  
円板 (アクリル製)  
リング (テフロン製)  
マイラーフィルム

## 装置

燃焼装置 (図4.4.2に示す。)

乾燥器

天秤

## その他

酸素ガス

水素ガス

石英ウール

## 2. 分析操作

### 【加熱燃焼及び活性炭へのヨウ素の捕集】

- (1) 70～80℃で乾燥・粉碎した乾燥細土約 100 gをはかりとり、燃焼装置内管に充填する。<sup>1)</sup> L E P S用試料の場合は、さらにヨウ素担体20m gを添加する。燃焼装置の燃焼管及び燃焼装置を図4.4.1及び図4.4.2に示す。
  - 1) 試料は、内管 (C T - 1) の中に多少すき間を残して充填する (D)。これは、発生した水分、タール等でガスが流れなくなることを防ぐためである。
  - 2) 燃焼管外管 (C T - 2) にヨウ素捕集用活性炭 3 gを隙間無く充填する (E)。両端を石英ウールで止める。また、アフターバーナーの部分に石英ウールを10～20cmの幅でゆるく充填する。
  - 3) 外管 (C T - 2) を装置にセットし、内管 (C T - 1) を入れ、酸素ガスを内管および外管各々に50ml/min程度の流速で流す。<sup>2)</sup>
    - 2) 管内の圧力は0.1 kg/cm<sup>2</sup>程度になる。0.2kg/cm<sup>2</sup>を越えるようならば異常であり、操作を中止する。
  - 4) 電気炉 (C) を 150℃、電気炉 (B) を 950～1000℃の温度に設定する。
  - 5) 酸素ガスの流量を外管 200ml/分、内管50ml/分とする。電気炉 (A) を試料の右端に設置し、温度を少しずつ上昇させる。700℃になったところで、燃焼の様子を見ながら電気炉 (A) を少しずつ左に移動させる。<sup>3)</sup>
    - 3) 管内の圧力には、外管、内管で差はなく、0.2kg/cm<sup>2</sup>を越えることはほとんどない。もし差があったり、圧力が異常に高い場合は、危険なので操作を中止する。
  - 6) 電気炉 (A) が試料の左端まで移動したならば、その温度を1000℃まで上昇させ、さらに2時間燃焼させる。
  - 7) 外管左端のボールジョイント部分に、活性炭 0.5 gを充填したトラップ管 (C T - 3) をつなぎ、クランプで止める。<sup>4)</sup> 外管 (C T - 1) を右にずらし、トラップ管 (C T - 3) を (C) に、(E) を (B) の左端に位置するようにする。酸素ガスの流量は、外管、内管の合計で50～100ml/minとする。
    - 4) シリコングリースを用いる。
  - 8) 電気炉 (B) の温度を 500℃に設定し、電気炉 (A) のスイッチを切る。
  - 9) 活性炭 (E) が着火したならば、燃焼状態と圧力を見ながら酸素ガスの流量を

調節する。流量は最大でも  $200\text{ml}/\text{min}$  とし、圧力は  $0.25\text{kg}/\text{cm}^2$  以下とする。<sup>5)</sup>

5) 燃焼には約1時間を要する。

(10) 燃焼が終了したら、ジョイント部等をハンドバーナーで加熱し、燃え残ったタール等を燃焼させるとともにヨウ素をトラップ管内の活性炭に追いつめる。<sup>6)</sup>

この操作で燃焼操作を終了する。

6) この際、トラップ管内の活性炭を加熱しないようにする。

#### 4.4.1.2 農水産物（精米、葉菜）

燃焼装置の各部の名称については、土壌試料の場合と同じである。

(1) 精米は粉末にしたものを  $100\text{g}$ 、葉菜は粉末にしたもの  $50\text{g}$  を精秤し、燃焼装置内管に詰める (D)。この際、回収率補正用にヨウ素担体 (KI: I-,  $500\mu\text{g}$ ) を加え、よく混合する。また、燃焼中にガスの流れを止めることのないように、十分にすき間をあけて詰める。

(2) 燃焼管外管に吸着用活性炭  $3\text{g}$  をすき間なく詰め (E)、両端を石英ウールで止める。また、電気炉 (B) の部分に石英ウールを  $10\sim 20\text{cm}$  の幅でゆるく詰める。

(3) 外管を装置にセットし、内管を入れ窒素ガスを内管に  $50\text{ml}/\text{min}$  程度流す。このとき内管の圧力は  $0.1\text{kg}/\text{cm}^2$  程度になる。 $0.2\text{kg}/\text{cm}^2$  を越えるようならば異常であり操作を中止する。

(4) 電気炉 (C) を  $150^\circ\text{C}$ 、電気炉 (B) を  $950\sim 1000^\circ\text{C}$  にする。

(5) 外管に酸素ガスを  $500\text{ml}/\text{min}$ 、内管に窒素ガスを  $100\text{ml}/\text{min}$  で流し、電気炉 (A) を右端に置き、 $600^\circ\text{C}$  までガラスの発生を見ながらゆっくりと昇温する。

(6) 炭化の進み具合を見ながら電気炉 (A) を左側に移動し、順に炭化して行く。移動が速いと、圧力が上昇したり、電気炉 (B) のアフターバーナーで処理できずにタールが活性炭にまで達し、ガスが流れにくくなってしまう。

(7) 炭化が終了したら、電気炉 (A) を再度右端にもどし、内管の窒素ガスに徐々に切りかえる。試料に着火し、安定して燃え出したならば、内管を酸素のみにし  $250\text{ml}/\text{min}$  にする。

(8) 試料の燃焼にしたがって、電気炉 (A) を左に移動させる。試料が一応燃焼したら、精米の場合には  $1000^\circ\text{C}$  まで昇温し、葉菜の場合は  $700^\circ\text{C}$  のままでなるべく長時

間全体を加熱し、より完全に灰にする。(なお、回収率を良くするためには炭化を完全にし、燃焼したあと、電気炉(A)を1000℃まで昇温して長時間加熱するのが良いが、内管の寿命を短くする。)

- (9) 燃焼が終了したら土壌と同様の方法でトラップ管(CT-3)の0.5gの活性炭に吸着するまで処理する。
- (10) 内管内に残留物が多く残る場合には磁製乳鉢にとり、粉碎して三角フラスコに入れ6M水酸化ナトリウム溶液を加え、30cm程度の空気冷却管をつけてホットプレートの上で1時間異常ゆるやかに加熱振とうさせて残っているヨウ素を浸出する。
- (11) トラップ管内の0.5gの活性炭は、50mlの三角フラスコに入れ6M水酸化ナトリウム溶液20mlを加え、30cm程度の空気冷却管をつけて、ホットプレートの上で1時間異常上ゆるやかに振とうしヨウ素を浸出する。
- (12) 操作11)及び12)で浸出した水酸化ナトリウム溶液をそれぞれ別々にガラスフィルター(GA-100)でろ過する。洗浄は純水で十分に行う。ろ過の後に両者を合わせ、四塩化炭素20mlを入れた300ml程度の分液ロートに入れる。(別々にろ過するのは、残渣を浸出した時に予期しない成分が出てきたときに備えるためである。)
- (13) 以下、【溶媒抽出による分離・精製及びLEPS計測試料の作製】の操作を行い、照射試料を調製する。

#### 4.4.1.3 海産生物、海藻

- (1) 粉碎した試料30~50gを精秤し、燃焼管内管につめる。燃焼中にガスの流れを止めることがないように、十分すき間をあけて詰める。試料中にヨウ素が比較的多く存在するため担体は加えない場合も有る。少ない場合は安定ヨウ素+キャリアーヨウ素で500 $\mu$ g~1000 $\mu$ g位にする。
- (2) 以下、農作物試料の場合と同様の操作を行う。ただし、ヨウ素の量が多いのでヨウ化パラジウムを沈殿させる際に加える塩化パラジウム溶液の量は十分に多く添加する。

#### 4.4.1.4 牛乳、陸水等

- (1) 試料5 $\ell$ をビーカーに入れ、ヨウ素担体(I:500 $\mu$ g)、5%亜硫酸ナトリウム溶液10mlを加え、スターラ400rpmで30分間攪拌する。

- (2) イオン交換樹脂 Dowex1×8 100～200メッシュを20ml加え、スターラーで400rpm、60分間攪拌する。静置後、デカンテーションにより、試料を別の5ℓビーカーに移し、樹脂を回収する。
- (3) 新たにイオン交換樹脂 Dowex1×8 100～200メッシュを加えスターラーで同様に60分間攪拌する。静置後、デカンテーションにより、樹脂を回収し、操作2)の樹脂と合わせる。
- (4) 樹脂を温水にて2～3回洗浄して40℃程度の温度で乾燥（多少湿っている程度まで）する。
- (5) この樹脂を燃焼装置の内管につめる（D）。（流通をよくするためなるべく薄くつめた方が良い）
- (6) 燃焼管外管に吸着用活性炭3g（E）をすき間なく詰める。両端は、石英ウールで止める。また、電気炉（B）の部分に石英ウールを10～20cmの幅でゆるく詰める。
- (7) 外管を装置にセットし、内管に入れ、内管に窒素を50ml/min、外管に酸素を50ml/min程度の速度で流し、電気炉（C）の温度を150℃に、電気炉（B）の温度を950～1000℃にする。

このとき内管、外管の圧力は、0.1kg/cm<sup>2</sup>程度になる。0.2kg/cm<sup>2</sup>を越えた場合は異常であり操作を中止する。

- (8) 外管の酸素流量を500ml/minにし、電気炉（A）を200℃程度まで上げ、樹脂を乾燥する。
- (9) 電気炉（A）を右端に置き、温度を600℃まで炭化の様子を見ながら上昇させる。この時タール分がアフターバーナーを越えて活性炭まで行かないようにする。
- (10) 電気炉（A）を左に移行し、全体を炭化する。
- (11) 電気炉（A）を右にもどし、内管に酸素を少量ずつ流し徐々に増して行く。着火したならば窒素を止め酸素だけにする。電気炉（A）徐々に左へ移動し、全体を燃焼する。酸素の流量は250ml/minの以下の範囲で調節する。
- (12) 電気炉（A）を1000℃まで上げ、完全に燃焼する。
- (13) 以下、【溶媒抽出による分離・精製及びLEPS計測試料の作製】の操作を行い、照射試料を調製する。

**【溶媒抽出による分離・精製及びLEPS計測試料の作製】**

- ① 前項(10)におけるトラップ管内の活性炭を50mlの三角フラスコに移し、水酸化ナト

リウム溶液（6 M）20mlを加える。長さ30cm程度の空気冷却管を三角フラスコに付け、ホットプレートの上で1時間以上おだやかに加熱してヨウ素を浸出させる。

- ② 冷却後、空気冷却管を取り外し、溶液をガラスフィルター（GA-100）でろ過し、水で十分に洗浄する。ろ液と洗液を合わせ、あらかじめ四塩化炭素 200mlを入れた分液漏斗に移す。
- ③ 濃硝酸約10mlを加え、pHを2～3にする。
- ④ 亜硝酸ナトリウム溶液（10%）3～5 mlを加え、<sup>7)</sup> 必要に応じてガス抜きを行い、分液漏斗を1分間振とうしてヨウ素を有機相に抽出する。<sup>8)</sup>
  - 7) このとき、ガスが発生し分液漏斗内の圧力が高くなるので注意する。
  - 8) この操作は、亜硝酸ナトリウム溶液を加えても水相が新たに着色しなくなるまで繰り返す。（2～3回の繰り返し操作を必要とする。）
- ⑤ 静置した後、有機相を水30mlを入れた別の分液漏斗に移す。
- ⑥ 残った水相に四塩素炭素20mlを加えて振とう抽出を行い、有機相を操作(5)の分液漏斗に合わせる。
- ⑦ 操作(5)及び(6)で有機相を合わせた分液漏斗を振とう洗浄後、有機相を別の水30mlを入れた分液漏斗に移す。この洗浄操作を2回繰り返す。
- ⑧ 有機相に亜硫酸水数滴を加えてヨウ素を水相に逆抽出する。<sup>9)</sup> 水相を 100mlのビーカに移し、残った有機相について、さらにもう一度同様に逆抽出を行い、水相を前のビーカに合わせる。
  - 9) 有機相にヨウ素が残っているときは褐色を呈しているので無色になるまで同じ操作を繰り返す。
- ⑨ ビーカを時計皿で覆い、ホットプレート上で10分程度加熱沸騰する。
- ⑩ 放冷後、塩化パラジウム溶液 2～3 ml（ $\text{Pd}^{2+}$ 、約 100mg）を加えてヨウ化パラジウムの沈殿を生成させ、1昼夜放置する。
- ⑪ 沈殿はガラス繊維ろ紙（QR-100）を用いてゆるやかに吸引ろ別し、沈殿を80℃に調節した乾燥器で1時間乾燥する。この試料を中性子放射化分析に使用する。
- ⑫ 操作⑪で得られた沈殿重量をはかり、ディスク状に固定してLEP S計測試料とする。

#### 4.4.2 中性子放射化分析法

$^{129}\text{I}(n, \gamma)^{130}\text{I}$  及び  $^{127}\text{I}(n, 2n)^{128}\text{I}$  反応を利用し、生成した  $^{130}\text{I}$  及び  $^{128}\text{I}$  の  $\gamma$  線スペクトルを測ることにより試料中の  $^{129}\text{I}$  及び安定ヨウ素濃度を定量する方法である。

この方法において、熱中性子束密度  $8 \times 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  で40分照射し、2000秒計測した時のヨウ素-129の検出下限値は試料当たり約  $5 \times 10^{-5} \text{ Bq}$  である。

試料中のヨウ素-129濃度が低く、より低濃度の定量が必要な場合は、複数個の前処理を行い、本章で示す照射試料作製方法により複数個を一緒にして一つの照射試料とし、分析することによってより低い濃度の定量値を得ることができる。

##### 4.4.2.1 中性子照射試料の作製

4.4.1 において、分離・精製したヨウ素を石英管に封入し、中性子照射試料とする。

###### (1) 試薬、器具および装置

省略します。

###### (2) 操作

###### 【石英管への封入】

- ① 使用するヨウ素封入装置（透明石英管製）を図4.4.3に示す。封入装置のAの部分にヘリウムガス流入栓を取りつけ、ヘリウムガスを少量流しながら管状電気炉（D）で  $100^\circ\text{C}$  に加熱するとともにバーナーを使用して石英管を加熱して水分を完全に除く。
- ② ヘリウムガス流入栓を取りはずし、Aの部分より、前処理操作で得られたヨウ化パラジウム沈殿を入れ、その後ろに石英ウールを充填する。

電気炉（D）による加熱温度を  $80^\circ\text{C}$  に下げ、ヘリウムガスを  $100 \text{ ml}/\text{min}$  程度の流量で10分間流す。<sup>1)</sup>（図4.4.4）

1) 管内各部から完全に空気を追い出すためである。

- ③ ヘリウムガス流量を約  $30 \text{ ml}/\text{min}$  以下に下げ、U字管の部分を液体窒素を満たしたデュワー瓶中に浸ける。
- ④ 電気炉（D）を  $600^\circ\text{C}$  まで昇温し、その温度に約1時間保持する。<sup>2)</sup>
  - 2) ヨウ化パラジウムが加熱分解して気体状ヨウ素となって移動し、液体窒素で冷却されたU字管の部分に、ヨウ素単体としてにトラップされる。
- ⑤ デュワー瓶を少し下げ、ハンドバーナーを用いてBの部分等を加熱してヨウ素

をU字管の下の部分に集めた後、デュワー瓶を元の位置に戻し、電気炉（D）の電源スイッチを切る。

- ⑥ ヘリウムガスを止めるとともに、Aの部分からガス流入栓を取りはずした後、Eの部分を手バーナーで溶断して封じる。<sup>3)</sup>
  - 3) ピンホールができないよう注意して行う。
- ⑦ Aの部分にガス流入栓を取り付け、流入口を真空ポンプに接続して管全体を減圧にする。Fの部分を手バーナーで溶断して封じた後、真空ポンプを取りはずす。<sup>4)</sup>
  - 4) この操作は、ヨウ素がトラップされているU字管部分が、常に液体窒素の液面下にあることに注意しながら行う。
- ⑧ 溶断部分に触れないように注意して封入装置を取りはずし、上部（AとFの間）をクランプではさみ、E-Dの中間部分を液体窒素中に浸ける。
- ⑨ 液体窒素より上部に出た部分をバーナーで加熱し、ヨウ素を液面付近に移動させる。<sup>5)</sup>
  - 5) 管内は減圧になっているので加熱しすぎるとガラス壁が内側に引き込まれてしまうので注意を要する。
- ⑩ Dの部分まで液体窒素中に浸けながらDの部分を手バーナーで溶断し、照射試料とする。<sup>6)</sup>
  - 6) 溶断した部分は、液体窒素に入れて急激に冷やさない事。ひずみが生じて割れることがあるので注意を要する。

#### 【比較標準試料の作成】

- ① 放射性ヨウ素の標準溶液を希釈し、さらに適量の安定ヨウ素（KI）を加えて中性子放射化分析用比較標準試料溶液を調製する。<sup>7)</sup>
  - 7) 比較標準試料溶液は、50mlの中に放射性ヨウ素が0.02Bq、安定ヨウ素  $7 \times 10^{-4}$  g程度が含まれるものを調製する。
- ② 比較標準試料溶液50  $\mu$ lを石英製アンプルに分取する。石英製アンプルを液体窒素で冷却し、さらに真空ポンプを用いて減圧しながら手バーナーで溶断して封入し、中性子放射化分析用比較標準試料とする。

#### 4.4.2.2 中性子照射及び放射線計測

原子炉を用いて熱中性子照射を行う。照射・冷却後、試料中のヨウ素を溶媒抽出法により再度分離精製し、ヨウ化パラジウム沈殿として分離して、Ge半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリーを行い、試料中のヨウ素-129濃度を定量する。

(1) 試薬、器具及び装置

省略します。

(2) 操作

【中性子照射】

- ① 作製した照射用試料及び比較標準試料を原子炉で熱中性子照射する。
- ② 照射条件の目安を以下に示す。

熱中性子束密度  $\sim 10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$

照射時間 約40分

冷却時間 1日

【計測試料の作製（照射後の分離精製）】

- ① 照射後の石英アンプルを、ヨウ素担体 (KI :  $\text{I}^{-1}10\text{mg}$ ) 四塩化炭素 1 ml、臭素担体 (KBr :  $\text{Br}^{-}$ , 50  $\mu\text{g}$ )、硝酸 1 ml 及び亜硫酸ナトリウム (5%) 溶液を予め入れたステンレス容器中で割り、十分混合した後、水 30 ml、四塩素炭素 10 ml を入れた分液漏斗に移す。<sup>8)</sup>
- 8) ステンレス容器は水と四塩化炭素を用いてよく洗浄し、洗液は分液ロートに合わせる。
- ② 分液漏斗を振とうし、ヨウ素を有機相に抽出し、静置後、別の分液漏斗に有機相を移す。
- ③ 水相に四塩化炭素 20 ml を加え、再び振とうして、残存するヨウ素を有機相に抽出する。静置後、有機相を先の分液漏斗に合わせ、水 20 ml を加えて洗浄する。有機相を水 20 ml を入れた別の分液漏斗に移す。<sup>9)</sup>
- 9) ガラス片が存在したならば、ろ紙 (1PS) を用いてろ別する。
- ④ 色が消えるまで亜硫酸水を少量ずつ加えながら振とうし、ヨウ素を水相に逆抽出する。
- ⑤ 水相をビーカーに移し、ホットプレート上で数分間沸騰させた後、塩酸 1 ml と塩化パラジウム溶液を加え、ヨウ化パラジウム沈殿を生成させる。<sup>10)</sup>
- 10) 塩化パラジウムの量は含まれているヨウ素量に対し十分な量とする。

- ⑥ 沈殿が熟成するのを待った後、吸引ろ過により、ガラスフィルター（GC-90）上にヨウ化パラジウム沈殿をマウントし、ポリエチレン袋に封入して計測試料とする。
- (7) 計測試料は、Ge半導体検出器のエンドキャップ上で約2万秒計測する。
- (8) 計測終了後、この計測試料中の安定ヨウ素量を非破壊放射化分析により定量し、化学回収率を求める。まず、安定ヨウ素 $7 \times 10^{-4}$  g程度を含む比較標準試料を作成（操作方法は安定ヨウ素分析比較標準試料の作成を参照）し、計測済み試料と共に放射化する。計測及び計算は、安定ヨウ素分析の回収率を求める方法と同じである。これから、計測試料中の放射性ヨウ素量を算出する。

#### 4.4.2.3 安定ヨウ素の分析方法

##### 【安定ヨウ素分析用比較標準試料の作製】

比較標準試料には次の3種類がある。

- ① 照射後化学処理した試料中のヨウ素を定量するための比較標準試料（STD）
- ② ヨウ素の化学回収率を求める目的で再放射化の時に使用する比較標準試料（RST）
- ③ 非破壊放射化分析によりヨウ素を定量する場合の比較標準試料（S）

①および③については、ヨウ化カリウム溶液に微量の亜硫酸ナトリウムを加え、さらに微量の水酸化ナトリウムによりアルカリ性にした溶液を用いる。ヨウ素濃度は $0.1 \sim 0.3 \text{ mg/ml}$ の範囲で、正確に調製する。ポリエチレン袋に計測試料と同形状に切ったろ紙（5種C）を入れ、①の場合にはこの容器を $20 \mu\text{l}$  ③の場合には $100 \mu\text{l}$ を正確にとってしみ込ませ、封入する。

②については、ヨウ化カリウム溶液に微量の亜硫酸ナトリウムを加え、さらに微量の水酸化ナトリウムによりアルカリ性にした溶液を用いる。ヨウ素濃度は土壌分析用には、 $200 \text{ mg/ml}$ その他の試料の分析用には $20 \text{ mg/ml}$ とする。計測試料と同じガラスフィルター（GC-90）を入れ、土壌の場合は $50 \mu\text{l}$ 、その他の場合には $200 \mu\text{l}$ を正確にとってしみ込ませ封入する。

なお、化学処理の際に加えるヨウ素担体は、これと同じ溶液を用いる。

##### (1) 土壌試料中の安定ヨウ素の分析

- ① 風乾細土10gを分取し、磁製乳鉢で100メッシュ以下に粉碎する。これより約0.5gを正確に分取し厚いポリエチレン袋に封入する。袋の大きさは、比較標準試料と同じ大きさ（同じ条件で照射できる）とする。
- ② 試料を熱中性子束密度  $5.5 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  で5分照射する。照射直後は $^{28}\text{Al}$ が多量に生成しているため、5分程度は近づかずに放置する。
- ③ 試料をフード内で融剤（ $\text{KOH}$  3g+ $\text{KNO}_3$  1g）を入れたニッケルツボ（30ml）に移しヨウ素担体溶液（ $\text{KI}:\text{I}^-$ ，10mg）を加え電気コンロ（600W）で加熱乾燥後、バーナーを用いて溶融する。ルツボ内の溶融物が均一になったならばバーナーから離し、ぬらした紙タオルの上に置いて冷却する。次亜塩素酸ナトリウム溶液（有効塩素量10%）0.1mlを加え2分程度煮沸かして融成物を溶かし、遠心分離して上澄液をビーカーに移す。
- ④ 塩酸（1+1）10mlを加え加熱する。この時、シリカ等の不溶物が析出した場合は、吸引ろ過等により除去する。
- ⑤ 6%亜硫酸ナトリウム溶液を一旦液がかっ色になるが直ちに無色となるまで加える。
- ⑥ 塩化パラジウム溶液（ $\text{Pd}^{2+}$ ，30mg）を加え、生じたヨウ化パラジウム沈殿を分離型フィルターを用い吸引ろ過によりガラスろ紙（GC-90）にマウントする。
- ⑦ 厚いポリエチレン袋に封入して計測試料とする。
- ⑧ 直ちにゲルマニウム半導体検出器を用いて0.443MeVの $\gamma$ 線エネルギーを計測する。この時、計測試料は、沈殿を下に向けて検出器のエンドキャップ上にアクリル板等で密着させる。また、計測時間は、試料中のヨウ素含量にもよるが1～5分程度である。

照射終了から計測開始まで通常1～2時間程度を要する。

- ⑨ 比較標準試料を同様の条件で照射し、計測する。ただし、照射時間は5分程度で良く冷却時間は必要としない。
- ⑩ 回収率を求めるため、計測終了した計測試料を再度放射化し、計測する。この時の比較標準試料（RST）は化学処理時に加えたヨウ素担体と同量とする。ただし、照射時間は30秒程度とし、試料と比較標準試料は同時に照射する。

計測は計数誤差を2%以下となる様十分計数する。通常、試料は10cm程度検出器から離し計測時間は1分程度である。

(2) 精米、葉菜、海産物試料中の安定ヨウ素の分析

- ① 乾燥粉碎した試料から精米は1.5 ~ 2 g、葉菜は0.5 ~ 1 g、海産物は0.2 ~ 0.5 gを正確に分取し、厚いポリエチレン袋に封入して照射試料を作成する。袋の大きさは同じ大きさにする。
- ② 熱中性子束密度  $1.5 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  で精米については、含まれるヨウ素量が少ないため10分間照射する。葉菜は3分程度でも分析可能である。その他は  $5.5 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  で5分間照射する。通常の場合、照射後直ちにフード内に運び化学分離を行う。
- ③ 照射後、試料を 300ml コニカルビーカに移し、ヨウ素担体溶液 (KI:I<sup>-</sup>, 10mg) および次亜塩素酸ナトリウム溶液 (有効塩素量10%) 10mlを加え、振り混ぜた後、短足ロートをビーカの口に差し込み、電気コンロ (600 W) 上で沸騰し分解する。途中、次亜塩素酸ナトリウム溶液をさら5~10mlずつ数回追加する。ただし総量で30ml以上を加えると、後の操作がしにくくなる。(塩が濃くなる)
- ④ 塩酸 (1 + 1) で酸性にする。過剰に加えると、ヨウ素が気体となって放出するので注意が必要である。約2分間沸騰してから、溶液中の残留物をGA-100フィルターをはさんだ分離型フィルターにグラスウールをつめたものを用い、吸収ろ過により除去する
- ⑤ 以下、土壌試料中の安定ヨウ素の分析5)以降の操作と同様である。

(3) 海藻及び安定ヨウ素の多い試料中の安定ヨウ素の分析

- ① 乾燥粉碎した試料から 0.5~1 gを正確に分取し、ポリエチレン袋に封入し照射試料を作製する。袋の大きさは比較標準試料と同じにする。なお、通常は照射後直接計測するので、ポリエチレン袋は二重にする。
- ② 海藻は通常含まれるヨウ素が多いので、照射時間は熱中性子束密度を  $5.5 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  で1分程度とする。その他は5分から10分とする。
- ③ 照射後、外側のポリエチレン袋を除き新しいポリエチレン袋に封入して、Ge検出器で計測する。
- ④ 比較標準試料 (S) を照射し、試料と同じ位置で計測する。

#### (4) 牛乳、陸水、海水中的の安定ヨウ素の分析

- ① 試料 3.5ml をポリエチレン容器に正確に分取し照射試料とする。
- ② 海水は熱中性子束密度  $5.5 \times 10^{11} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  で5分照射する。
- ③ 牛乳、陸水は熱中性子束密度  $1.5 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$  で5分～10分照射する。
- ④ 照射後、直ちにフード内で容器の蓋を開き、ヨウ素担体溶液 (KI:I<sup>-</sup> 10mg) を入れ蓋をしてゆるやかに振り 300ml コニカルビーカに移す。少量の水で容器を洗いコニカルビーカに中の試料と合わせる。
- ⑤ 次亜塩素酸ナトリウム溶液 (有効塩素量10%) 10ml を入れ、電気コンロを用いて加熱分解する。
- ⑥ 以下、精米、葉菜試料中の安定ヨウ素の分析<sup>4)</sup>以降の操作と同様である。

#### 4.4.2.4 放射能濃度の計算

試料及び比較標準試料について、ピーク面積を特定の時刻 (例えば照射終了時) での照射による放射能の生成と計測までの減衰を補正した量を求め、比例計算により計測試料中の安定ヨウ素を求める。化学処理をした試料については、計測終了後、化学処理操作において担体として添加したヨウ素量と同量または同程度の量 (既知量) の比較標準試量として再度放射化し、計測試料中のヨウ素量を求め化学回収率を算出し、補正する。

以下に試料中の安定ヨウ素及び放射性ヨウ素の計算手順を示す。

##### (1) 安定ヨウ素 ( $^{127}\text{I}$ ) の定量

- ① 次式により化学回収率 Y を求める。

$$Y = \frac{N_A}{N_s}, \quad \Delta Y = Y \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta N_A}{N_A}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_s}{N_s}\right)^2}$$

$$N_A = \frac{S_A}{1 - e^{-\lambda t_{1A}}} \cdot e^{-\lambda t_{2A}} \cdot \frac{t_{1A}}{t_{0A}} \cdot f \cdot (1 - e^{-\lambda t_{3A}})$$

$$\Delta N_A = N_A \cdot \frac{\Delta S_A}{S_A}$$

$$N_s = \frac{S_s}{1 - e^{-\lambda t_{1s}}} \cdot e^{-\lambda t_{2s}} \cdot \frac{t_{1s}}{t_{0s}} \cdot f \cdot (1 - e^{-\lambda t_{3s}})$$

$$\Delta N_s = N_s \cdot \frac{\Delta S_s}{S_s}$$

ここで、R : 化学処理時に加えた担体量に対する比較標準試料量の比

S : ピーク面積

$\lambda$  : I-128 の壊変定数

$t_0$  : 計測時間 (ライブタイム)

$t_1$  : 計測時間 (リアルタイム)

$t_2$  : 照射終了から計測開始までの経過時間

$t_3$  : 照射時間

f : 熱中性子束密度

である。尚、添字A、S は試料、比較標準試料を表す。

② 次式により試料中の安定ヨウ素量 I を求める。

$$I = \frac{N_A}{N_S} \cdot \frac{1}{Y} \cdot \frac{1}{W} \cdot \frac{1}{D} \cdot R$$

$$\Delta I = I \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta N_A}{N_A}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_S}{N_S}\right)^2 + \left(\frac{\Delta Y}{Y}\right)^2}$$

$$N_A = \frac{S_A}{1 - e^{-\lambda t_{1A}}} \cdot e^{-\lambda t_{2A}} \cdot \frac{t_{1A}}{t_{0A}} \cdot f \cdot (1 - e^{-\lambda t_{3A}})$$

$$\Delta N_A = N_A \cdot \frac{\Delta S_A}{S_A}$$

$$N_S = \frac{S_S}{1 - e^{-\lambda t_{1S}}} \cdot e^{-\lambda t_{2A}} \cdot \frac{t_{1S}}{t_{0S}} \cdot f \cdot (1 - e^{-\lambda t_{3S}})$$

$$\Delta N_S = N_S \cdot \frac{\Delta S_S}{S_S}$$

ここで、Y : 化学回収率

S : ピーク面積

$\lambda$  : I-128 の壊変定数

$t_0$  : 計測時間 (ライブタイム)

$t_1$  : 計測時間 (リアルタイム)

$t_2$  : 照射終了から計測開始までの経過時間

$t_3$  : 照射時間

W : 供試量

D : 水分量等の係数

R : 比較標準試料中のヨウ素の量

$\Delta$  : 計数誤差

である。

(2) 放射性ヨウ素 ( $^{129}\text{I}$ ) の定量

① 次式により、比較標準試料中の安定ヨウ素量  $I_1$  を求める。

$$I_1 = \frac{N_A}{N_S} \cdot R$$

$$\Delta I_1 = I_1 \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta N_A}{N_A}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_S}{N_S}\right)^2}$$

$$N_A = \frac{S_A}{1 - e^{-\lambda t_{1A}}} \cdot e^{-\lambda t_{2A}} \cdot \frac{t_{1A}}{t_{0A}} \cdot f \cdot (1 - e^{-\lambda t_{3A}})$$

$$\Delta N_A = N_A \cdot \frac{\Delta S_A}{S_A}$$

$$N_S = \frac{S_S}{1 - e^{-\lambda t_{1S}}} \cdot e^{-\lambda t_{2A}} \cdot \frac{t_{1S}}{t_{0S}} \cdot f \cdot (1 - e^{-\lambda t_{3S}})$$

$$\Delta N_S = N_S \cdot \frac{\Delta S_S}{S_S}$$

ここで、S : ピーク面積

$\lambda$  : I-128 の壊変定数

$t_0$  : 計測時間 (ライブタイム)

$t_1$  : 計測時間 (リアルタイム)

$t_2$  : 照射終了から計測開始までの経過時間

$t_3$  : 照射時間

R : 比較標準試料中のヨウ素量

$\Delta$  : 計数誤差

である。尚、添字A、Sは試料、比較標準試料を表す。

② 比較標準試料の回収率Yを求め、比較標準試料中の放射性ヨウ素の量  $J_1$  を求める。

$$Y = \frac{I_1}{I_0}, \quad J_1 = J_0 \cdot Y$$

ここで、 $I_0$  : 化学処理前の比較標準試料中の安定ヨウ素の量

$I_1$  : 化学処理後の比較標準試料中の安定ヨウ素の量

$J_0$  : 化学処理前の比較標準試料中の放射性ヨウ素の量

- ③ 放射性ヨウ素計測試料中の安定ヨウ素 ( $I$ ) を計算する。使用する  $\gamma$  線のエネルギーは、0.389MeVである。

$$I = \frac{N_A}{N_S} \cdot I_1, \quad \Delta I = I \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta N_A}{N_A}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N_S}{N_S}\right)^2}$$

$$N_A = \frac{S_A}{1 - e^{-\lambda t_{1A}}} \cdot e^{-\lambda t_{2A}} \cdot \frac{t_{1A}}{t_{0A}} \cdot f$$

$$\Delta N_A = N_A \cdot \frac{\Delta S_A}{S_A}$$

$$N_S = \frac{S_S}{1 - e^{-\lambda t_{1S}}} \cdot e^{-\lambda t_{2A}} \cdot \frac{t_{1S}}{t_{0S}} \cdot f$$

$$\Delta N_S = N_S \cdot \frac{\Delta S_S}{S_S}$$

ここで、 $I_1$  : 比較標準試料中の安定ヨウ素の量

$S$  : ピーク面積

$\lambda$  : I-126 の壊変定数

$t_0$  : 計測時間 (ライブタイム)

$t_1$  : 計測時間 (リアルタイム)

$t_2$  : 照射終了から計測開始までの経過時間

$f$  : 中性子束密度

$\Delta$  : 計数誤差

である。尚、添字A、Sは試料、比較標準試料を表す。

- ④ 放射性ヨウ素計測試料中の放射性ヨウ素量 ( $J$ ) を計算する。

計算方法は、③と同様である。但し、 $\lambda$ にはI-130の壊変定数を使用し、解析に使用する $\gamma$ 線のエネルギーは0.536MeVである。

- ⑤ J及びIから試料中の放射性ヨウ素と安定ヨウ素の原子数比 (AR) を計算する。

$$AR = \frac{J}{I} \cdot \frac{2.64 \times 10^{13}}{4.74 \times 10^{13}}, \quad \Delta AR = AR \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta J}{J}\right)^2 + \left(\frac{\Delta I}{I}\right)^2}$$

ここで、J : 計測試料中の放射性ヨウ素の量 (pCi)

I : 計測試料中の安定ヨウ素の量 ( $\mu$ g)

⑥ 試料中の放射性ヨウ素 ( $J_N$ ) を計算する。

$$J_N = J \cdot \frac{I_x}{I} \cdot \frac{I}{W} \cdot D, \quad \Delta J_N = J_N \cdot \frac{\Delta J}{J}$$

ここで、J : 計測試料中の放射性ヨウ素の量

I : 計測試料中の安定ヨウ素の量

$I_x$  : 別法により求めた試料中安定ヨウ素濃度

W : 供試量

D : 水分等の補正項

## 参考文献

今年度検索した文献を以下に記す。

- (1) K. Bunzl, W. Kracke, R. Winkler, Determination of  $^{129}\text{I}$  in active carbon filters by combustion in a modified Wickbold apparatus, *Radiochem. Radioanal. Lett.* 46, (6), 323-330, (1981)
- (2) 野村保, 低レベル長半減期核種分析の進歩 土壤中の $^{129}\text{I}$ の定量法, *NIRS-M*, 46, 189-195(1982)
- (3) B. T. Wilkins, S. P. Stewart, A sensitive method for the determination of iodine-129 in environmental materials, *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 33, (12), 1385-1388, (1982)
- (4) L. C. Bate, J. R. Stokely, Iodine-129 separation and determination by neutron activation analysis, *J. Radioanal. Chem.*, 72, (1-2), 557-570, (1982)
- (5) R. A. Rankin, F. A. Hohorst, R. A. Nielsen, E. E. Filby and W. A. Emel, An integrated method for the determination of iodine isotopic ratios near a nuclear facility, NO. ENICO-1142, 25p, (1983)
- (6) Y. Muramatsu, Y. Ohmomo, D. Christoffers, Neutron activation analysis of iodine-129 and iodine-127 in environmental samples, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 83, (2), 353-361, (1984)
- (7) S. Meloni, G. Nogara and G. Queirazza, Iodine radionuclides in environmental samples: A procedure for their assay, *J. Trace and Microprobe Techniques*, 3, (3), 221-253, (1985)
- (8) Y. Muramatsu, S. Uchida, M. Sumiya, Y. Ohmomo, Iodine separation procedure for the determination of  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  in soil by neutron activation analysis, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 94, (5), 329-338, (1985)
- (9) V. J. Filistovich, T. N. Nedveckaite, B. J. Styra, Activation analysis of  $^{129}\text{I}$ , *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 97, (1), 123-130, (1986)
- (10) 成富満夫, 環境における元素の存在形態と形態別分別定量法 I 大気 大気中のヨウ素 *NIRS-M*, 57, 18-23, (1986)
- (11) Y. Muramatsu, Y. Ohmomo, M. Sumiya, Determination of iodine-129 and iodine-127 in environmental samples collected in Japan, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 12, (1), 181-

189, (1988)

- (12) R. S. Strebins Jr., F. P. Brauer, J. H. Kaye, M. S. Rapids, J. J. Stoffels, Neutron activation and Mass spectrometric measurement of  $^{129}\text{I}$ , J. Radioanal. Nucl. Chem., 127, (1), 59-73, (1988)
- (13) R. Seki, E. Kimura, T. Takahashi, N. Ikeda, Distribution and behavior of long-livedradioiodine in soil, J. Radioanal. Nucl. Chem., 138, (1), 17-31, (1990)
- (14) H. Katagiri, O. Narita, A. Yamato, M. Kinoshita, Low level measurement of  $^{129}\text{I}$  in environmental samples, J. Radioanal. Nucl. Chem., 138, (1), 187-192, (1990)

【最新の分析法について】

- ① R. S. Strebins Jr. らは、 $^{129}\text{I}$ 分析における熱中性子放射化分析法と質量分析法の比較を行った。放射化分析法で用いたヨウ素の単離方法を質量分析に合うように修正し、どちらの方法でも使える単離方法とした。両方法での分析結果は一致し、検出下限はどちらの分析方法でも $10^7$  原子 (2fg) であった。(文献(12))

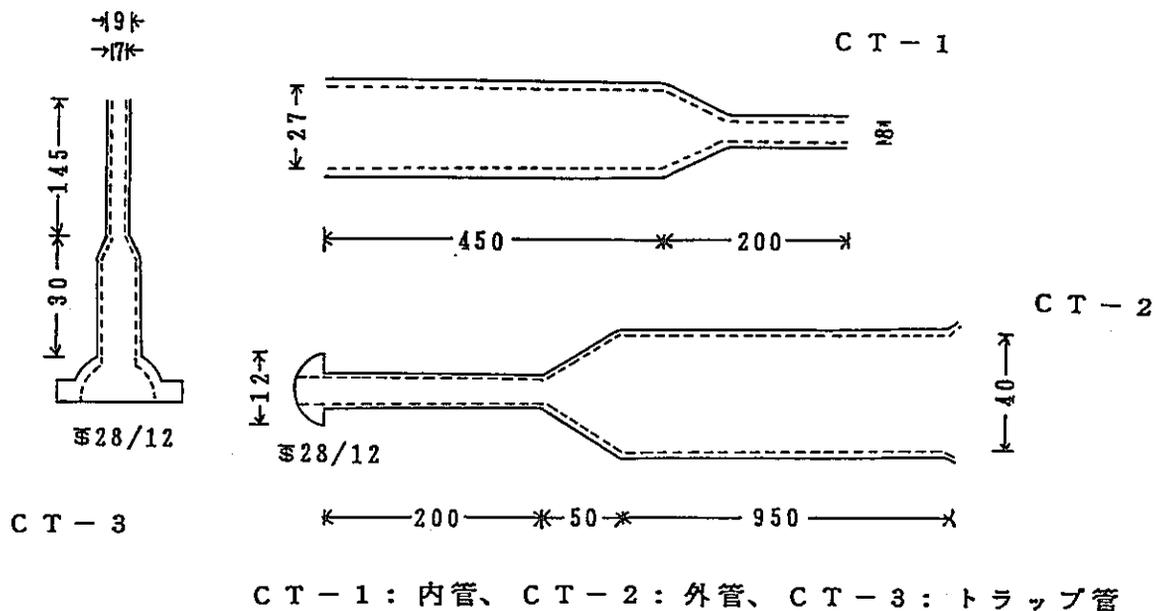
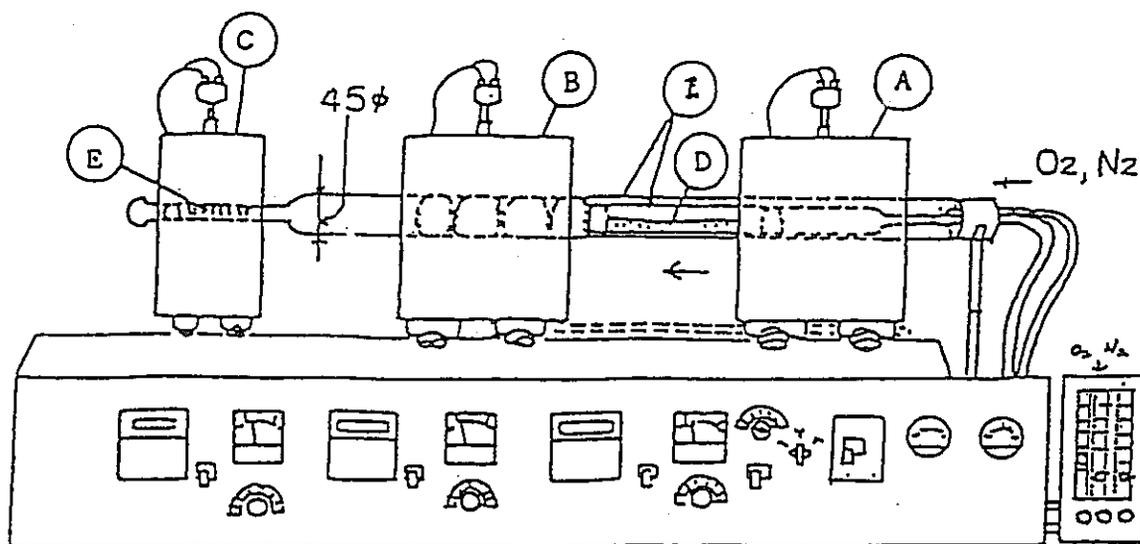


図4.4.1 燃焼管（石英製）



電気炉3台〔試料燃焼用（A）、アフターバーナー（B）及び活性炭トラップ保温用（C）〕と温度コントロール装置から構成されている。また試料燃焼用の電気炉は動力により水平移動可能である。（D）；試料、（E）：活性炭、（I）：燃焼管（内管及び外管）

図4.4.2 燃焼装置

(1) … ヨウ素封入操作手順番号

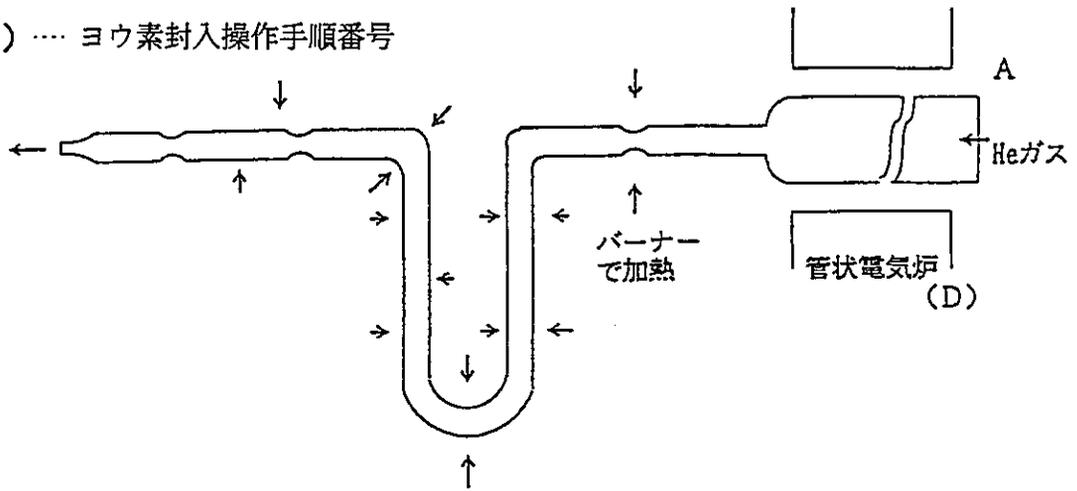


図4.4.3 ヨウ素封入装置

(2)

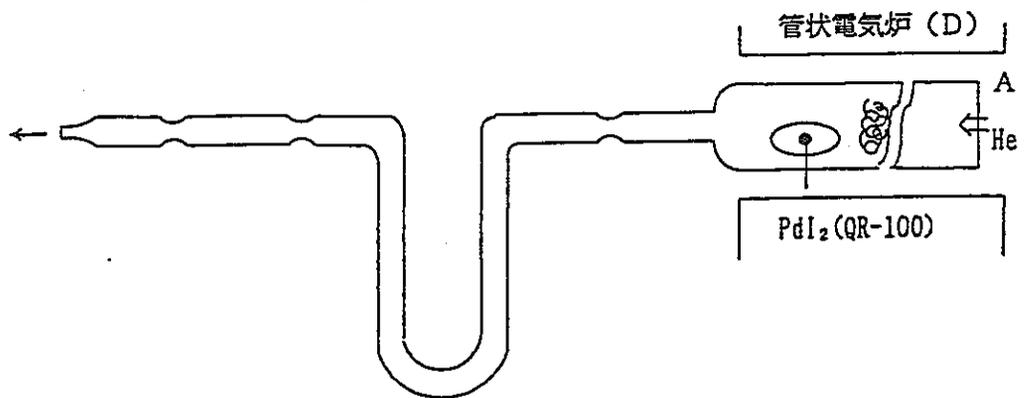
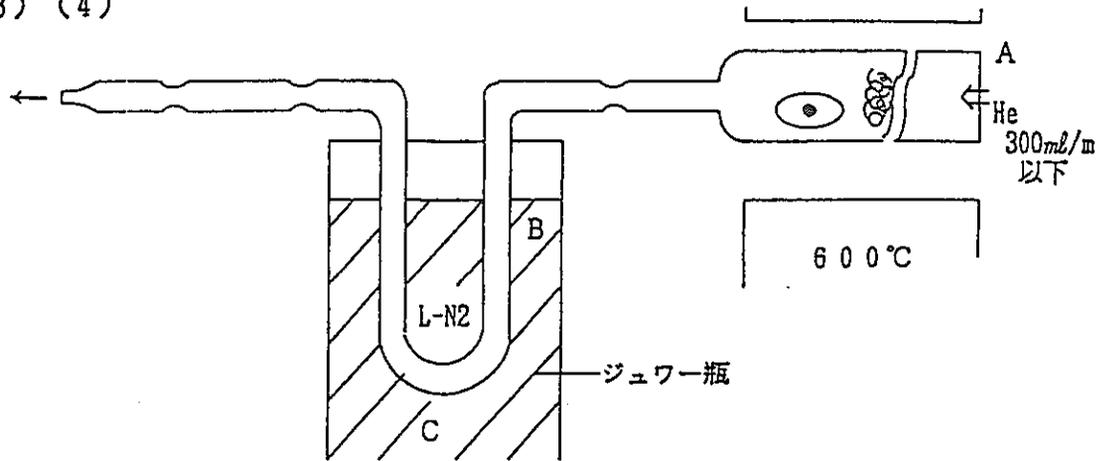
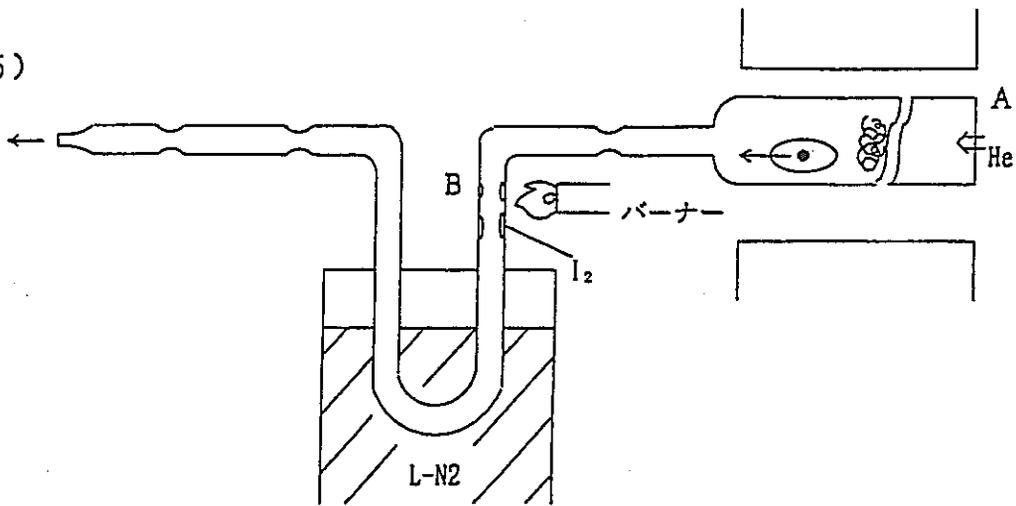


図4.4.4(1/3) ヨウ素封入工程

(3) (4)



(5)



(6)

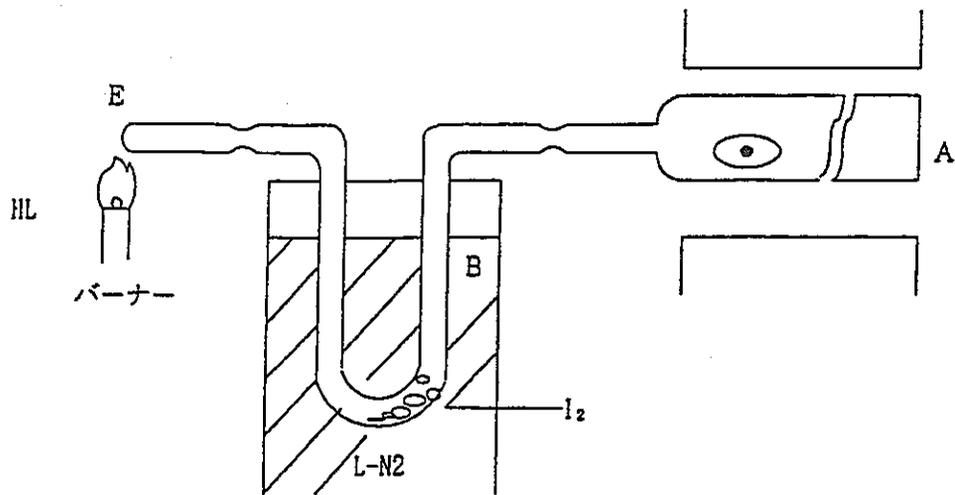


図4.4.4(2/3) ヨウ素封入工程

(7)

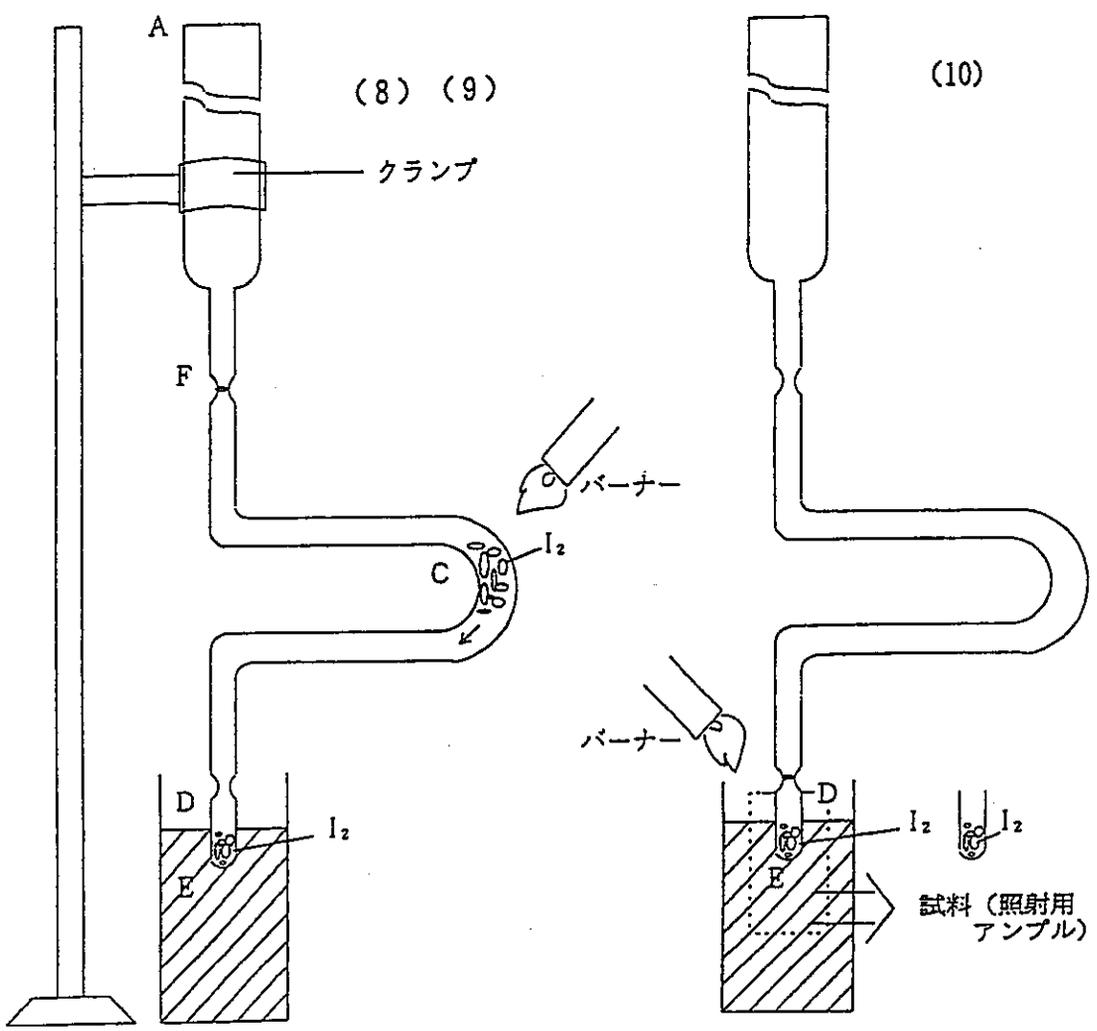
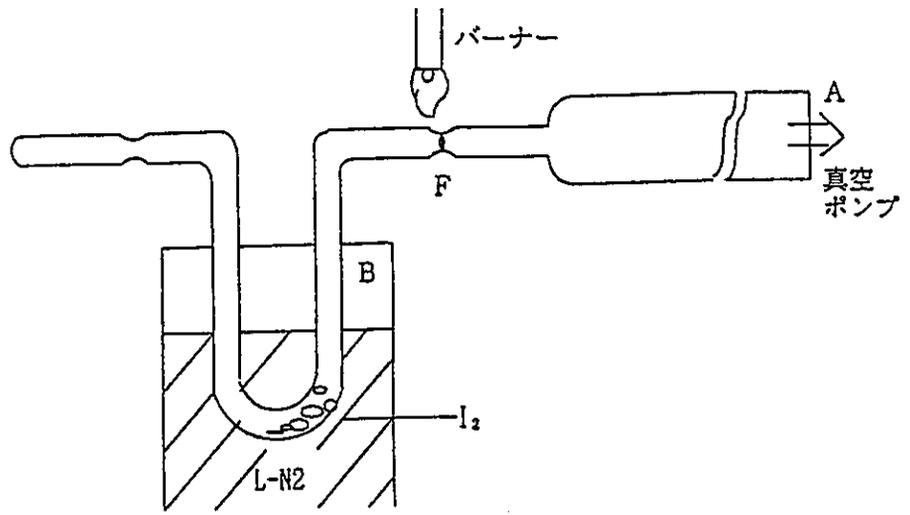


図4.4.4(3/3) ヨウ素封入工程

## 4.5 ウラン

### 4.5.1 はじめに

天然放射性元素としてのUとThは、人工放射性元素Puと同様、核原料および核燃料物質のみならず、環境放射能や保健物理の面からも近年重要性が増してきている。東西の緊張緩和に伴い非核兵器保有国としての我が国は、核物質の平和利用と保管に関するモデル国としての役割がここ2～3年大きくなる可能性がある。UとThは長い半減期を有することから通常元素同様にマクロ量での化学分析定量が可能であり、この方面の研究には原子力分野での膨大な蓄積がある<sup>1-2)</sup>。従ってこれらのうち、特にUは、通常の重量法、比色法、電気化学的方法等、古くからの分析方法はもとより、戦後急速に発達した最終的には放射線測定を行なう放射化学的分析法のいずれもが適用できる、一番広く研究されるターゲットでもある。科学技術庁が1982年（昭和57年）刊行したウラン分析法は実際の分析に当たっての手引きとして役に立つ<sup>3)</sup>。

しかしながら、UやTh同位体を親に持つ壊変系列娘孫核種は、閉鎖系における永続放射平衡状態からも分かるように、UやThの半減期に比べてより短い半減期に依存したマイクロ量での化学分析定量が一般的であり、最終的には放射能測定による同定定量が適している（表4.5.1参照）。従って、放射平衡が確認できる試料からは、娘諸核種の放射能測定から親としてのUの定量が可能であり、 $\gamma$ 線現場（in situ）測定や断層や地下水中のRnガス測定によるU資源の探査は基本的にはこの方法は基づいている。逆に、天然試料中の壊変系列核種間の非平衡状態を利用すれば、年代測定など地球化学的情報がもたらされる<sup>4)</sup>。

電子工業の分野からも、メモリーの高集積化にともない半導体メモリー中に存在するこれら $\alpha$ 放射性核種が壊変の際メモリーの誤動作を引き起こすことが明かとなり、半導体や被覆材等関連材料中のUやThの高感度分析法が重要になってきている<sup>5)</sup>。

微量なアクチノイド核種の分析定量を最終的に $\alpha$ 線検出で行う場合のいくつかの検出法の比較を表4.5.1に示す<sup>6)</sup>。

ここでは、従来のU分析法の概要を述べ、U関連のトピックスとしてのオクロウラン鉱について、最近の放射化学の著書より要約する<sup>7)</sup>。近年、高周波誘導プラズマ発生器と質量分析器を結合した、ICP-MSの性能が向上し、放射能測定よりも超高感度が達成出来るようになってきたためUの分析定量でも注目されてきている。そこで、最新の微量分析法としてのICP-MSの2編について要約を行なう。

表 4.5.1 各種 $\alpha$ 線検出法の特性比較

	シリコン半導体 検出器 (SSB)	ガス電離箱	ZnS (Ag) シンチレーター	液体シンチレ ーション検出法	粒子トラック法 (SSTD)
大きさ	表面積2000mm <sup>2</sup> まで市販	大面積可、5000 cm <sup>2</sup> の報告あり	ホトマルの表面積 (1000cm <sup>2</sup> も可)	約 200mlまで	大きさに制限なし
エネルギー分 解 (核種分析)	小表面積ほど分解 能高い、通常20~ 50keV (可)	二重格子付き電 離箱で最高30keV の分解能 (可)	分解能不良 (不可)	$\alpha$ , $\beta$ の区別可 (不可) PSD法	特殊目的以外不可 能、大略値可能 (不可)
検出効率	45%以下	50%	50%	90~100%	50%
測定用線源	粉末、液体以外 可能	粉末、液体以外 可能	液体以外可能	可溶性物質のみ	液、気、固体、 すべて可能
バックグラウ ンド	~0, 反跳現象によ る表面汚染の可能 性あり	使用ガス及び構 成材からのバック あり	ZnSiに混入不純物 $\alpha$ 、空气中Rnと娘 1cphぐらい	空气中Rnと娘コ ンタミ、宇宙線 など30cpmぐらい	~0 (熱処理により バックを消去) 空气中Rnと娘核種 でのコンタミ
測定時の保守 真空など	核種分析 $\alpha$ スペク トロメトリーのため 真空箱必要、光 感受性あり	真空・高圧電源 装置、測定用ガ ス必要	遮光面が必要	遮光面必要、測 定ごとシンチレ ーター液取り替 え必要	Rnのない真空状態 が望ましい、長時 間、多数個の測定 可能
備考	Thの検出限界 (化 学分析併用) 0.4 mBq/g (固体)、 0.7Bq/l (液体)	Rnガス測定用に 有効、振動容量 電位計により微 量 $\alpha$ 放射体の検 出が可能	Raの検出限界 11mBq/l	従来の液体シン チレーター用測 定器使用可。 水中 $\alpha$ 放射体の 検出限界0.1Bq/l	エッチング、トラ ック観察必要、面 分析が可能、測定 法として経済的

#### 4.5.2 分析法概要<sup>8)</sup>

天然で普遍的に入手できる元素のうち最も原子番号の大きなUは地殻にほぼ3ppm含まれており（隕石の含量に比較して10倍以上多い）、海水中（～3.3ppb）を除けば、主として鉱物として存在している。

一次鉱物として閃ウラン鉱とレキ青ウラン鉱（ピッチブレンド）があり、いずれも $UO_2$ と $UO_3$ の混合物である。二次鉱物としては、カルノー石、リン灰ウラン鉱、人形石などが知られており、核燃料などのU資源として利用されている。酸化状態は+3, +4, +5, +6価が知られているが、天然では+6と+4が安定である。分離・精製に関しては、イオン交換・抽出法が主たる方法であり、核燃料のアップ・ダウンストリーム面からの膨大な分析化学的研究がある<sup>9, 10)</sup>。

##### 4.5.2.1 試料溶解と分離

鉱物の分析では、王水を加えて加熱し、次いで $H_2SO_4+HClO_4$ を加え白煙を生ずるまで加熱濃縮し、dil.  $HNO_3$ で煮沸してUを浸出する方法がとられる。全岩石の分析ではKOHや $Na_2O_2$ などで融解するか、 $H_2SO_4+HF$ と加熱、白煙を発生させて分解する。ジルコンや一部の高温石英の場合には、不溶性のものが多いため、更に高温（180～190℃）で溶解させるため、テフロン製の容器に試料溶液を入れステンレス容器で密封して、電気炉中で3～5時間加熱して溶かす。環境試料の溶解またはリーチング法は科学技術庁マニュアルが大いに参考になる<sup>3)</sup>。

金属Uは $HNO_3$ （1+1容積比）に可溶である。 $HCl$ とは激しく反応し黒色残渣を残す、これは低原子価状態の酸化物と考えられ、 $H_2O_2$ 水、 $KClO_3$ などの酸化剤により酸化されて溶解する。

合金の溶解は成分元素によって異なり、金属Uに用いる普通の酸による方法のほか、固有の酸混合液が用いられる。

酸化物は一旦空气中で焼いて $U_3O_8$ に揃えると、 $HNO_3$ （1+1）に容易に溶ける。U(VI)は $HCO_3^-$ や $CO_3^{2-}$ が存在するとpH5～11でも沈澱せず、Al, Cr, Fe, Tiなどを前もって沈澱分離できる。

一方、 $CO_3^{2-}$ を完全に除去した溶液からは、 $NH_3$ 水により $(NH_4)_2U_2O_7$ として沈澱する。U量が微量の時は、Fe(III)やAl(III)を添加し、 $Fe(OH)_3$ や $AlPO_4$ に共沈させてUを捕集する。 $F^-$ や有機酸類が定量的沈澱を妨げる。

抽出分離法には多くの報告が見られるが、 $\text{HNO}_3$ 溶液からの TBP抽出が最もよく用いられ、微量からマクロ量までのUをTh, Pu 以外の元素からほぼ完全に分離できる。Uの  $1\text{MHNO}_3$ 溶液に  $\text{NaNO}_3$ を加え、TBP- $\text{C}_6\text{H}_6$  (3:7) と振り混ぜてUを抽出する。有機相を  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ -NaOH 溶液と振り混ぜて、Uを水相に逆抽出する。 $\text{PO}_4^{3-}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ はUの抽出を妨げる。 $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ 飽和 $\text{HNO}_3$ 溶液からの酢酸エチル抽出も簡便であり、またTh, Y, ランタノイド元素などからの分離には、5~6MHCℓからの TBPまたは TIOA-キシレン抽出が用いられる。

U (VI) は陰イオン交換樹脂に、8MHCℓで吸着され、Th, Yやランタノイド元素より分離できる。0.1MHCℓでUを溶離する。また  $\text{SO}_4^{2-}$ や  $\text{CO}_3^{2-}$ を含む溶液からは、吸着しBiやVと分離できる。陽イオン交換樹脂を用いる分離法は、 $\text{H}_2\text{SO}_4$  溶液系以外選択性が悪く用いられない。

#### 4.5.3 定量法

##### (1) 分析化学的方法

###### ① 重量法

$\text{NH}_3$ 水により $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ として沈澱させた後、空气中で  $850\sim 900^\circ\text{C}$ のもと2h強熱し、 $\text{U}_3\text{O}_8$  ( $\times 0.8480=\text{U}$ ) として秤量する。

###### ② 容量法

分離したU画分を約  $3\text{MH}_2\text{SO}_4$ 溶液とし、亜鉛アマルガムを使用するジョンス還元器を使って(過剰のTi(III)またはCr(II)の硫酸塩でも還元する)Uを定量的に還元する。5min空気を通じ生成したU(III)を完全にU(IV)に揃える。 $\text{H}_3\text{PO}_4$ ,  $\text{FeCl}_3$ , ジフェニルアミンスルホン酸ナトリウムを加えた後、 $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ 標準溶液で滴定し、赤紫色が30秒以上持続する点を終点とする。また、U(IV)はpH 3~4にてアスコルビン酸共存下で、一定過剰のEDTAを加え10min煮沸したのち、pH 2~3にてTh標準液で逆滴定することもできる。

###### ③ 吸光光度法

各種鉍酸液中の  $410\sim 450\text{nm}$  の吸収を測定し、 $1\text{mg}/\text{ml}$ 程度のU(VI)を直接光度定量することが出来るが、微量のUの定量には、表6・1に示すような発色試薬および発色条件が用いられる。これらのうち、 $\text{H}_2\text{O}_2$ 法は簡便であり、アルセナゾIII法は高感度定量法として勧められる。

#### ④ 固体蛍光法

NaFやNaF+Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>と融解したUは、紫外線照射で550nmにピークを有する特異的発光を示す。この特性を利用し $10^{-10}$ ～ $10^{-5}$ gのUを定量できる。化学分離により遷移金属などの妨害イオンを除去すれば、きわめて高感度のU定量法となり、半導体材料中の微量U定量に使用される。試薬自身からのU混入に注意を要する。近年レーザー照射による固体および溶液中のUからの蛍光の直接検出による定量法も報告されている。

その他、発光分析・AAS法や蛍光X線法も定量に使用されている。

### (2) 放射化学的方法

#### ① $\alpha$ 放射能測定

天然U同位体(<sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>234</sup>U)は全て $\alpha$ 放射体であることから、分離精製したUは、表4.5.1に示した方法で検出定量が可能となる。

#### ② フィッショントラック法<sup>4)</sup>

<sup>235</sup>U (存在比0.7%)が熱中性子と核分裂反応を起こし、2個の核分裂片を生ずる。核分裂片が、絶縁体表面に入射すると、保持していた百数十MeVのエネルギーを消費し、粒子飛跡に沿って放射線損傷を残す。このため、表面を適当な化学薬品でエッチング処理すると飛跡(トラック)は拡大され、光学顕微鏡観察が可能となる。トラック数はU濃度に比例する。U定量のためには既知Uを含む標準ガラス等とともに、未知試料/トラック検出材(白雲母やガラス)ユニットを中性子照射し、冷却後検出材のエッチング処理を行う。生成したトラック密度を光学顕微鏡直接または画像解析とつないだテレビカメラを通して求め、標準物質との比較からU濃度を算出する。中性子フルエンスを調節することにより、広範囲のU定量が可能となる。U濃度の低い特製高純度石英ガラス板を検出材として用い、 $7 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ の熱中性子束で50時間照射した結果、0.02ppbの検出限界を得ている。

#### ③ 中性子放射化法

原子炉中性子による<sup>238</sup>U ( $n, \gamma, \beta$ )核反応で生成する<sup>239</sup>Np (半減期2.7日)を、照射して2～3日間冷却後、 $\gamma$ スペクトロメトリーで検出し標準試料との比較から標的核Uを定量するNAA法は、微量Uの分析に適している。INAA法で、高純度SiO<sub>2</sub>およびAl中のUが定量され検出限界として0.1と0.5ppbが得られる。

RNAAでは、検出限界は 10pptレベル以下にまですることが出来る。核分裂生成核種をγスペクトロメトリーで検出する方法や、遅発中性子測定法も核燃料としてのUの非破壊分析に用いられる。

#### 4.5.4 電気分析法

##### (1) ボルタンメトリー

0.45  $\mu\text{m}$ メンブランフィルターで濾過した海水30mlに 0.1M酢酸、1M HCl 20  $\mu\text{l}$ ずつを加えて、約 pH= 2.5にする。5 min 沸騰させて CO<sub>2</sub>を除き、N<sub>2</sub>通気を 30min 行なう。直径 3 mmのGCDEに0.0025M TOPO (trioctylphosphine oxide)-エタノール溶液 5  $\mu\text{l}$ をつけて作製したTOPO被覆電極を試料溶液に入れて、0Vと- 1.4V vs. Ag/AgClの間を10往復させて前処理、溶液をかき混ぜながら0Vで20min 前電解し、-1.4V までのボルタモグラムを測定。1.32 $\times 10^{-8}$ M (3.14ppb)での相対誤差は 5.2%である。

海水や他の試料も適当な前処理で可能。

HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>が妨害するので、酸を加えて沸騰して除く。

##### (2) クーロメトリー

定電位クーロメトリーでは、H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>中のHg電極を用いてU (VI) をU (IV) に電解還元する方法が最もよく研究されており、高い精度と正確さが得られる。広範囲のUを含む核燃料関係試料に応用した例は極めて多く、かつ精度も0.01%に及んでいる。電量滴定法では、電解発生させたCe (IV) 、V(V) 、Mn (III) 、などでU (VI) →U (IV) として、定量する方法がある。このうち、フッ化物を含むMn (II) 電解液を電解酸化して得たMn (III) 錯体およびHgまたはPt陰極で電解還元して得たTi (III) で滴定する方法は高い精度が得られ、U化合物や高純度金属Uの純度分析に用いられている。

##### (3) ポテンショメトリー

環状または非環状のニュートラルキャリアーを用いたウラニルイオン(UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>) 電極が報告され、pH 3またはそれ以下の溶液中のイオンの定量に利用できる。

#### 4.5.5 ICPおよびICP-MASS

ICP発光分析では、263.553(II) 、367.007(II) 、385.958(II) 、389.036 (II)、

409.014(II) などの分析線が利用され、検出限界は 385.958nm で 50ppb 程度である。Ca、Cr、Fe の分光干渉を受けやすい。ICP-MS では  $^{238}\text{U}$  (99.87%) で検出限界 0.002ppb 以下が得られる。電子材料、シリコン基板中のウランの定量に多用されている。最近の ICP-MS 分析論文を 4.5.8 に紹介した。

#### 4.5.6 その他

##### (1) 蛍光 X 線分析

鉱石：研磨、ブリケット、ビード。分光素子：LiF(220)、LiF(200)。検出器：シンチレーションカウンター、比例計数管。L  $\alpha$ 、L  $\beta$ 、M 線使用。

##### (2) EPMA

測定試料：表面研磨した薄片またはブロック片を使用する。必要とする試料の量は独立した試料片として mg 量程度、マトリックス中に存在する場合は研磨した表面上で 2～3  $\mu\text{m}^2$  程度である。

主な分析線：L  $\alpha$ 1    13.612KeV    0.91064 Å

M  $\alpha$ 1    3.170KeV    3.91000 Å

検出限界、空間分解能：元素分析の場合、通常、50～100ppm 程度含まれていれば検出できる。表面分析における空間分解能は～100nm である。

##### (3) ESCA

U4f $_{7/2}$  の化学シフトの例を下の表 4.5.2 に示す。

表 4.5.2 U4f $_{7/2}$ Z=92

化合物	$E_B(4f_{7/2})$	$\Delta E_B$
U	380.2	0.0
UO <sub>2</sub>	380.8	0.6
U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	381.5	1.3
UO <sub>3</sub>	382.3	2.1
UO <sub>2</sub> (C <sub>9</sub> H <sub>6</sub> NO) <sub>2</sub>	383.2	3.0
(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> U <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	384.1	3.9
K <sub>2</sub> UF <sub>6</sub>	384.5	4.3

##### (4) NMR

NMR 測定対象同位体：U-235。天然存在比：0.7200、核スピン：7/2。共鳴周波数 (f/MHz)：1.797。核四極子モーメント (Q/fm<sup>2</sup>)：455。

##### (5) SIMS

一次イオンに $O_2^+$ ,  $O^-$  イオンを用いて $^{238}U^+$  か  $^{238}UO^+$  を測定する。固体試料を対象とする。感度はマトリックス成分に依存する。スペクトル妨害として、マトリックス成分に由来する分子イオンなどを考慮する。測定濃度範囲は微量～主成分。

#### (6) HPLC

抽出剤に2,6-ジアセチルピリジジビス (ベンゾイルヒドラゾン) ( $H_2dib$ )を用いて、U (VI) を中性キレート ( $UO_2dib$ ) としてジクロロメタンに抽出、この $10\mu l$  をアルキル (C2) 結合シリカゲルを充填した分離カラムに注入、メタノール-水 (65 : 35 v/v) を移動相に用い、波長 345nmで吸光光度検出を行なう。吸光度は、5 ~ 100ngのUについて直線性を示す。Cu (II) も抽出されるが、HPLCでU (VI) とは完全に分離されこの定量を妨害しない。

#### 4.5.7 オクロ現象<sup>7)</sup>

人工原子炉は、ほぼ10万人の科学者と技術者との一致協力した努力や複合的研究計画により1942年初めて作動した。その後、1972年オクロ (ガボン、アフリカ) のウラン鉱山でフランスの科学者チームが”化石化(fossil)” 原子炉を発見するまでの30年間は、その人工原子炉は地球での最初の原子炉と考えられていた。既に20億年前に、少なくとも6個の原子炉が作動していたことを、オクロでの発見は明らかにした。現在の人工原子炉の中と同じように、まさにウランと水の自然調節の中でウランの核分裂連鎖反応は行われていた。現在では核分裂性ウランの存在率はわずか0.72%であるが、地球の初期には自然界に核分裂性ウランが高い割合 (26%までに達する) を占めていたために、連鎖反応臨界への自然条件に容易に達し得ただろう。

天然でのウラン連鎖核分裂過程の探査は、オクロのウラン鉱山で発見される前にすでに行われていた。古くて、かつ良好に保存されていたウラン鉱床堆積物から抽出された時、ウラン鉱物は実際に核分裂生成物の痕跡を含むことが幾つかの研究で分かっていた。しかしながら、その痕跡が連鎖核反応で形成されたという証拠はなかった。事実、それらは本来 $^{238}U$ の自発核分裂によるものであり、より重い核のウラン同位体( $^{235}U$ )の自発核分裂で放出される中性子によって起こる $^{235}U$ の核分裂によるものは、わずかしき寄与していない。これら天然原子炉のウランや核分裂生成物の研究は放射性廃棄物貯蔵のための方法を考える上で、天然アナロジーとして注目されて来ている。

#### (1) オクロの発見

オクロでの天然原子炉サイトの発見は、思いもかけない偶然と細心の化学技術的注意の組合せから得られた。フランスの $^{235}\text{U}$ の濃縮の工場で処理予定の天然ウランのルチン検定の結果、核分裂性ウランの含量に僅かな異常が見られた。それは、天然ウラン中の $^{235}\text{U}$ の原子濃度の標準値である0.7202%ではなく、0.7171%の値であった。0.0031%の違いは本当に僅かではあったが、考えられる全ての実験誤差の限度を超えていた。それはフランスの測定室での測定許容範囲の0.0006%よりも大きかった。結果として、その異常さは重大なものとして取り上げられ、さらに進んだ実験が行なわれることになった。

世界中のあらゆる場所で採取された試料中の核分裂性ウラン濃度は、千分の2～3まで一定値を示しており、僅かな不一致が見いだされる場合には、既に原子炉で使わずみのウランと天然ウランが任意にたまたま混合し、それゆえ核分裂性の同位体が少なくなっていると、科学者は考えていた。

最初の課題は、どの段階で劣化したウランで希釈されたかを調べることであった。その異常は、ウラン濃縮過程の最終段階で観察された。明らかに、探査は操作手順の時間と順序を逆戻りする必要があった。すなわち、いくつかの機構を含む複合的かつ連続的な操作を後戻りする必要があった。調査員が驚いたことには、その追跡が赤道アフリカの西側の小さな町ガボンのオクロウラン鉱山の鉱石にたどり着いた事である。鉱床のウランに富んだ地域から採取した試料を詳細に分析した結果は、更に驚くべきものであった。すなわち、ウランの最も含有量の高い試料は核分裂性同位体をもっとも劣化した試料でもあった。いくつかの場合では、 $^{235}\text{U}$ の濃度は標準の0.72%の半分かまたはそれ以下であった。さらに分析すると希土類元素が豊富であることもまたわかった。希土類元素は核分裂で生成された放射性核種の放射壊変での最終生成物として得られることが知られている。これら見いだされた全てのことは、高度な核燃焼が自然条件下で生じたに違いないことを示唆していた。結論はフランス科学アカデミーに報告され、1972年にその学術誌 *Comptes Rendus* で発表された。

しかし、それで話は終わったわけではなかった。複合した多彩な学術的研究は発見後何年もの間行なわれた。オクロ現象と天然原子炉についての2つの科学的な国際会議が国際原子力機関(IAEA)によって組織された。これらの学会の会議録は天然原子炉地域の地質と地球化学の詳細な内容を提供した。それらは、臨界に達していたウラン堆積物の生成経路への考察を与え、炉心とともにウラン堆積物が今日まで保存された

道筋への一つの解釈を提案している。同位体分析は $^{235}\text{U}$ の消耗についての詳細な情報をもたらし、オクロ現象の活動期間に解放されたエネルギーの計算をも可能にした。そのうえ、放射年代測定は、鉱石埋蔵物の年代と核分裂過程が生じていた期間の信頼ある見積りをも与えた。

## (2) ウラン鉱堆積物中の連鎖核分裂

核分裂の際放出される中性子の速度が十分に減速されていれば、それらは他の $^{235}\text{U}$ 原子核の核分裂を誘発することが出来る。核反応理論によると、連鎖核分裂を継続するための条件は、平均して少なくとも1つの中性子が他の核分裂を誘発することである。核分裂を引き起こさせ、そして連鎖核分裂過程を持続させるのに必要な条件達成のためには、十分な量（臨界量）のウランが利用出来なければならないし、また、適当な中性子減速材中に組み込まねばならない。

1956年のように早い時期に、アメリカ合衆国で研究活動していた日本人科学者の黒田和夫（P. K. Kuroda）博士は、天然ウラン堆積物中で臨界が成立していた可能性があることについての短い論文を発表した。彼は、地球の過去の歴史においてより高い含量の $^{235}\text{U}$ と、自然条件下で減速材として適した水が存在していたことを指摘した。20億年前のウラン堆積物は天然連鎖核分裂の残留物を調査するのに適した場所であるかも知れないと彼の計算は示していた。これらの考えは、オクロ地域とその天然原子炉の発見に伴い、いく年もたってから再び見直された。

天然原子炉についての初期の考えが、注意をほとんど惹かなかったことは驚くに当らない。オクロ現象は、天然での連鎖過程を起こすのにめったに起こらない条件が同時に揃ったにちがいないことを示している。豊富なウラン沈積物、水の存在、そして中性子を強く吸収し核分裂連鎖反応を妨害をする核種としての不純物核種の量が限られているといった条件である。ウラン沈積物の年代はもう一つの重要な因子である。核分裂性同位体のかなりの量を含むほどに十分に古く、しかも、ウランの蓄積を促進させる化学的な酸化還元反応に都合のよい地球化学的状态を与えるようではならぬ。オクロでの発見の前ではほとんど予想できなかった他の事柄もまた不可欠であった。というのは、天然原子炉があった場所が、その後の地球表面で劇的な変化をも生き残り現在まで保存されたまま残っていないなければならないことも必要条件である。

初期の地球上でこれらの条件がすべて合致することが実際可能であったことをオクロ現象は証明した。45億から5.7億年前までの地球の歴史上の長い期間である、\* $\text{P}$

レカンブリア時代における地球化学的、地球物理的諸条件からの臨界調査の結果、天然原子炉が存在しえた期間はかなり長かった事を示している。その期間は41億年前（地殻形成時）から11億年前までの間と見積られる。鉍石は3.5から6%位の少量のウランを含む堆積物中で、41億から31億年前に臨界が達成されていたということ、天然原子炉のコンピューターシュミレーション過程は示している。天然ウラン中で $^{235}\text{U}$ の割合が20から10%の間に相当しており、この核分裂性同位体の比較的多い存在が、臨界の達成を可能にした。そのうえ、この核分裂性核種の豊富な量は、中性子吸収体がかかり存在するときでさえも、核分裂を引き起こし、かつ連鎖核分裂過程を持続するに十分な中性子束を与えることが出来た。

臨界の条件としては、年代が少し新しくなれば、核分裂性物質の含有量低下を補償するために、より豊富なウラン沈積物が必要となる。30億から18億年前の間では、天然原子炉存在にとって鉍床中にはそれぞれ（最低限）10～30%のウランを含んだ地質構造を必要とした。より若い地質年代（11億年前）で連鎖核分裂が生ずるには、50%までのウラン含量と核的不純物が実際上全く存在しないことが必要である。

### (3) オクロの天然原子炉跡

長さ150mの帯状に広がった状態で、6つの原子炉炉心がオクロで発見された。レンズ型をした原子炉は約1mの厚さで10から20mの長さであった。反応帯でのウランの濃度は20%かそれ以上であって、ある場合は60%までにも達していた。周辺の鉍床母岩では、ウランの濃度はとても低く0.2から0.5%の間であった。ウランの沈積物は堆積性の砂岩層であり、その厚さは4～10mの間に亘っている。それは20.5億年前のもので、連鎖核分裂は20億年前に生じていた。

臨界状態の調査研究の興味深い結論としては、オクロ現象は核的なことと地質的な活動が組み合わさって起きたと言うことである。すなわち、地球化学的状态が連鎖反応の引き金になり、その代わりに、連鎖反応の起ったことが、原子炉サイトとしての地質学的形成をさらに際立たせることに成った。ウランに富んだレンズ型沈積物は臨界期間の間ではとても深いところに位置し、その深さはほぼ海面下数千メートルであつたらしい。この深さが、臨界期間後のその場所の保存に役立った。年代が経つにつれて生じた海退の結果、地球表面に天然原子炉の場所が出現した。

オクロ現象においては、水の存在は中性子の有効な減速材および冷却材として双方に大変重要であった。地下深くでは高圧のため、水は沸点を越えていても液体の状態

で存在しえた。地下 5000mに相当する深さでは圧力は 200気圧を超えており、また水の温度は 374°Cまでに達していたであろう。

水の温度は、水相の密度を変化させ、かくして効果的に中性子の減速を調整することで連鎖核分裂過程を制御できた。連鎖核分裂過程が進むにつれて、放出されるエネルギーは水中に蓄積され、水温を高くする。もし原子炉が浅い水層下に位置していたなら、圧力はたかだか1気圧程度であったであろう。熱の蓄積は、水の沸点(100°C)になるとすぐに水の沸騰や蒸発をもたらす。それに反して、オクロのようにとても深くて圧力の高かったところでは、蒸発や沸騰が始まる前に 374°Cまでに温度上昇したであろう。その時点で水の密度は減少し、中性子の減速は有効でなくなり核分裂反応速度も遅くなる。その結果として、水温は低下し、水の密度の増加とより効果的な中性子の減速をもたらす、ついには、ウランの核分裂が再び始まる。出力が増加するにつれ、水温は連鎖反応が停止するまで上昇する。作動と停止の繰り返しは、個々の原子炉で60万年から80万年間に亘り起こっており、6個全ての原子炉の継続期間は数百万年と見積られている。

どの様に連鎖核分裂が開始されたかという問題はまだ未解決である。おそらく、砂漠の背丈の低い草木に火が広がるようにオクロで臨界現象が広がったのであろう。おそらく、ウランの含量が最も高く、そして(あるいは)核的な不純物量が最も低かった原子炉炉心の1つで始動したのであろう。連鎖反応の引き金としては、宇宙線との核反応によって生成したほんの数個の中性子で十分であっただろう。最初の原子炉の帯域からの飛び出た中性子は隣接したウランの富んだ層に到達でき、徐々に鉱石に含まれている中性子毒物を消費し尽くし、新しい連鎖核分裂反応の開始を容易にする。オクロサイトでは、数個の連係した原子炉が臨界の始動と伝搬を行っていたように思われる。

オクロ現象で放出されたエネルギー総量は信頼に足る程度に評価することが出来る。核分裂性の  $^{235}\text{U}$  の消費量について得られたデータに基づいて見積られる。その結果は、5億ギガジュール ( $5 \times 10^{17} \text{ J}$ ) となる、実に強烈な印象を与える値である。それと比較して、公称1ギガワットの電気を出力する原子力発電では、1年に約3200万ギガジュール ( $3.2 \times 10^{16} \text{ J}$ ) のエネルギーを生み出す。しかしながら、オクロの原子炉では、そのエネルギーは100万年間の稼動に亘って徐々に放出されていた。これは年間の出力としては全く僅かな値にしか相当しない。事実、現代の原子力発電で作

られる 100万キロワットに比べ、オクロ現場での個々の天然原子炉の年間平均出力はたった2キロワットにすぎない。

#### (4) 地球の過去における核エネルギー

天然ウラン中の核分裂性同位体( $^{235}\text{U}$ )の存在度は、比較的低濃度のウラン堆積物中であっても、プレカンブリア時代の大部分の期間に亘って連鎖核分裂反応が起こりうる事を示している。天然原子炉は初期の地球上どこにでも生じていたかもしれない。

しかしながら、多くの科学者は、オクロで見つかった天然原子炉は、地球の過去の歴史において特殊な事象にすぎないと信じる向きがある。

原子炉となるようなウランの蓄積は、ほとんど不可能であると言うのがよく論議されることである。ウランの蓄積は、水中の有機物質と大気中の酸素をふんだんに必要とする、酸化と還元反応の結果もたらされる特異的な事であると考えられている。かなりの数の生命体が存在する前には、それら有機物や酸素成分は、たとえあったにしても、非常に乏しいものであったと考えられている。現時点で、我々は十分な量のウランを蓄積し臨界を生じさせ得る経路についての見通しを得ている。更に、典型的な天然原子炉の一般的な特徴については信頼できるまでに把握できており、プレカンブリア時代の地球で稼動していた原子炉の数も見積ることが出来る。

#### (5) ウランの蓄積

ウランは天然に広く分布しているが、低い濃度である。自然界でウランを蓄積していく過程においては、連鎖反応を可能にするに十分なまでに富んだウラン堆積物の形成が重要である。これまでの20億年間で形成されたほとんど大部分のウラン堆積物は一連の酸化、還元反応の結果生成したものと一般的に考えられている。最初は4価のウラン( $\text{U}^{4+}$ )が酸化されて6価の形( $\text{U}^{6+}$ )になり、6価の化合物は水に溶け易く簡単にウランが蓄積されている場所にまで移動する。沈澱が生成するには、6価のウランが還元されて4価の状態になる必要があり、この4価ウランが有機物質の存在下で蓄積される。

有機化合物と酸素が欠乏していたと言うプレカンブリア時代の一般的なイメージは、最近の多くの研究の結果、急速にかつ根本的に変化してきている。地球表面が有機化合物形成に適するようになるとすぐに、生物起源の有機化合物が蓄積し始めたことを幾つかの研究は示している。それらは大気下での化学過程で生成された。その化学過程は、放電や太陽からの紫外線放射や放射壊変からの電離放射線の作用によって開始

されたい。彗星の衝突もまた多量の有機化合物をもたらしたかもしれない。火山活動は硫黄の強力な還元性化合物である硫化水素を多量に生成した。これらは、6価のウランを効果的に還元できることが分かっている。

一般的に考えられていた時代よりもっと早い時期に、生物起源の有機物質出現に関連した発見がなされることは特に大切なことである。重い炭素同位体組成の異常がイスアの岩石中で観察され、38億年前でもある種の生物体の光合成活動が行われていた可能性を示唆している。複雑な微生物の痕跡の化石は30億から35億万年前の岩石中ではっきり確認されている。

酸素がわずかではあるが、地質史の期間の上では無視できない量あったらしいという証拠の集積がある。このことに対する説得力のある論証は、年代のよくわかっている岩石中のトリウムとウランの含量を注意深く分析することによりなされた。これら2つの成分はかなり初期の頃に、おそらく地球のコア形成1億年後には、既に上部マントルや地殻中に現れていただろう。化学的挙動が時の経過につれて変わらないならば、トリウムとウランの濃度比は岩石の年代にかかわらず一定のはずである。しかしながら、この一定性は保たれていなかった。このウランに対するトリウムの比は、知られている最も古い岩石（グリーンランドの38億年前のもの）からの3から、分析された最も新しい岩石（オーストラリアの3億年前のもの）の6の値まで増加している。この傾向は、ウランが過去に激しい風化作用や堆積作用の間に失なわれたはずであり、その過程はかなり早い時代にすでに行われていた事を示している。このことの満足に足る唯一の説明としては酸素が存在していたという事である。トリウムの4価の状態は変化せず、比較的溶け難くして岩石中に残留する。しかしながら、4価のウランは容易に酸化され、その水に可溶性な6価の化合物が簡単に流水で除去される。このように、ウランに対するトリウムの比は年が経つにつれて増加するのであろう。

ウランの蓄積にたいして、酸素も有機物質もどちらも必要とせず、化学的かつ機械的な侵食に基づく過程がある。その過程は、無植生の陸表面や大気中の酸性ガス存在のゆえに、初期の地球で特に有効的だったかもしれない。この一つの例は、水により沈澱した化学的堆積物からなる38億年前のイスアの岩石でみられる。

問題としている過程は、風化－侵食－移動と堆積の連続的な段階のサイクルからなっている。炉心が半径2mの球状であった31億年から41億年前の原子炉に対して、十分なウランを蓄積するには100年以内で十分であったであろう。そのような特殊な場合で

は、ウランの不足した(0.4 g/ton 程度)沈積物から10cmの厚さの層が侵食されねばならず、その表面積は40 km<sup>2</sup>にも相当する。それはアルプスの現在の侵食速度である、年間わずか1 mmの侵食速度であったと考えられている。しかしながら、初期の地球で行われていた激しい風化状態の下では、侵食速度は本質的にもっと早く、その結果としてウランを蓄積するのに必要な時間は100年よりもっと短かかったであろう。

#### (6) 典型的な天然原子炉の成分

天然原子炉の主成分は、燃料として数トンの酸化ウラン(UO<sub>2</sub>)と中性子減速材および原子炉の冷却材として役立った多量の水であった。全体の必要量は、関係する地球の年代すなわち核分裂性<sup>235</sup>Uの存在率に依存していた。最も初期の原子炉は、1.6トンの酸化ウランと0.5m<sup>3</sup>の水を含んだ半径わずか0.5mの球状であった。低品位のウラン鉱石を含む時や、年代が下がって天然での核分裂性のウランの存在率がさらに低くなった時は、かなりの大きさや量が必要であった。その時には、球形の半径は3mに及び、酸化ウランは1.5トン、水は10m<sup>3</sup>必要であろう。

原子炉サイトでの地球物理的状態が、稼働の効率や出力を左右してきた。多孔性の堆積沈殿物中あるいは浅い水帯のすぐ下では、温度と圧力値は周辺的环境とそう変わらないだろう。水は煮え立つだろうし、また最高時での出力は数Wになるであろう。より深いところでは、液体とその蒸気の間には平衡が成立しており、現在の原子炉の場合と似た超臨界水系に達している。このような状態は、より高い圧力(数百気圧)や、より高温(数百度)とより高出力(数kW)をひきおこす。数kWレベルで時折突沸をもたらすような、典型的な天然原子炉の平均出力電力が1kWであったと仮定するのは妥当だと思われる。

#### (7) 幾つの原子炉が存在したか?

これまで、オクロでの6個の天然原子炉の炉心だけが知られている。天然原子炉の実際の数を評価するには、明らかに多くのことが未解決のまま残っている。ともあれ、天然原子炉の発見は簡単な仕事ではない。

天然原子炉サイトの同定は、核分裂性ウランの欠如や、核分裂起源核種の壊変の最終生成物である特定の同位体濃縮などに関連した、同位体の異常に基づいている。その探査が成功するには、厳しい条件が満足されねばならない。つまり、天然原子炉部位を含んだ地質学的な形が現在まで保存されていなければならない。また、同位体希釈効果や異常の損失を避けるために、鉱床中での物質の再分配は無視できる程度でな

ければならない。つまり、分析のための試料は運よく上の条件に都合良く適した場所から採取出来なければならない。

少なくとも20%がウランである高品位のウラン沈積物で、10億年より古いところが有望な場所である。その沈積物は、 $1\text{m}^3$ あるいはそれより大容積のウラン含有鉱物を含むべきである。そのような場所を見つけ出すのは容易な事ではない。そのような発見には、堆積物の確かな特性について情報提供してくれるウラン探鉱会社の協力にかかっている。更に、オクロの場合のように、信頼のおける同定のためには何千回もの上質で費用のかかる分析が必要である。

オクロ現象発見後10年間幾つかの探査活動はあったが、他の天然原子炉存在の調査に関しては殆ど成果が上がっていない。当時、ウラン、ネオジウム、サマリウム、ルテニウムの同位体変動が何十ものウラン鉱石で調べられた。それぞれの場所（カナダ、南アメリカ、アフリカ、オーストラリア）につき1個の試料しか分析されなかったが、試料は全世界中の場所から注意深く選ばれた。試料の年代は4.5億年から18.8億年にまでに亘って変化していた。何ら注目に値するような同位体の異常は見つからず、試料を採取した場所では、臨界に達してなかったと結論づけられた。分析された試料は原子炉の可能性を有する帯域のほんの一部分にすぎないので、これらの場所でさえも、臨界稼動状態の残留物の証拠はまだ見つかるかもしれないと考えられる。

現在では、21億年よりも古いウラン沈積物は余り多くは知られておらず、よく年代のわかっている最も古いウラン含有堆積岩は25億年から30億年前の間にある。この理由としては、天然原子炉の稼動期間である臨界期間中にその堆積岩が破壊されたためかもしれない。発生したのは原子爆弾型の爆発ではなく、むしろ激しい地質活動をともなうようなエネルギーの突出であった。これらの条件が数立方メートルのウラン沈積物を分散させてウラン含量と同位体異常の両方を”希釈”させたような、炉心部の破壊をもたらしたのであろう。

それにもかかわらず、地球の過去の歴史において、存在した天然原子炉の数をおおまかに見積ることは可能である。その理由としては、地球上の種々の堆積物で測定された $^{238}\text{U}$ に対する $^{235}\text{U}$ の比が0.001から0.002の値内で一定であるという事実に基づいている。この観察結果は、全ウラン含量の1/1000から2/1000だけが天然原子炉で消費されてきたことを示唆している。この過程に基づいて、厚さ1kmの地球の地殻層における天然原子炉の総数を見積ることができる。ウランの濃度が地殻中でトン当たり

3グラム、また、天然ウランに対する核分裂性ウランの比が0.1であった時、もしウランの全質量のわずか1/1000のみが連鎖核分裂過程に関与したならば、約1億個のオクロ型の原子炉が過去に稼働したであろうと見積ることができる。1つの場所に5個の原子炉があり、おのおのが平均1kWの出力で100万年間稼働したとすると、放出される全エネルギーは50万TWに達する。とても長い期間と大規模に亘る分散のため、同様の期間（41億年から31億年前の間）に他の種々の要因から供給された総エネルギーに比較して、このかなりの出力値でも取るに足りない程しか寄与していないといえる。

#### 4.5.8 ICP-MSによるウラン等の分析

ICP-MSでの信号は、用いる溶液や混入しているマトリクスにより抑制されたり、増強されたりし、元素依存性を示す。前者の例が0.5M $\text{H}_2\text{SO}_4$ マトリクスの場合であり、原子番号の小さい元素ほど大きく抑制される。一方、後者の例としては、0.5M $\text{CH}_3\text{COOH}$ マトリクスの場合であり、原子番号の大きい方が、信号強度増加率は少なくなっていた。これらの結果より、ウランを定量に当たって他の元素を内部標準として使うとき、十分な注意が必要である。<sup>11)</sup>

地質学的試料をICP-MSで分析定量するとき、標準試料の目的微量元素の正確な評価が必要となる。このためアメリカ地質学協会（USGS）の6個の標準岩石粉末試料につきICP-MSで47元素を分析定量し既に報告されている値と比較した。その結果、第二および第三遷移金属元素では80%程度の定量値の一致にすぎなかったものの、UやThはこれまでの値と良く一致していた。いずれにしても、1mg/g以下の元素濃度は、保証値とのずれがICP-MSの結果でも見られた。<sup>12)</sup>

参 考 文 献

- 1) ウラン・トリウム鉱物研究委員会編：“ウラン”（1961），（朝倉書店）。
- 2) J. Korkisch, F. Hecht: "Handbuch der Analytischen Chemie - Uran -" (1972), (Spring-Verlag).
- 3) 科学技術庁編：“ウラン分析法”（1982），（日本分析センター）。
- 4) 日本化学会編：“第四版 実験化学講座-14 核・放射線”（1992），（丸善）。
- 5) 平井昭司：ぶんせき，639(1988)。
- 6) 橋本哲夫：ぶんせき，856(1981)。
- 7) I. G. Draganic, Z. D. Draganic, J. P. Adloff: "Radiation and Radioactivity on Earth and Beyond" (1990), (CRC Press Inc.)。
- 8) 日本分析化学会編：“分析化学便覧（第四版）”（1990），（丸善）。
- 9) S. Ahrland, et al.: "The Chemistry of the Actinides", (1973), (Pergamon Press)。
- 10) M. Benedict, T. H. Pigford, H. Levi: "Nuclear Chemical Engineering", (1981), (McGraw Hill)。
- 11) F. Vanhaecke, H. Vanhoe, R. Dams, C. Vandecasteele: Talanta, 39, 737(1992)。
- 12) R. Alaimo, P. Censi: Atomic Spectrometry, 13, 113(1992)。

#### 4.6 ネプツニウム-237

ネプツニウム (93番元素) 同位体のうち、環境放射能研究上注目されるのは、物理的半減期が長く、しかも生物学的に危険な $\alpha$ 線を放出する $^{237}\text{Np}$ ( $T_{1/2}=2.14 \times 10^6\text{y}$ ,  $\alpha$ )である。この核種は、核爆発時や原子炉内で $^{238}\text{U}(n, 2n)$ 反応、および $^{235}\text{U}(n, \gamma)$  $^{236}\text{U}(n, \gamma)$ 反応で生成する $^{237}\text{U}$ の $\beta^-$ 壊変により生ずる。また同時に生成する $^{241}\text{Am}$ ( $T_{1/2}=433\text{y}$ ,  $\alpha$ )の娘核種でもある。現在、この核種は核燃料再処理や高レベル放射性廃棄物の処理・処分問題とも関連して、最も重要視されている核種の一つになっている。

一般環境中で見いだせる $^{237}\text{Np}$ は、そのほとんどが大気圏核実験からのフォールアウトに由来するもので、約52TBq(約2t)と見積られており、 $^{239, 240}\text{Pu}$ との放射能比で $3 \times 10^{-3} \sim 4 \times 10^{-3}$ である<sup>1)</sup>。環境中の $^{237}\text{Np}$ 分析は、 $^{239, 240}\text{Pu}$ や $^{241}\text{Am}$ と比べてその濃度が格段に低いため、局地的放射能汚染地域のBikiniやWindscale周辺海域の海水、海底土、生物試料についてわずかに行われてきた。最近では、分析・測定法の進歩により、一般環境中の微量 $^{237}\text{Np}$ の測定も実施されつつある。 $^{237}\text{Np}$ の測定は、放射能を測定する方法と、もう一つは、この核種の壊変定数が小さいので原子数を測定する方法とに分けられる。

##### 4.6.1 化学分離・ $\alpha$ 線スペクトロメトリー

まず放射能測定による方法としては $^{237}\text{Np}$ が $\alpha$ 線を放出するので、化学分離精製し、その後均一で薄い測定線源を電着法により作成して $\alpha$ 線スペクトロメーターで測定する。化学分離に伴う収率を補正するために、一定量のトレーサー核種を添加し、充分同位体交換を行ってから分析を行う。トレーサー核種には、 $\alpha$ 線を放出する適当な同位体がないので、 $^{243}\text{Am}$ からのミルキングで容易に得られる $^{239}\text{Np}$ ( $T_{1/2}=2.45\text{d}$ ,  $\beta^-$ , Br: 0.106 ~ 0.334 MeV)がよく用いられる。 $^{233}\text{U}(\alpha, n)^{231}\text{Pa}(\alpha, n)$ 反応より製造される $^{234}\text{Np}$ ( $T_{1/2}=4.40\text{d}$ , EC > 99%,  $\beta^+$ : 0.046 MeV, Er: 0.043 ~ 1.606 MeV)および $^{235}\text{U}(d, 2n)$ 反応で製造される $^{235}\text{Np}$ ( $T_{1/2}=396\text{d}$ , EC > 99%, ULx: 13.5 keVなど)も有望視される<sup>2)</sup>。

化学分離法としては、一般にNpが水溶液中で5価( $\text{NpO}_2^+$ )状態として安定に存在するため、まず、 $\text{Fe}^{2+}$ や $\text{I}^-$ あるいは $\text{SO}_3^{2-}$ で4価状態に還元調整し、その後イオン交換法と溶媒抽出法を交互に組み合わせてNpの分離、精製を行っている。 $\alpha$ 線スペクトロメトリーで $^{237}\text{Np}$ を定量する場合図4.6.1に示すように特にスペクトル上妨害となる

U( $^{234}\text{U}$ ), Th( $^{230}\text{Th}$ ),  $^{231}\text{Pa}$  を除去することが重要である。

代表的な分析法の例として、Windscale 再処理工場周辺海域の環境放射能の研究を続けているイギリスの Ministry of Agriculture, Fisheries and Food 所属の Pentreath らの方法を図 4.6.2 に示す<sup>3)</sup>。収率補正用のトレーサーとして  $^{239}\text{Np}$  を用い、海水については 0.1M HCl 酸性とし亜硫酸ナトリウムを加えて 16h 放置、Fe 共沈操作を行った後、沈殿を 4M  $\text{HNO}_3$  に溶解し、化学分類にはいる。海底土の場合には 500°C で焼いた後  $\text{HNO}_3$  溶出、また生物試料の場合にも同様に 500°C で灰化した後、 $\text{HNO}_3$  溶出さらに湿式灰化を行い、両者ともに 3~4M  $\text{HNO}_3$  溶液に調整する。次にこの試料溶液に Nd、硝酸ヒドrazin を加え 60°C で 10 分間加熱、放冷後、フッ化アンモニウム溶液を加えて  $\text{NdF}_3$  共沈操作を行う。沈殿を  $\text{HNO}_3$  に溶解させ、ホウ酸を加えて煮沸し大部分のフッ素をマスク除去した後、 $\text{Nd}(\text{OH})_3$  共沈操作を行い、1M HCl 溶液とする。スルファミン酸鉄(II)を加えて Np(IV) に調整した後、0.5M TTA-キシレンで Np を抽出、8M  $\text{HNO}_3$  で逆抽出する。その後、8M  $\text{HNO}_3$  溶液から陰イオン交換樹脂カラムに Np を捕集し、12M HCl について 12M HCl - 0.1M  $\text{NH}_4\text{Cl}$  で洗浄して、Th および Pu をカラムから除去し、Np を 4M HCl で溶離する (U はカラムに吸着)。ステンレス板上に Np を電着した後、まず  $\gamma$  線スペクトロメトリーにより  $^{239}\text{Np}$  (回収率補正) を、ついで  $\alpha$  線スペクトロメトリーにより  $^{237}\text{Np}$  を測定し、測定の幾何効率を補正して定量する。

さらに一般環境試料も含む報告として、多量の土壌試料 (100-500g) を用いての山本らのフォールアウト  $^{237}\text{Np}$  の分析報告<sup>4)</sup> がある。ここでは、土壌試料中の Np を  $\text{HNO}_3$ -HCl で溶出、10M HCl 調整後、大部分の Fe をまずイソプロピルエーテルで除去する。HCl を加えて Np(IV) に調整後、10% TOA-キシレンで Np 抽出、1M HCl - 0.1M HF で逆抽出。その後、 $\text{LaF}_3$  共沈続いて陰イオン交換カラム操作を行い、最後にもう一度 Np フラクシオンに混入する恐れのある極微量 U を完全に取り除くために酢酸系での陰イオン交換カラム操作を実施している ( $\alpha$  線スペクトロメトリーで  $^{237}\text{Np}$  と  $^{234}\text{U}$  のピークが重なる)。図 4.6.3 に山本らの土壌や堆積物中の  $^{237}\text{Np}$  の放射化学分離による定量法を示す。また図 4.6.4 には  $\alpha$  線スペクトル例<sup>4)</sup> を示す。この方法での検出限界は 10,000 分計測で約 0.1mBq/試料である。

#### 4.6.2 放射化分析法

$^{237}\text{Np}$  の分析については、 $^{237}\text{Np}$  の比放射能が非常に低いので原子炉での熱中性子照射

により  $^{237}\text{Np}(n, \gamma)$  反応で生成する放射性核種  $^{238}\text{Np}$  ( $T_{1/2}=2.117\text{d}$ ,  $\beta^-$ ,  $E_r:0.984, 1.026, 1.028, 5\text{ MeV}$ ) の検出定量を利用した放射化分析法が適用しうる<sup>5-8)</sup>。この方法の感度と  $\alpha$ 線スペクトロメトリーによる感度の比較は以下に示すように容易に求めることができる<sup>5)</sup>。従来の  $\alpha$ 線スペクトロメトリーでの  $^{237}\text{Np}$  の計数率

( $A_1$ ) は (1) 式で表せる。

$$A_1 = f_1 \cdot e_1 \cdot N_1 \cdot \lambda_1 \quad \text{————— (1)}$$

ここで  $f_1, e_1$  はそれぞれ分岐比, 検出効率,  $N_1$  は  $^{237}\text{Np}$  の原子数,  $\lambda_1$  は  $^{237}\text{Np}$  の壊変定数である。一方, 中性子照射 ( $n, \gamma$ ) 反応によって生じる  $^{238}\text{Np}$  の計数率 ( $A_2$ ) は下式のようなになる。

$$A_2 = f_2 \cdot e_2 \cdot N_1 (\phi_{th} \cdot \sigma + \phi_{epi} \cdot I) (1 - e^{-\lambda_2 T}) e^{-\lambda_2 t} \quad \text{————— (2)}$$

ここで,  $f_2, e_2$  はそれぞれ分岐比, 検出効率,  $\phi_{th}, \phi_{epi}$  はそれぞれ熱中性束, 熱外中性子束,  $\sigma, I$  はそれぞれ熱中性の核反応断面, 熱外中性子の核反応断面,  $T$  は照射時間,  $t$  は冷却時間である。 $\alpha$ 線スペクトロメトリーに対する中性子放射化分析法の感度比 ( $K$ ) は, (2)/(1) より (3) 式のように表せる。

$$K = \frac{A_2}{A_1} = \frac{f_2 \cdot e_2}{f_1 \cdot e_1} \times \frac{(\phi_{th} \cdot \sigma + \phi_{epi} \cdot I) (1 - e^{-\lambda_2 T}) e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_1} \quad \text{(3)}$$

いま  $T=24\text{ h}$ ,  $t=24\text{ h}$  とし,  $\phi_{th} = 2 \times 10^{12}\text{ cm}^2/\text{s}$ ,  $\phi_{epi} = 10^{12}\text{ cm}^2/\text{s}$ ,  $\sigma = 170\text{ b}$ ,  $I = 770\text{ b}$  を (3) 式に代入することより

$K = A_2/A_1 \approx 2 \times 10^4 \cdot f_2 \cdot e_2 / f_1 \cdot e_1$  となる。ここで

$f_2 \cdot e_2 / f_1 \cdot e_1 = (0.2 \times 0.01) / (0.7 \times 0.25) \approx 0.01$  を用いると  $K = 200$  となり中性子放射化分析法は  $\alpha$ 線スペクトロメトリーに比して約 200 倍感度が高くなる。この方法で  $^{237}\text{Np}$  を測定する場合, 通常, まず, 始めに  $\text{Np}$  の放射化学分離を行い, 中性子照射後, 再び  $\text{Np}$  についての化学分離を行ってから放射能測定を行う。化学収率補正のため,  $^{238}\text{Np}$  がトレーサーとして加えられている。妨害反応としては (1)  $^{238}\text{U}(n, 2n)^{237}\text{U} \rightarrow ^{237}\text{Np}$  と (2)  $^{235}\text{U}(n, \gamma)^{236}\text{U}(n, \gamma)^{237}\text{U} \rightarrow ^{237}\text{Np}$  が考えるが,  $\mu\text{g}$  レベルの  $\text{U}$  では  $^{237}\text{Np}$  生成は無視できる。照射する前に  $\text{Np}$  の分析分離を行っているので実際にはほとんど問題にならない。図 4.6.5 に Germain らの方法<sup>8)</sup> を示すが, この方法での検出限界は

$1.3 \times 10^{-2}$  mBq ( $5 \times 10^{-10}$  mg)である。

#### 4.6.3 質量分析法

$^{237}\text{Np}$ のように物理的半減期の長い核種に対しては、放射能測定よりもむしろ原子数を測定する方法が手取り早い。この方法に用いられる質量分析法としては従来より使用されてきた表面電離型質量分析法 (TIMS)<sup>9, 10)</sup>が挙げられるが、これまで特殊な目的に使用され、高価であるためにそれほど多く普及していない。我が国では、環境中の長寿命放射能を測定する目的でのこの機器は1台もない。近年、この質量分析法に代わって、プラズマをイオン源とする誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS)が注目されるようになり、高感度多元素分析が可能な方法として利用が急速に進んでいる。質量分析部には四重極型のものが普及しているが、近年高分解能の二重収束型のものも市販されている。 $\text{Np}$ の分析に関しては、すでにこの方法が実試料に適用されており大きな威力を発揮している。この例として、筑波大のKimらが丸文株式会社の四重極型ICP-MS (VG/Elemental Plasma Quad PQ2Plus)を使用して、比較的高濃度にフォールアウトを蓄積している土壌、およびイギリスのSellafield再処理工場からの廃液で汚染されているIrish海の堆積物中の $^{237}\text{Np}$ を検討した結果をしてみる<sup>11-14)</sup>。図4.6.6、図4.6.7にそれぞれICP-MSの概念図、スペクトル例を、また表4.6.1、表4.6.2にそれぞれ測定例、検出限界を示す。表4.6.2からわかるように、 $\text{pg/ml}$ 濃度のレベルが測定可能である。実際の試料に対しては、 $\alpha$ 線スペクトロメトリーで記したような $\text{Np}$ の化学分離・精製がスペクトルやマトリックス効果などの干渉をなくする上で必要である。

IAEAのBaxterらのグループ<sup>15, 16)</sup>は、ICP-MSの試料導入に関して通常のサプライザーによる溶液 (効率1~3%)と併せて電熱気化法 (ETV)も検討しており、後者の方法ではIrish海のラーベングラスからの堆積物1gで十分に $\text{Np}$ や $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$ も測定できることを報告している (図4.6.8、表4.6.3)。さらに高感度な方法として二重収束型ICP-MS (図4.6.9)を用いる方法も表4.6.4に示すように検討されている<sup>17)</sup>。図4.6.10に従来の四重極型ICP-MSと二重収束ICP-MSのバックグラウンドおよび感度の比較を示すが、二重収束型ICP-MSの方が約100倍程度感度が高く、検出限界も表4.6.4に示す核種に対して $0.002 \sim 0.02 \text{ pg/ml}$ レベルとなっている。

## 参考文献

- 1) 山本政儀, 環境試料中の長寿命放射性核種の分析・測定法の現状と課題, 日本分析センター広報 JCAC No.15, p.15 (1988).
- 2) B. R. Harvey, G. A. Sutton, The properties of  $^{235}\text{Np}$  as a tracer and yield monitor in studies of the environmental behavior of neptunium, Nucl. Instrum. Methods A25 4, 172 (1987).
- 3) B. R. Harvey, L. M. Thurston, Analytical procedures for the determination of neptunium radionuclides in marine waters, sediments and biota, Ministry of Agriculture Fisheries and Food, Directorate of Fisheries Research, Lowestoff, ISSN 0953-4466 (1988).
- 4) M. Yamamoto, K. Chatani, K. Komura, K. Ueno, Development of alpha-ray spectrometric techniques for the measurement of low-level  $^{237}\text{Np}$  in environmental soil and sediment, Radiochim. Acta, 47, 63 (1989).
- 5) A. R. Byrne, Determination of  $^{237}\text{Np}$  in Cumbrian (UK) sediments by neutron activation analysis : preliminary results, J. Environ. Radioactivity, 4, 133(1986).
- 6) C. K. Kim, R. Seki, N. Ikeda, Determination of  $^{237}\text{Np}$  in soil samples by neutron activation analysis, Radioisotopes, 37 229 (1988).
- 7) P. Germain, P. Guegueniat, S. May, G. Pinte, Measurement of transuranic element, chiefly  $^{237}\text{Np}$  (by neutron activation analysis), in the physical and biological compartments of French shore of the English channel, J. Environ. Radioactivity, 5, 319 (1987).
- 8) P. Germain, G. Pinte, Neptunium-237 in the marine environment, Determination in animal and plant species in the English channel : Biological indicators and trophic relationships, J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 1, 49 (1990).
- 9) V. E. Noshkin, K. M. Wong, D. J. Eagle, C. Gatrousis, Transuranics at Pacific Atolls. I - Concentrations in the waters at Enewetak and Bikini, USAEC Report UCRL- 51612 (1974).
- 10) D. W. Eford, G. W. Knobeloch, R. E. Perrin, D. W. Perrin, D. W. Barr, An estimate of  $^{237}\text{Np}$  production during atmospheric testing, Health Phys., 47, 186 (1984).

- 11) 池田長生, 環境における長半減期放射性核種の最近の話題, 日本分析センター広報 JCAC No.18 p.2 (1990).
- 12) 金昌奎, 池田長生, 放射能測定によらない放射能分析—ICP 質量分析法の応用, Isotope News, 11, 6 (1990).
- 13) C. K. Kim, Y. Takaku, M. Yamamoto, H. Kawamura, K. Shiraishi, Y. Igarashi, S. Igarashi, H. Takayama, N. Ikeda, Determination of  $^{237}\text{Np}$  in environmental samples using inductively coupled mass spectrometry, J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 132, 131 (1989).
- 14) Y. Igarashi, C. K. Kim, Y. Takaku, K. Shiraishi, M. Yamamoto, N. Ikeda, Application of inductively coupled plasma mass spectrometry to the measurement of long-lived radionuclides in environmental samples, A review, Anal. Sci., 6, 157 (1990).
- 15) A. S. Hursthouse, M. S. Baxter, K. McKay, F. R. Livens, Evaluation of methods for the assay of neptunium and other Long-lived actinides in environmental matrices, J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 157, 281 (1992).
- 16) K. E. Sampson, R. D. Scott, M. S. Baxter, R. C. Hutton, The determination of  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Np}$  atomic ratios and  $^{237}\text{Np}$  concentrations within marine sediments, In : Radionuclides in the study of marine processes, Edited by P. J. Kershaw, D. S. Woodhead, Elsevier Applied Science, p.177 (1991).
- 17) S. K. Kim, R. Riki, S. Morita, S. Yamasaki, A. Tsumura, Y. Takaku, Y. Igarashi, M. Yamamoto, Application of a high resolution inductively coupled plasma mass spectrometer to the measurement of long-lived radionuclides, J. Anal. At. Spectrom., 6, 205 (1991).

表4.6.1 環境試料中の  $^{237}\text{Np}$ 測定と比較

試料	$^{237}\text{Np}$ 含有量 (mBq/kg乾)		
	ICP-MS法	NAA法	$\alpha$ 線スペクトロメリー
奥越高原土壌 (1987年採取)	$13.0 \pm 0.4$	$13.4 \pm 0.7$	—
冠山(福井県)土壌 (1983年採取)	$13.7 \pm 0.5$	$13.2 \pm 1.9$	$11.8 \pm 3.7$
ビキニ土壌 (1976年採取)	$(0.89 \pm 0.04) \times 10^3$	$(1.0 \pm 0.1) \times 10^3$	$(0.9 \pm 0.1) \times 10^3$
Ravenglass 沈積物 1	$(2.2 \pm 0.1) \times 10^3$	$(2.7 \pm 0.2) \times 10^3$	$(2.5 \pm 0.1) \times 10^3$
Ravenglass 沈積物 2*	$(6.1 \pm 0.1) \times 10^3$	$(6.3 \pm 0.4) \times 10^3$	$(6.4 \pm 0.3) \times 10^3$

\* 相互比較用試料： $\alpha$ 線スペクトロメトリーによる海外7研究所の定量値の平均は $6.2 \pm 0.1 \text{Bq/kg}$

表 4.6. 2 長寿命放射性核種に対しての四重極型 ICP-MS での検出限界

(仮定条件, イオン検出効率:  $10^{-7}$ , バックグラウンド: 5cps, 単位質量当りの  
時間: 90s, 溶液導入: 0.5ml/ml)

Nuclide	Half life/ year	Decay const./ $s^{-1}$	Detection limit	
			(Bq/ml)	(pg/ml)
Tc-99	$2.1 \times 10^5$	$1.1 \times 10^{-13}$	$1.0 \times 10^{-4}$	0.16
Th-232	$1.4 \times 10^{10}$	$1.6 \times 10^{-18}$	$1.5 \times 10^{-9}$	0.37
Np-237	$2.1 \times 10^6$	$1.1 \times 10^{-14}$	$1.0 \times 10^{-5}$	0.38
U-238	$4.5 \times 10^9$	$4.9 \times 10^{-18}$	$4.7 \times 10^{-9}$	0.38
Pu-239	$2.4 \times 10^4$	$9.2 \times 10^{-13}$	$8.9 \times 10^{-4}$	0.38

表 4.6.3 試料導入に際して、ETV とネブライザーを用いた場合の ICP-MS 測定の比較

Comparison of ETV with Liquid nebulisation

Method	Np-237 (pg/g)	Pu-239 (pg/g)	Pu-240 (pg/g)	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$
ETV	$77 \pm 27$	$250 \pm 36$	$65 \pm 17$	$0.26 \pm 0.03$
Liquid Nebulisation	$104 \pm 15$	$210 \pm 6$	$46 \pm 4$	$0.219 \pm 0.009$

Comparison of ICP-MS with  $\alpha$ -spectrometry

Method	$^{238} + ^{239}\text{Pu}$ (Bq/g)
ETV ICP-MS	$1.11 \pm 0.33$
Liquid Nebulisation	$0.86 \pm 0.04$
$\alpha$ -Spectrometry	$0.860 \pm 0.004$

表 4. 6. 4 長寿命放射性核種に対しての二重収束型 HR-ICP-MS での測定感度と検出限界

Table 2 Sensitivity and detection limits for long-lived radionuclides in HR-ICP-MS. Conversions of the mass and the activity are as follows:  $^{99}\text{Tc}$  ( $1\text{ pg ml}^{-1}$ ,  $0.64\text{ mBq ml}^{-1}$ );  $^{226}\text{Ra}$  ( $1\text{ pg ml}^{-1}$ ,  $37\text{ mBq ml}^{-1}$ );  $^{232}\text{Th}$  ( $1\text{ pg ml}^{-1}$ ,  $4.0\text{ nBq ml}^{-1}$ );  $^{237}\text{Np}$  ( $1\text{ pg ml}^{-1}$ ,  $26\text{ }\mu\text{Bq ml}^{-1}$ );  $^{238}\text{U}$  ( $1\text{ pg ml}^{-1}$ ,  $12\text{ nBq ml}^{-1}$ );  $^{239}\text{Pu}$  ( $1\text{ pg ml}^{-1}$ ,  $2.3\text{ mBq ml}^{-1}$ );  $^{240}\text{Pu}$  ( $1\text{ pg ml}^{-1}$ ,  $0.64\text{ mBq ml}^{-1}$ )

Nuclide	Half-life/years	Concentration of standard solution/ $\text{pg ml}^{-1}$	HR-ICP-MS without USN		HR-ICP-MS with USN	
			Counts	Detection limit*/ $\text{pg ml}^{-1}$	Counts	Detection limit/ $\text{pg ml}^{-1}$
$^{99}\text{Tc}$	$2.14 \times 10^5$	5.5	195 11 <sup>†</sup>	0.23 $0.14\text{ }\mu\text{Bq}^\dagger$	456 8 <sup>†</sup>	0.008 $5\text{ }\mu\text{Bq}^\dagger$
$^{226}\text{Ra}$	$1.60 \times 10^3$	1.36	117 12 <sup>†</sup>	0.03 $1\text{ mBq}^\dagger$	2683 27 <sup>†</sup>	0.006 $0.2\text{ mBq}^\dagger$
$^{232}\text{Th}$	$1.41 \times 10^{10}$	1.0	—	—	2435 379 <sup>†</sup>	0.02 $0.08\text{ nBq}^\dagger$
$^{237}\text{Np}$	$2.14 \times 10^6$	1.98	94 7 <sup>†</sup>	0.04 $1\text{ }\mu\text{Bq}^\dagger$	1814 6 <sup>†</sup>	0.002 $0.05\text{ }\mu\text{Bq}^\dagger$
$^{238}\text{U}$	$4.47 \times 10^9$	1.0	—	—	1919 302 <sup>†</sup>	0.02 $0.2\text{ nBq}^\dagger$
$^{239}\text{Pu}$	$2.41 \times 10^4$	16.76	815 6 <sup>†</sup>	0.04 $0.1\text{ mBq}^\dagger$	12461 14 <sup>†</sup>	0.005 $10\text{ }\mu\text{Bq}^\dagger$
$^{240}\text{Pu}$	$6.57 \times 10^3$	4.04	205 3 <sup>†</sup>	0.05 $0.03\text{ mBq}^\dagger$	3027 13 <sup>†</sup>	0.004 $3\text{ }\mu\text{Bq}^\dagger$

\* Detection limits calculated by using the equation in references 3 and 16.

† Counts of the blank solution ( $1\text{ mol dm}^{-3}\text{ HNO}_3$ ).

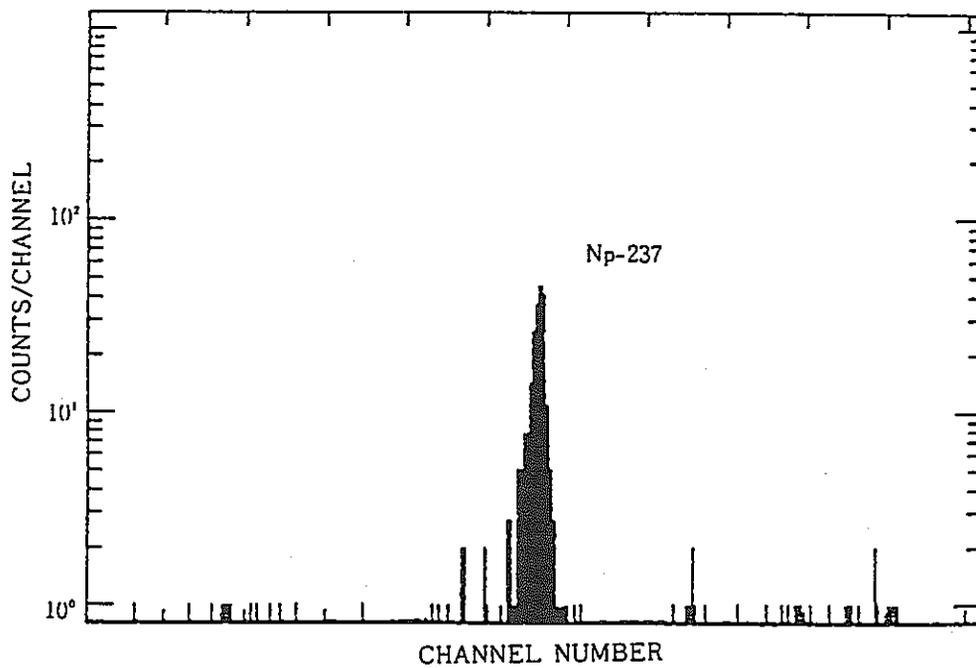
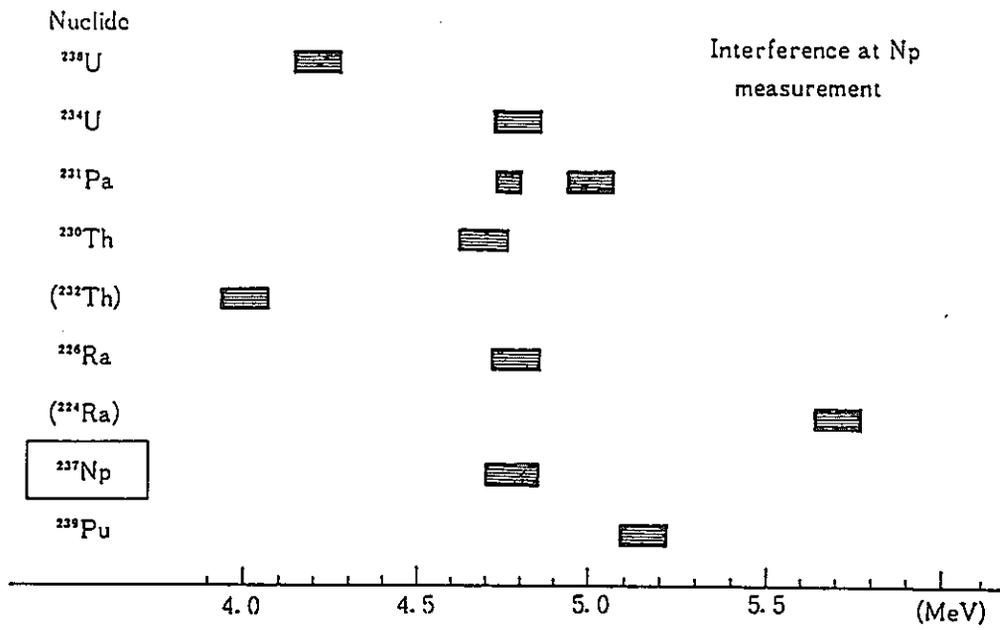


図4.6.1  $^{237}\text{Np}$ の $\alpha$ 線の妨害核種と $^{237}\text{Np}$ の $\alpha$ 線スペクトル

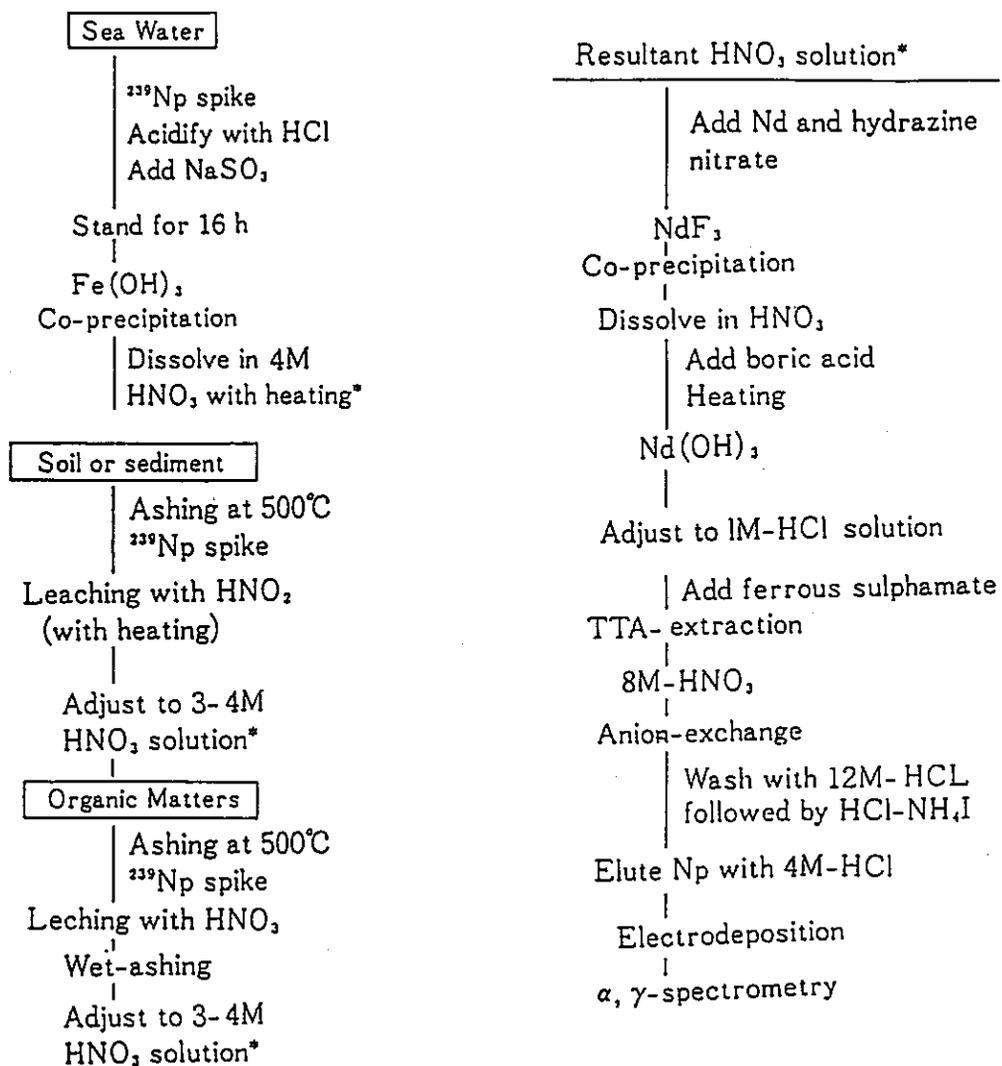


図4.6.2 環境試料中の $^{237}\text{Np}$ の分析スキーム

(Ministry of Agriculture, Fisheries and Food, Lowestoft. U.K.)

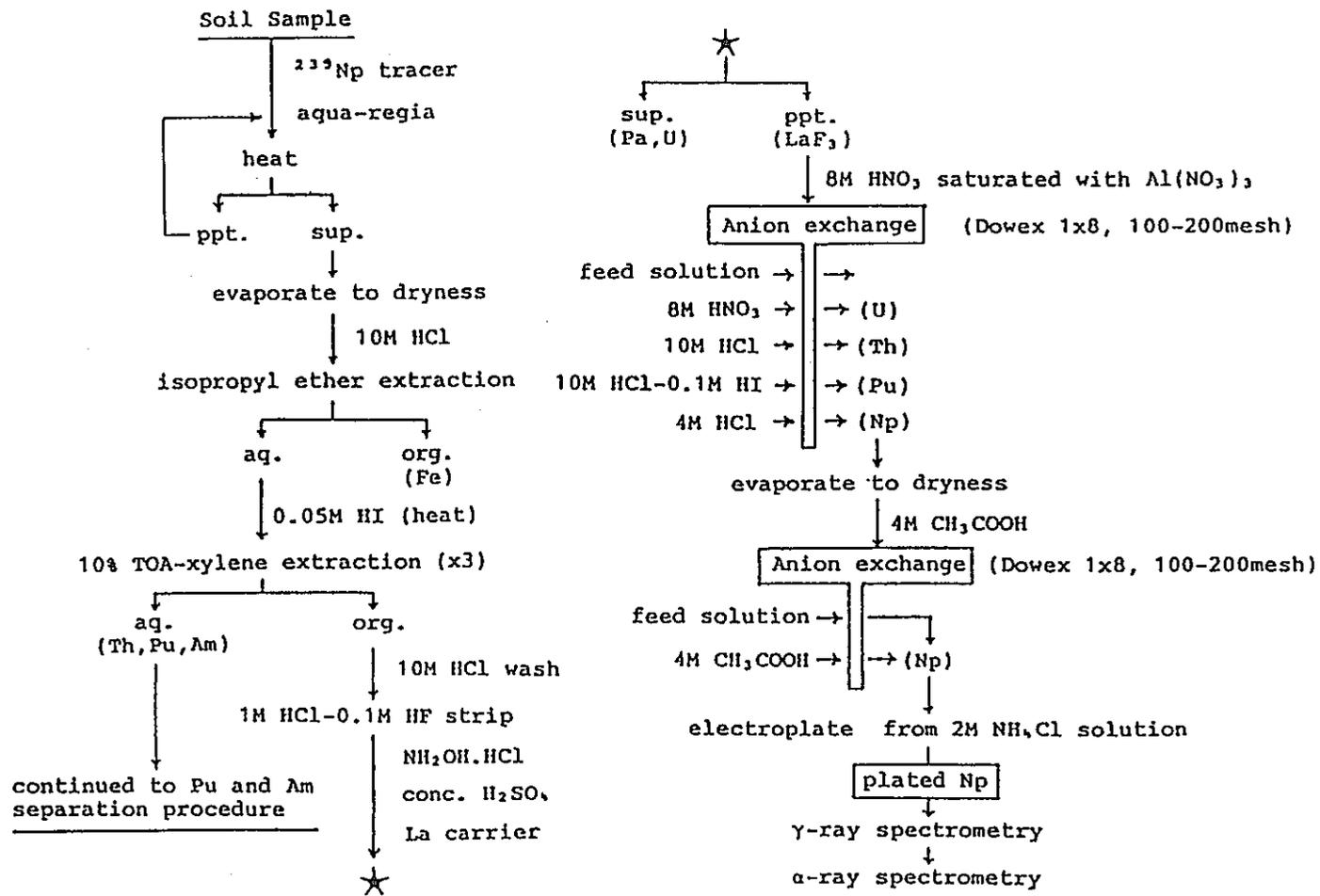


図 4.6.3 一般環境土壌および堆積物試料中の<sup>237</sup>Np分析スキーム

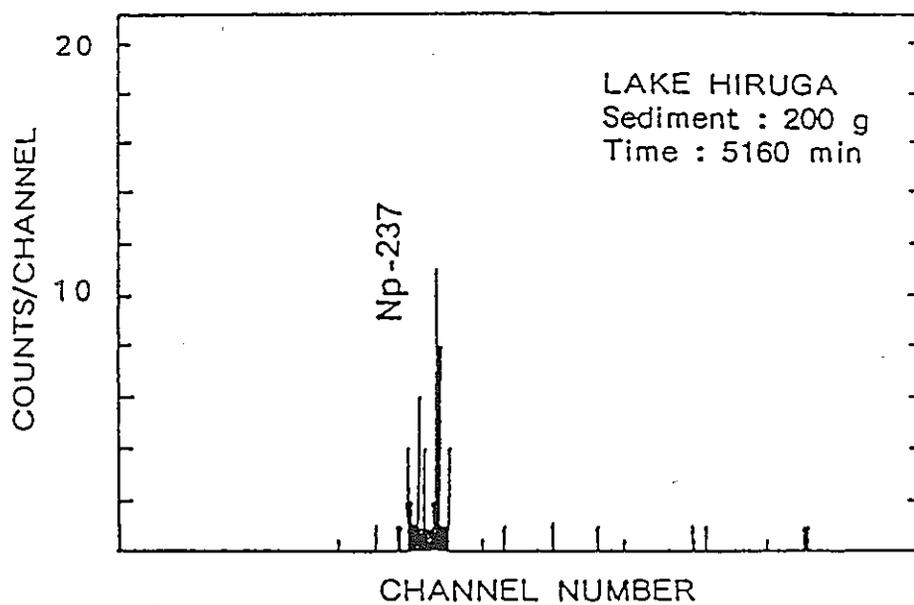
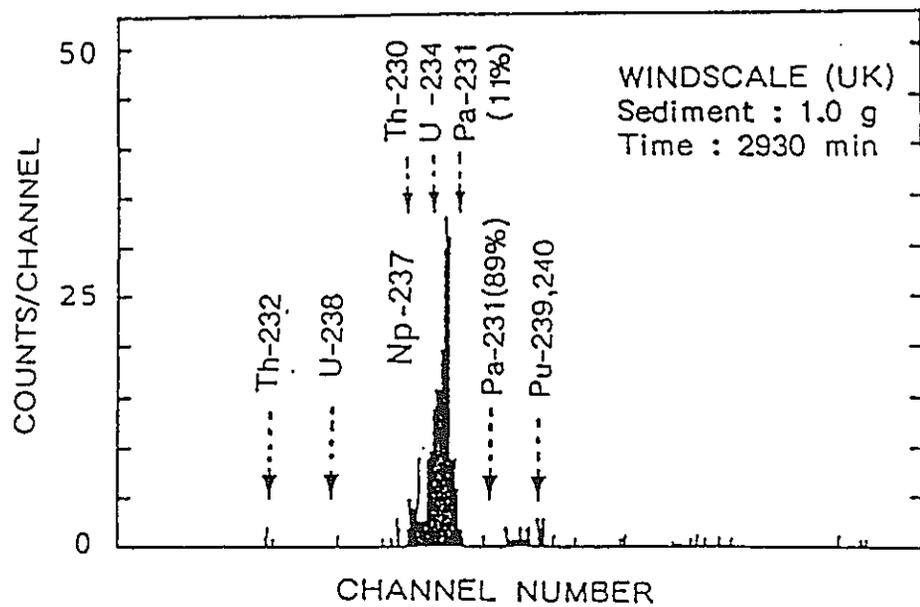


図4.6.4 堆積物試料中の $^{237}\text{Np}$ の $\alpha$ 線スペクトル

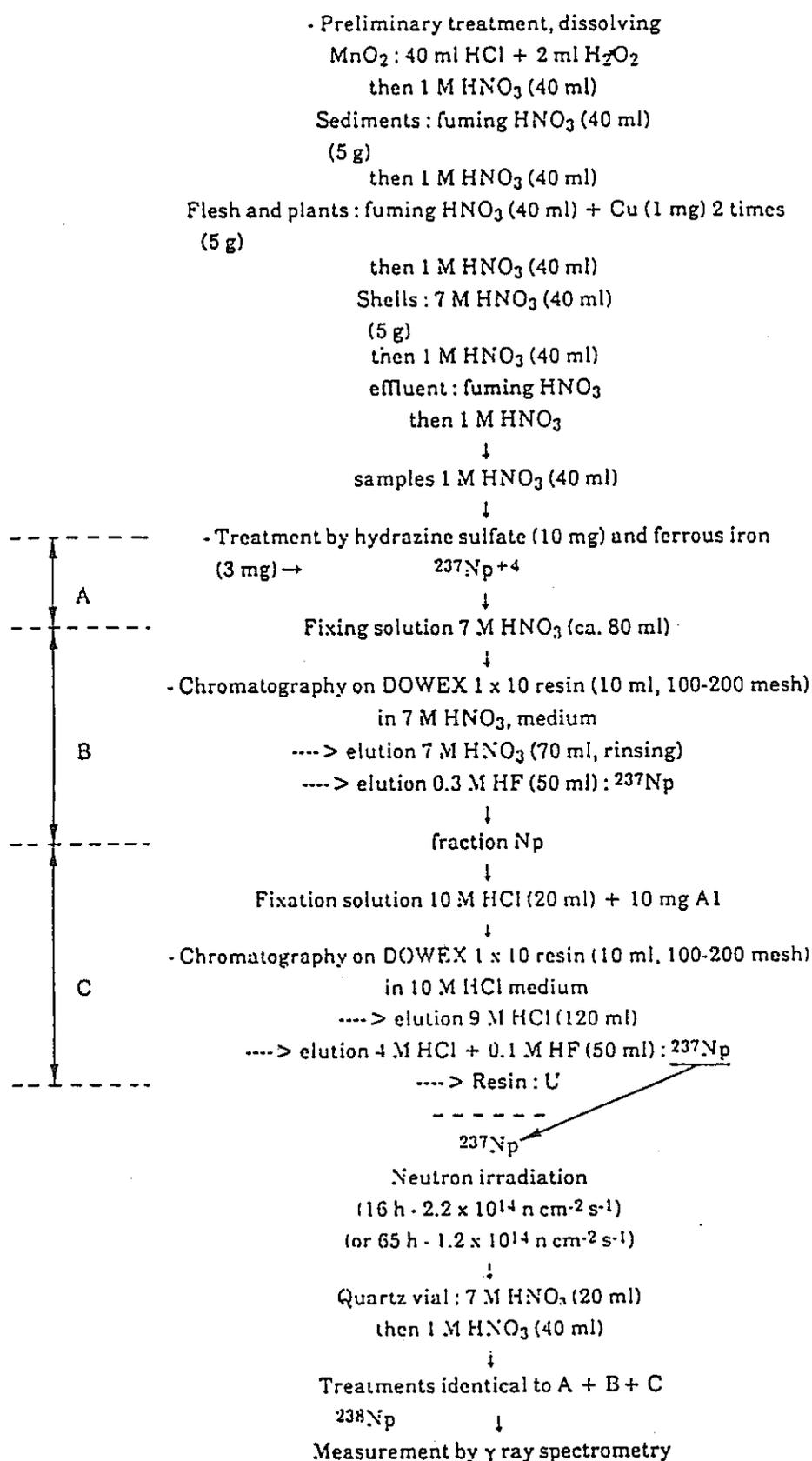


図 4. 6. 5 中性子放射化分析による環境試料中の $^{237}\text{Np}$ 分析スキーム (Germainらの方法)

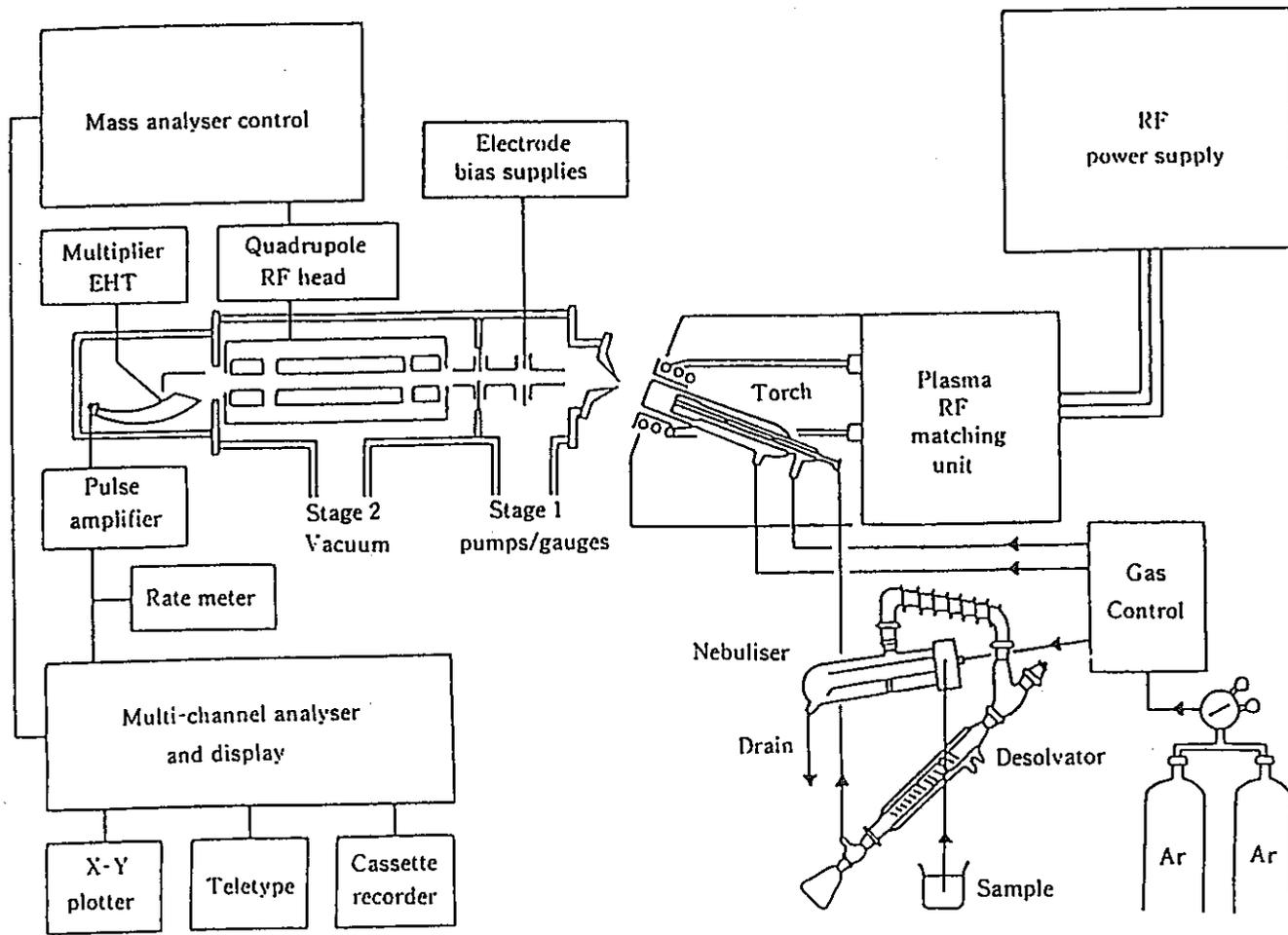


図4.6.6 四重極型のICP-MS装置の概念図

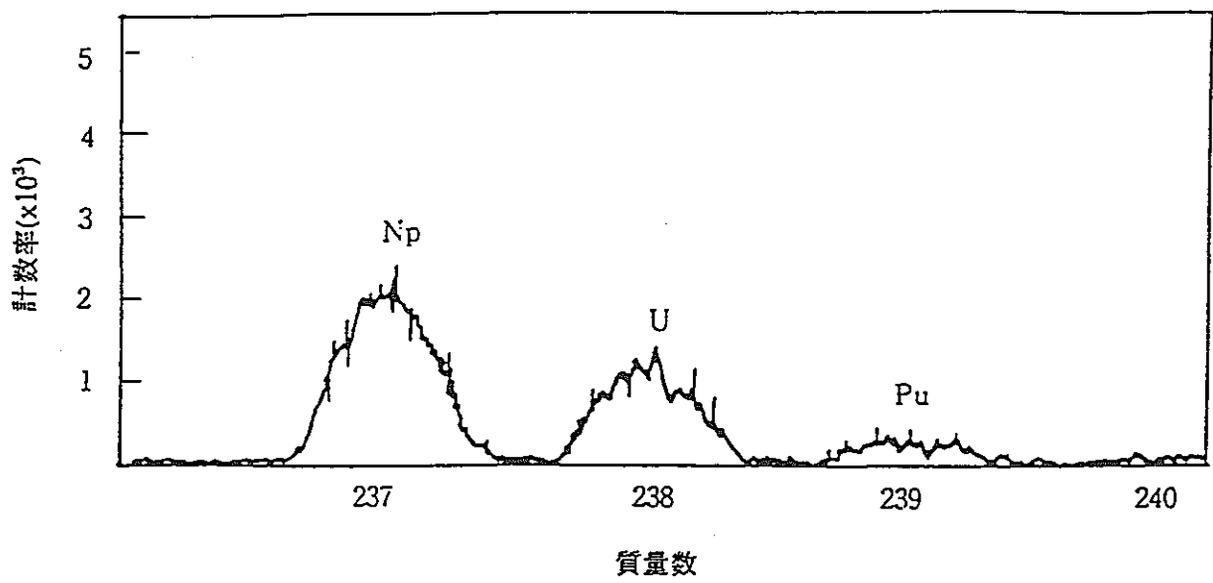


図4.6.7 土壤試料（福井県、冠山）中の<sup>237</sup>Npのマススペクトル

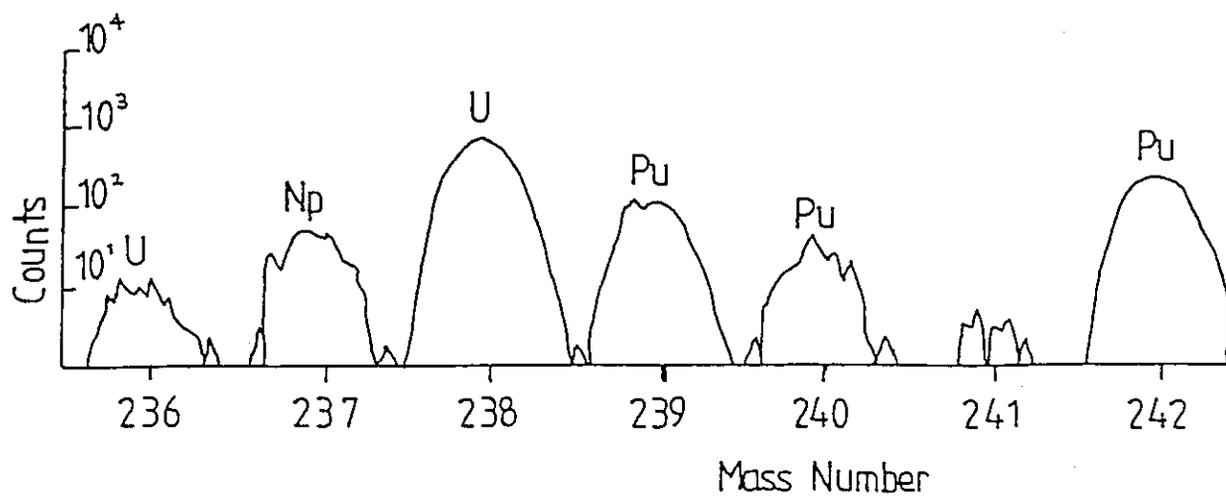


図4.6.8 Irish海沿岸のRavenglassで採取した堆積物(1g 使用)に対して得られたマスペクトル(BTV ICP-MS)

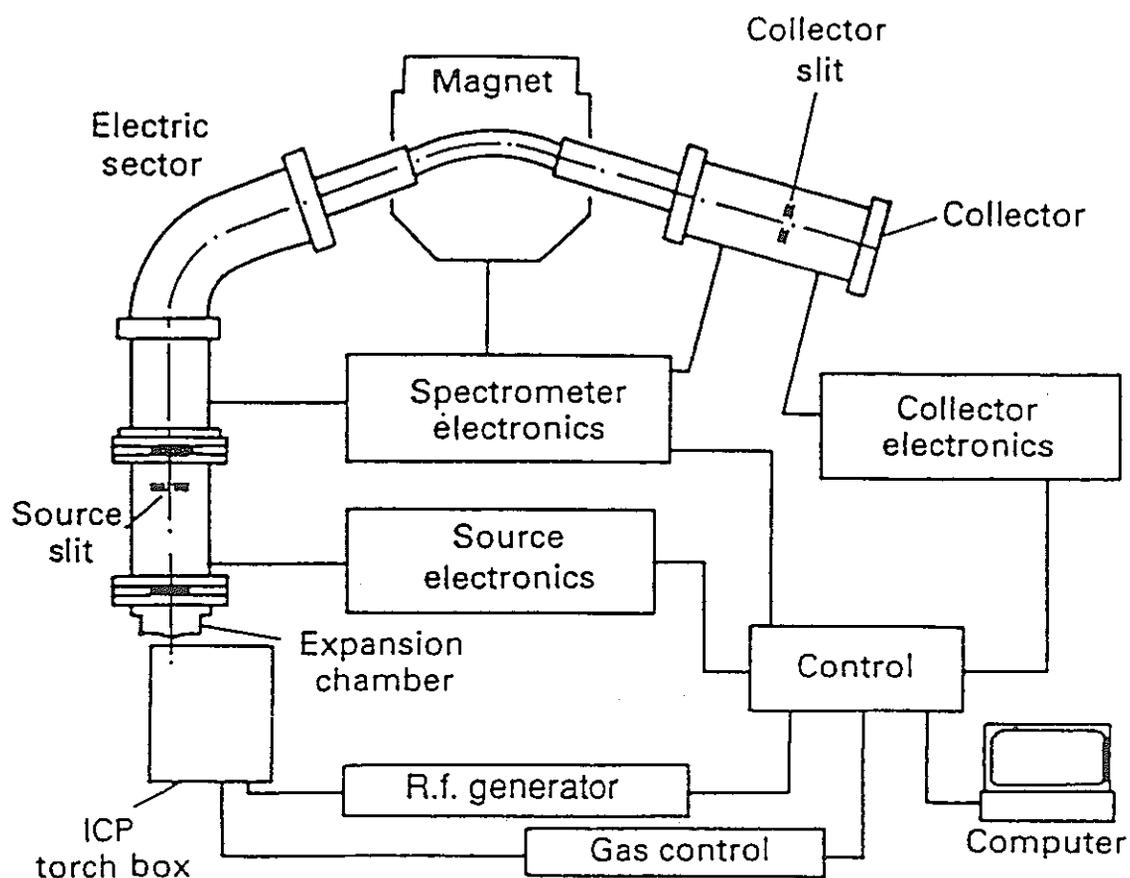


図4.6.9 二重収束型のHR-ICP-MS装置の概念図

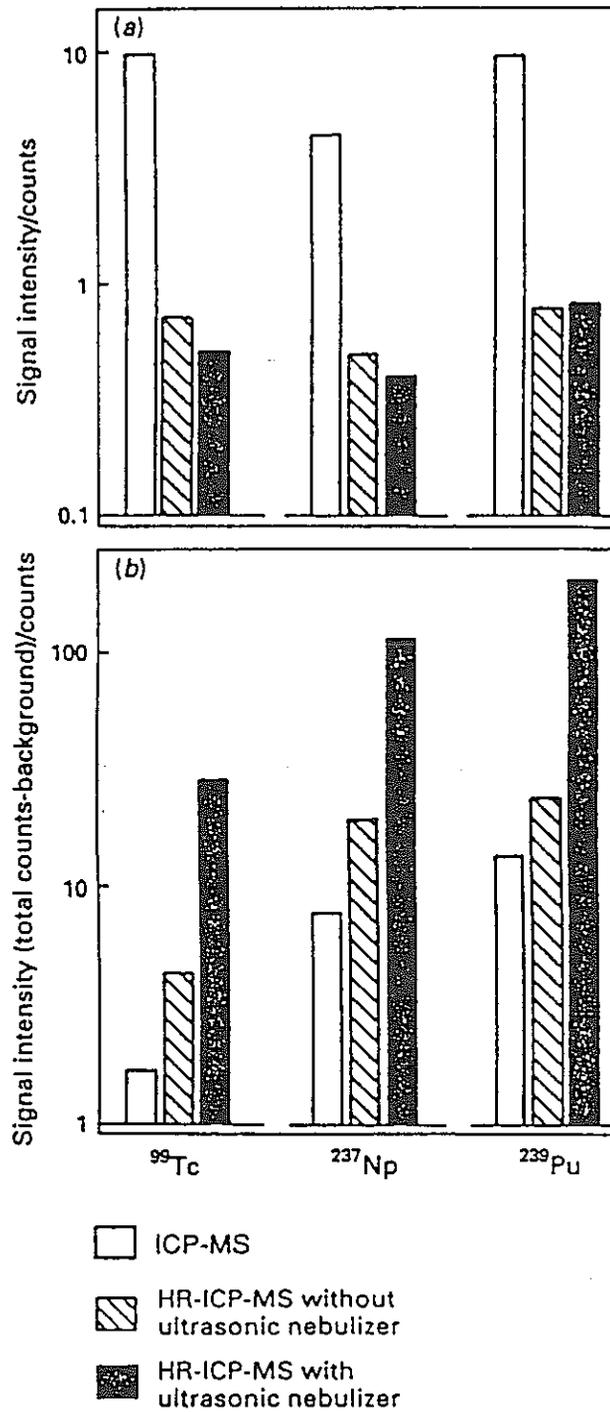


図 4. 6. 10 四重極型の ICP-MS と二重収束型の HR-ICP-MS の (a)バックグラウンドと (b)  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  に対する感度の比較  
 (Tc-99 : 1.8pg/ml,  $^{237}\text{Np}$  : 2.0pg/ml,  $^{239}\text{Pu}$  : 3.5pg/ml)

#### 4.7 プルトニウム

プルトニウムは、ここで取り上げた核種の中で最も多く研究され、その分析法に関しても多くの報告例がある。我が国でもすでに諸成果を取り入れた“プルトニウム分析法”が作成されている<sup>1)</sup>。大気圏核実験によって<sup>238</sup>Pu(8kCi), <sup>239</sup>Pu(210kCi), <sup>240</sup>Pu(150kCi), <sup>241</sup>Pu(4600kCi)などのPu同位体が環境中に放出されてきた<sup>1)</sup>。これらの核種はβ線放射体の<sup>241</sup>Puを除いてすべてα線放射体である。したがって、特別な場合を除いてほとんど化学分離・電着後、α線スペクトロメトリーによって測定される。最近ICP-MSを利用した測定も報告されつつある。

##### 4.7.1 化学分離・α線スペクトロメトリー

α線スペクトロメトリーでPu同位体の<sup>238</sup>Pu, <sup>239</sup>Pu, <sup>240</sup>Puを測定する場合、化学分離・精製が不可欠である。収率補正用のトレーサーには、以前<sup>238</sup>Pu( $T_{1/2} = 2.85\text{y}$ ,  $E\alpha = 5.77\text{ MeV}$ )が用いられたが、最近では<sup>242</sup>Pu( $T_{1/2} = 3.76 \times 10^5\text{y}$ ,  $E\alpha = 4.90\text{ MeV}$ )が一般的である。後者のトレーサーは、半減期が長く、目的とする<sup>238</sup>Pu, <sup>239</sup>Pu, <sup>240</sup>Puよりα線エネルギーが低く、しかも<sup>242</sup>Puの娘核種<sup>238</sup>Uの成長が無視できる利点がある。化学分離においては大量の共存イオンのみならず、α線スペクトロメトリーの際妨害となる図4.7.1に示す核種との分離が重要である。

試料溶液の調整に関しては、土や堆積物試料については500°C程度で灰化後、硝酸あるいは王水で煮沸浸出、生物試料の場合には450°Cで灰化を行い、硝酸-過酸化水素-過塩素酸等により完全分解を行う。また水試料については、Fe(III)担体を加えてFe(OH)<sub>3</sub>にPuを共沈させる。試料溶液の調整でとくに問題となる点は、試料が難溶性の焼結プルトニウムを含んでいる場合で、硝酸のみによる溶出方法では充分プルトニウムを溶出させることができない。この場合には、フッ化水素酸-硝酸混合溶液による処理操作法が取入れられている。さらに完全に近い方法としては、フッ化カリウム熔融、ピロ硫酸塩熔融<sup>2)</sup>、硫酸水素アンモニウム熔融<sup>3)</sup>を行う方法が報告されている。試料溶液の調整後は、一般に陰イオン交換樹脂分離またはT0A-キシレン溶媒抽出分離によりプルトニウムを分離・精製し、硫酸アンモニウム系電解液に溶解させ、ステンレス板上にプルトニウムを電着してα線スペクトロメトリーによって定量する。図4.7.1に<sup>242</sup>Puトレーサーを用いた場合のプルトニウムの代表的なα線スペクトルを示す。

<sup>238</sup>Puと<sup>240</sup>Puはα線エネルギーが接近していて弁別不可能なので両者の和<sup>238, 240</sup>Puと

して定量される。

#### 4.7.2 液体シンチレーション法

イオン交換あるいはTOA-キシレン溶媒抽出によりプルトニウムを精製したのち、シンチレーターを加え、最近発達の著しい低バックグランド液体シンチレーション計数装置でプルトニウムを測定することが可能である。液体シンチレーション測定装置は、半導体検出器に比べてエネルギー分解能が悪いので、 $\alpha$ 線放射能のPuに対しては、 $^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ の合計が得られる<sup>4)</sup>。

また $\beta$ 線に対しても計数効率が高いので、 $^{241}\text{Pu}$ の測定が同時に行える。通常この方法は、多試料を迅速かつ簡便に測定する方法として用いられている。回収率補正用トレーサー( $^{236}\text{Pu}$ または $^{242}\text{Pu}$ )を添加出来ないので、正確な分析結果を得るためには操作を注意深く行い、回収率を高める必要がある。 $\beta$ 線放射体の $^{241}\text{Pu}$ を正確に測定する場合にはこの液体シンチレーション法が最適である。五十嵐には補正用のトレーサーを添加してプルトニウムを化学分離・精製し、得たPuフラクションを2等分(図4.7.2)して、一方を $\alpha$ 線スペクトロメトリー他方をInstagelを加えて液体シンチレーションして計測(Aloka LB-1,表4.7.1)を行うことにより、下記式を用いて $^{241}\text{Pu}$ を正確に測定する方法を報告している<sup>22, 23)</sup>。この測定では、 $^{241}\text{Pu} / ^{239, 240}\text{Pu}$ 放射能比が得られるので、 $^{241}\text{Pu}$ 濃度は $\alpha$ 線スペクトロメトリーによって得られる。 $^{239, 240}\text{Pu}$ 濃度をこの比に乗じて求めることができる。

$$\frac{^{241}\text{Pu}}{^{239, 240}\text{Pu}} = \frac{\text{CLSC}(\beta)}{\text{CLSC}(\alpha)} \times \frac{\text{ELSC}(\alpha)}{\text{ELSC}(\beta)} \times \frac{C \alpha (\text{Total})}{C \alpha (^{239, 240}\text{Pu})}$$

ここで CLSC( $\beta$ ) = 液シンによる  $^{241}\text{Pu}$ の計数率

CLSC( $\alpha$ ) = " 全アルファーの計数率

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

ELSC( $\alpha$ ) = " アルファー線の計数効率

$C \alpha (\text{Total})$  =  $\alpha$ 線スペクトロメトリーでの全アルファー計数率

$C \alpha (^{239, 240}\text{Pu})$  = " での  $^{239, 240}\text{Pu}$ の計数率

#### 4.7.3 $^{239}\text{Pu}$ と $^{240}\text{Pu}$ の分別測定法

環境試料中に検出されるPuは質量数が238から242の同位体からなっている。Puの同位体組成はその起源（核実験由来のフォールアウト，核爆弾の材料，核燃料再処理Pu）によって異なるので，その由来を知るには同位体組成を測定するのが有効である。通常行われているSi検出器による $\alpha$ 線測定ではエネルギーの接近している $^{239}\text{Pu}$ と $^{240}\text{Pu}$ の分離は出来ず， $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比の測定は，ほとんどが質量分析器を行ってなされている。表4.7.2にこれまでに開発されてきた方法をまとめて示す<sup>7-15)</sup>。Puレベルが高い場合にはUmezawa等の $\gamma$ 線測定による方法も適用できる。通常環境試料では，レベルが低く，適用は不可能である。質量分析法以外の方法で測定試料に適用して良好な結果が得られているのは，小村等のGe-LEPSによるLX線測定とSi(Au)検出器による $\alpha$ 線測定を組み合わせる方法で，比較的簡単に $^{239}\text{Pu}$ と $^{240}\text{Pu}$ を測定できる。以下にその測定法の原理を示す<sup>13)</sup>。

$\alpha$ 線測定によって得られる $^{239, 240}\text{Pu}$ の全放射能 $[\alpha]$ に占める $^{239}\text{Pu}$ および $^{240}\text{Pu}$ の割合をそれぞれ $f$ および $1-f$ とし， $^{239}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$ 放射能比を $\beta$ とする。一方， $^{238}\text{Pu}$ ， $^{239}\text{Pu}$ および $^{240}\text{Pu}$ からのLX線の放出率を $l_8$ ， $l_9$ ， $l_0$ とし，LX線の全放射能を[LX]であらわせれば(1)，(2)式が得られる。

$$[\alpha] = [\alpha] \cdot f + [\alpha](1-f) \quad \text{—————} \quad (1)$$

$$[\text{LX}] = [\alpha] l_9 f + [\alpha] l_0(1-f) + [\alpha][\beta] l_8 \quad \text{——} \quad (2)$$

$$(1)(2) \text{ 式より } [\text{LX}]/[\alpha] = l_9 f + l_0(1-f) + [\beta] l_8 \quad \text{——} \quad (3)$$

$$\text{従って} \quad f = \frac{[\text{LX}]/[\alpha] - (l_0 + [\beta]l_8)}{l_9 - l_0} \quad \text{————} \quad (4)$$

$l_8$ ， $l_9$ ， $l_0$ の値は，既知であるから $[\text{LX}]/[\alpha]$ 比および $[\beta]$ を測定すれば $f$ を求めることができ， $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比の算出が可能である。 $[\text{LX}]/[\alpha]$ 比の絶対値は $[\text{LX}]/[\alpha]$ 比の正確に知られている $^{241}\text{Am}$ を同一条件で測定し，これで規格化すれば容易に求められる。この場合， $^{239, 240}\text{Pu}$ が測定線源（ステンレス板上にPuを電着）上に少なくとも数dpm（ $\sim 3$  dpm）は必要であり，測定の精度は図4.7.3に示すLX線測定にかかっている。できる限り小さな面積の線源を作製し，計数効率の高い大面積のGe-LEPS（またはSi-LEPS）を用いればさらに低レベルのPu線源に対しても適用が可能である。

#### 4.7.4 質量分析法

ネプツニウムの項で述べたように、質量分析法としては表面電離型質量分析装置 (TIMS)<sup>16)</sup> が挙げられるが (図4.7.4), 最近ICP-MSの利用が急速に進んでいる。測定には $\alpha$ 線スペクトロメトリーの項で述べたようなPuの化学分離・精製が必要であり、通常の四重極型ICP-MSでは pg/mlレベルの $^{239}\text{Pu}$ <sup>17)</sup> が、一方、二重収束型HR-ICP-MS では数~数十 ng/mlレベルの $^{239}\text{Pu}$ が測定可能である<sup>18)</sup>。  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  の同位体測定も可能 (図4.7.5, 表4.7.3) であるが、測定精度は良くても 0.3%程度でどうしてもTIMSに比べ劣る。

参考文献

- 1) 科学技術庁：「プルトニウム分析法」（放射能測定シリーズ 12）日本分析センター（1991）。
- 2) C. L. Sill, Simultaneous determination of alpha-emitting nuclides of radium through californium in large environmental and biological samples, Anal. Chem., 51, 1307 (1979).
- 3) M. Yamamoto, Rapid dissolution of plutonium in soil by fusion with ammonium hydrogen sulfate followed by plutonium determination by ion exchange and  $\alpha$ -spectrometry, J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 90, 401 (1985).
- 4) 科学技術庁：「液体シンチレーションカウンタによる放射性核種分析法」（放射能測定シリーズ 23）日本分析センター（1991）。
- 5) 五十嵐修一, 山本政儀, 伊藤希一郎, 環境試料中の  $^{241}\text{Pu}/^{239}, ^{240}\text{Pu}$  放射能比の測定, 福井県衛生研究所年報 第26集, p. 60 (1987).
- 6) M. Yamamoto, S. Igarashi, K. Chatani, K. Komura, K. Ueno, Determination of  $^{237}\text{Np}$  and  $^{241}\text{Pu}$  in environmental samples : in soil and sediment, J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 138, 365 (1990).
- 7) E. P. Hardy, P. W. Krey, H. L. Volchok, Global Inventory and Distribution of  $^{238}\text{Pu}$  from SNAP9A, United States Atomic Energy Commission, U. S. Energy Research and Development Administration, New York, NY, HASL-250 (1972).
- 8) E. P. Hardy, P. W. Krey, H. L. Volchok, Plutonium Fallout in Utah, U. S. Atomic Energy Commission, New York, NY, HASL-257 (1972).
- 9) V. E. Noshikin, C. Gatrouris, Fallout  $^{240}\text{Pu}$  and  $^{239}\text{Pu}$  in Atlantic marine samples, Earth Planet. Sci. Lett. 22, 111 (1974).
- 10) H. Umezawa, T. Suzuki, S. Ichikawa, Gamma-ray spectrometric determination of isotopic ratios of plutonium, J. Nucl. Sci. Technol. 13, 327 (1976).
- 11) T. E. Sampson, S. T. Hsue, J. L. Parker, S. S. Johnson, D. F. Bowersox, The determination of plutonium isotopic composition by gamma-ray spectroscopy, Nucl. Instr. Meth., 193, 177 (1982).
- 12) S. Hisamatsu, M. Sakanoue, Determination of transuranium elements in so-called Bikini ash samples and marine sediment samples collected near Bikini Atoll,

- Health Phys., 35, 301 (1978).
- 13) K. Komura, M. Sakanoue, M. Yamamoto, Determination of  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  ratio in environmental samples based on the measurement of Lx/  $\alpha$ -ray activity ratio, Health Phys., 46, 1213 (1984).
  - 14) T. Nakanishi, Y. Seki, M. Sakanoue, Measurement of  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  ratio in the environmental plutonium by  $\alpha$ -spectrometry and track counting, Proc. of the 23rd Symp. on Radiochemistry, 11-13 October 1979, Toyonaka, Japan, p.72 (Tokyo:Japan Chemical Society), (1979).
  - 15) T. Matsunami, A. Mizohata, T. Mamuro, T. Tsujimoto, K. Katsurayama, Measurement of isotopic ratio of plutonium in environmental samples (II), Proc. of the 25th Annual Meeting of the Japan Radiat. Res. Soc., 5-7 October 1982, Akita, Japan, p.95 (Chiba:Japan radiation Research Society), (1982).
  - 16) K. O. Buessler, J. E. Halverson, The mass spectrometric determination of fallout  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{240}\text{Pu}$  in marine samples, J. Environ. Radioactivity, 5, 425 (1987).
  - 17) Y. Igarashi, C. K. Kim, Y. Takaku, K. Shiraishi, M. Yamamoto, N. Ikeda, Application of inductively coupled plasma mass spectrometry to the measurement of long-lived radionuclides in environmental samples, A review, Anal. Sci., 6, 157 (1990).
  - 18) S. K. Kim, R. Riki, S. Morita, S. Yamasaki, A. Tsumura, Y. Takaku, Y. Igarashi, M. Yamamoto, Application of a high resolution inductively coupled plasma mass spectrometer to the measurement of long-lived radionuclides, J. Anal. At. Spectrom., 6, 205 (1991).

表4.7.1 液体シンチレーションカウンター（アロカ LB-1）での  $^{241}\text{Pu}$ 測定条件

	H-channel	C-channel	P-channel
Gain	0.5 x 100	0.5 x 10	0.5 x 1
Window	50 ~ 600	60 ~ 750	150 ~ 640
Background. ( cpm )	5	18	8
Counting Eff.			
$\beta$ (%) $^{241}\text{Pu}$	23.9		
$^3\text{H}$	24.0	0.17	0
$\alpha$ (%) $^{242}\text{Pu}$	0	0.38	97.0

Counting vial: 100 ml Teflon (1M HCl 5 ml + Instagel 95 ml)

表4.7.2  $^{239}\text{Pu}$ と $^{240}\text{Pu}$ 分別測定法

---

質量分析器による方法 環境試料の測定	Hardy et al. (1972他) Noshikin et al. (1974)
$\gamma$ 線測定による方法	Umezawa et al. (1976) Sampson et al. (1982)
Pu-239とPu-240のLX線放出率の違いを利用する方法 原子核乾板により conversion electronと $\alpha$ 線 トラックをの計測	Sloth et al. (1956)
LX/ $\alpha$ 放射能比の測定による	久松ら (1975) Komura et al. (1983)
熱中性子によるPu-239の核分裂反応を利用する方法 Fissionトラックと $\alpha$ 放射能の測定による	中西ら (1979)
Fission Productと $\alpha$ 放射能の測定による	松並ら (1982)

---

表4.7.3 ICP-MSとフィッシュントラック法による  $^{239}\text{Pu}$ と  $^{240}\text{Pu}$ 同位体測定と比較

試料	$^{239,240}\text{Pu}$ 含有量 (Bq/kg乾)	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 放射能比	
		ICP-MS法	フィッシュントラック法
奥越高原土壌	$9.56 \pm 0.77$	$0.66 \pm 0.03$	$0.76 \pm 0.04$
長崎市西山土壌	$29.0 \pm 0.4$	$0.120 \pm 0.004$	$0.11 \pm 0.01$
Ravenglass NRPB シルト	$(12.5 \pm 0.2) \times 10^3$	$0.73 \pm 0.01$	—

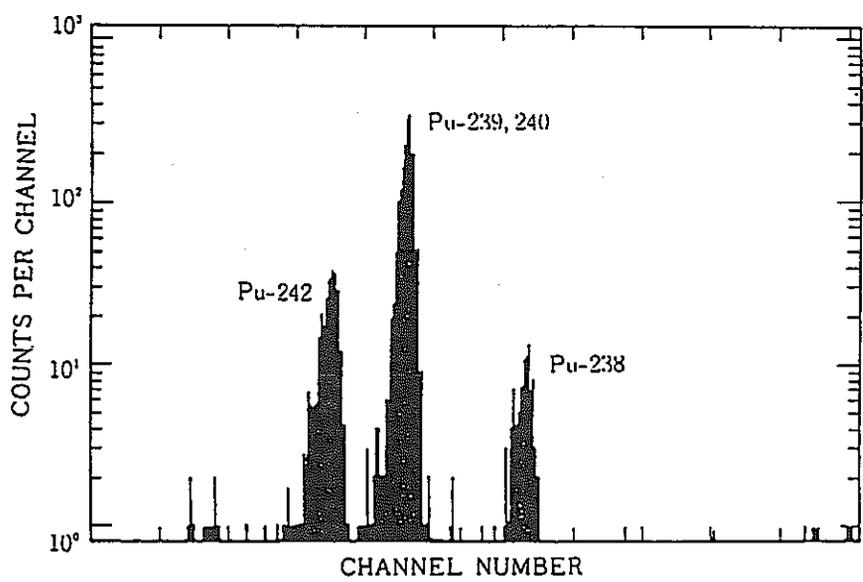
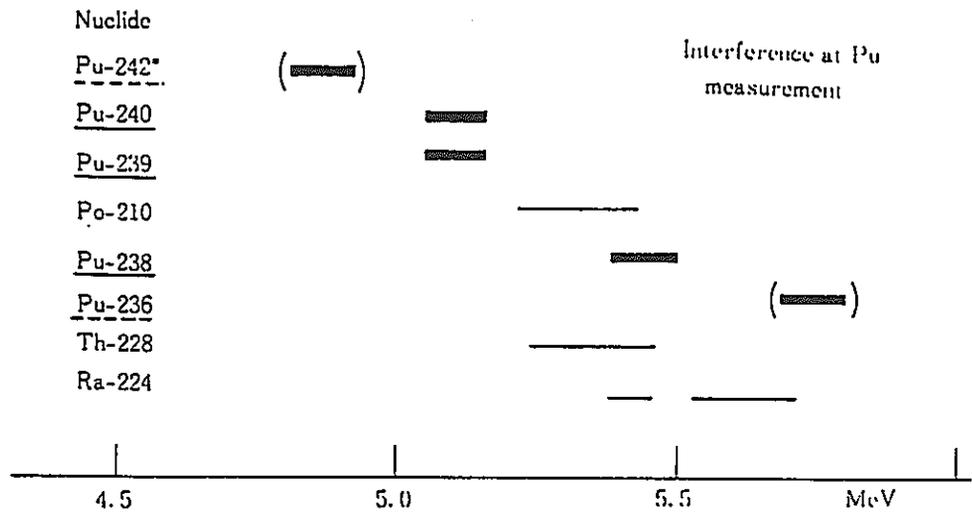


図4.7.1 Puの $\alpha$ 線の妨害核種とPuの $\alpha$ 線スペクトル  
 ( $^{242}\text{Pu}$ は化学収率補正のトレーサー)

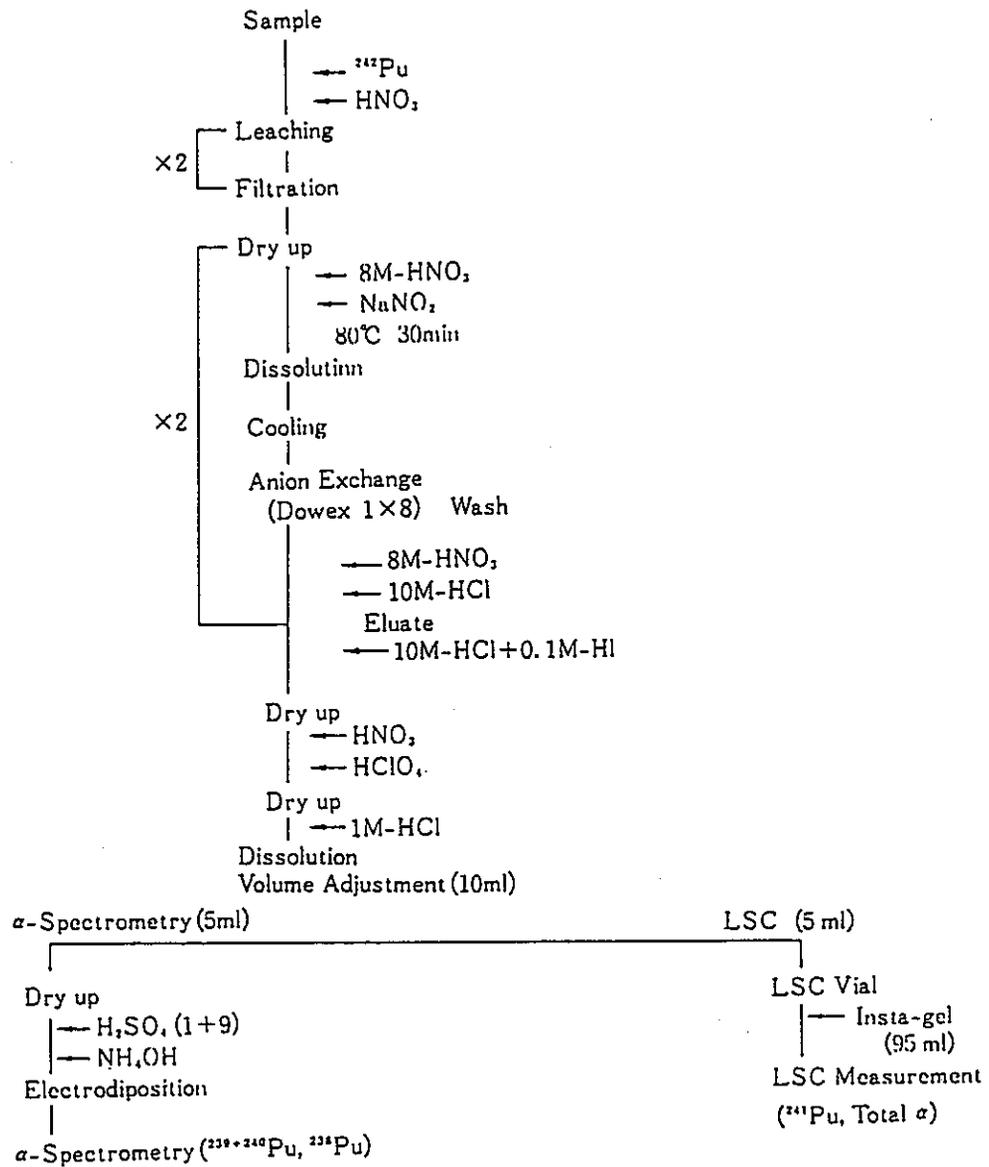


図4.7.2  $\alpha$ 線スペクトロメトリーによる  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ と液体シンチレーションカウンターによる  $^{241}\text{Pu}$ の同時測定のための分析スキーム

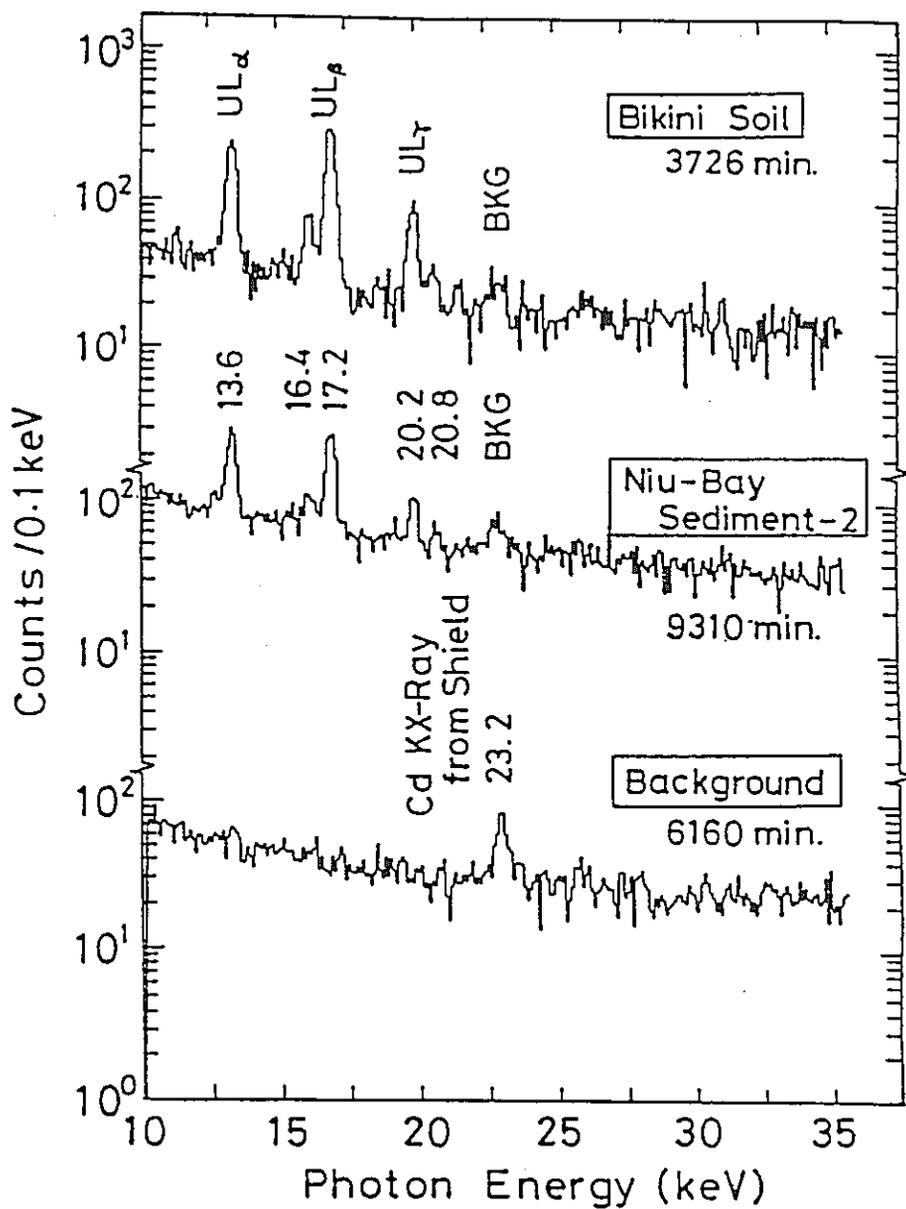


図4.7.3 環境試料から分離・精製、電着して得たPu線源に対するGe-LEPS スペクトル (10~35 keV)

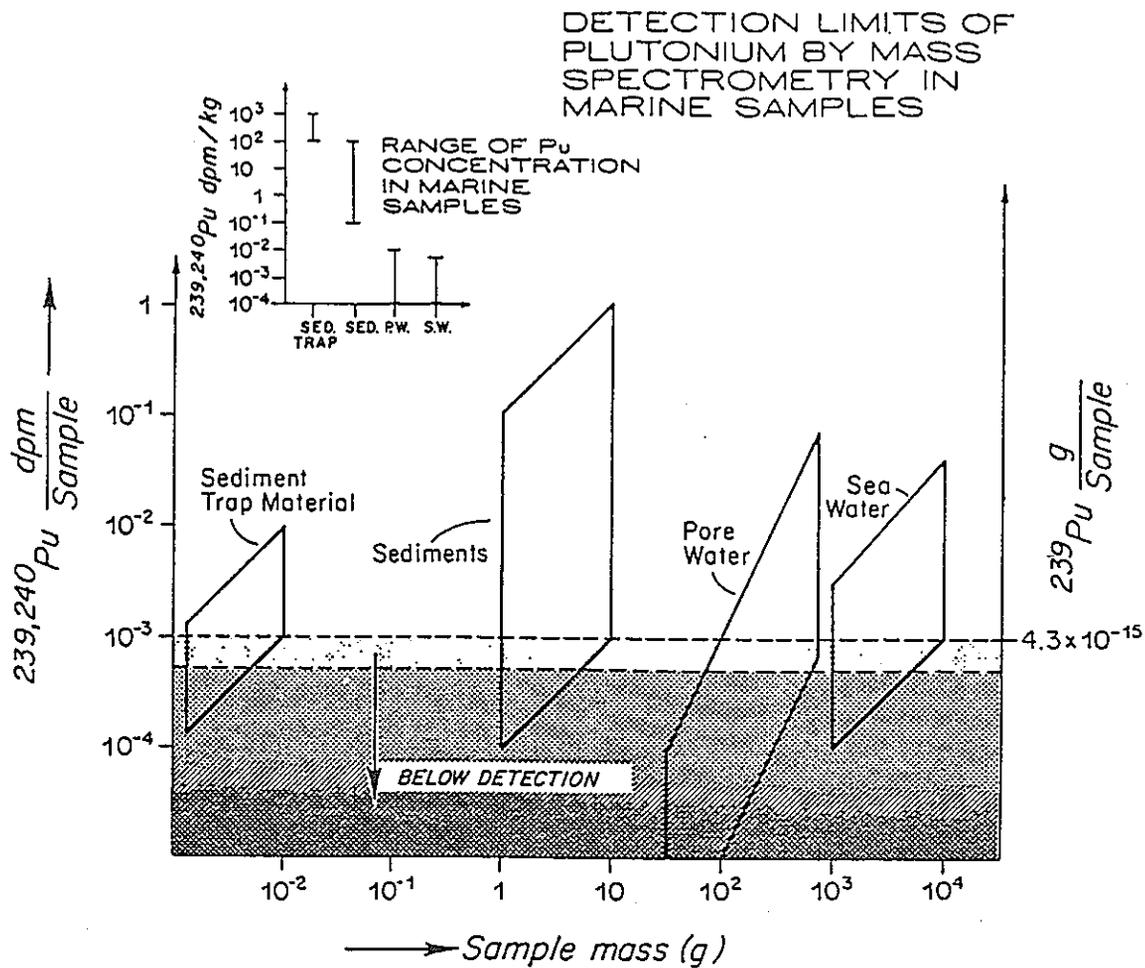


図 4.7.4 ICP-MSによる  $^{239}\text{Pu}$ と  $^{240}\text{Pu}$ のマススペクトル

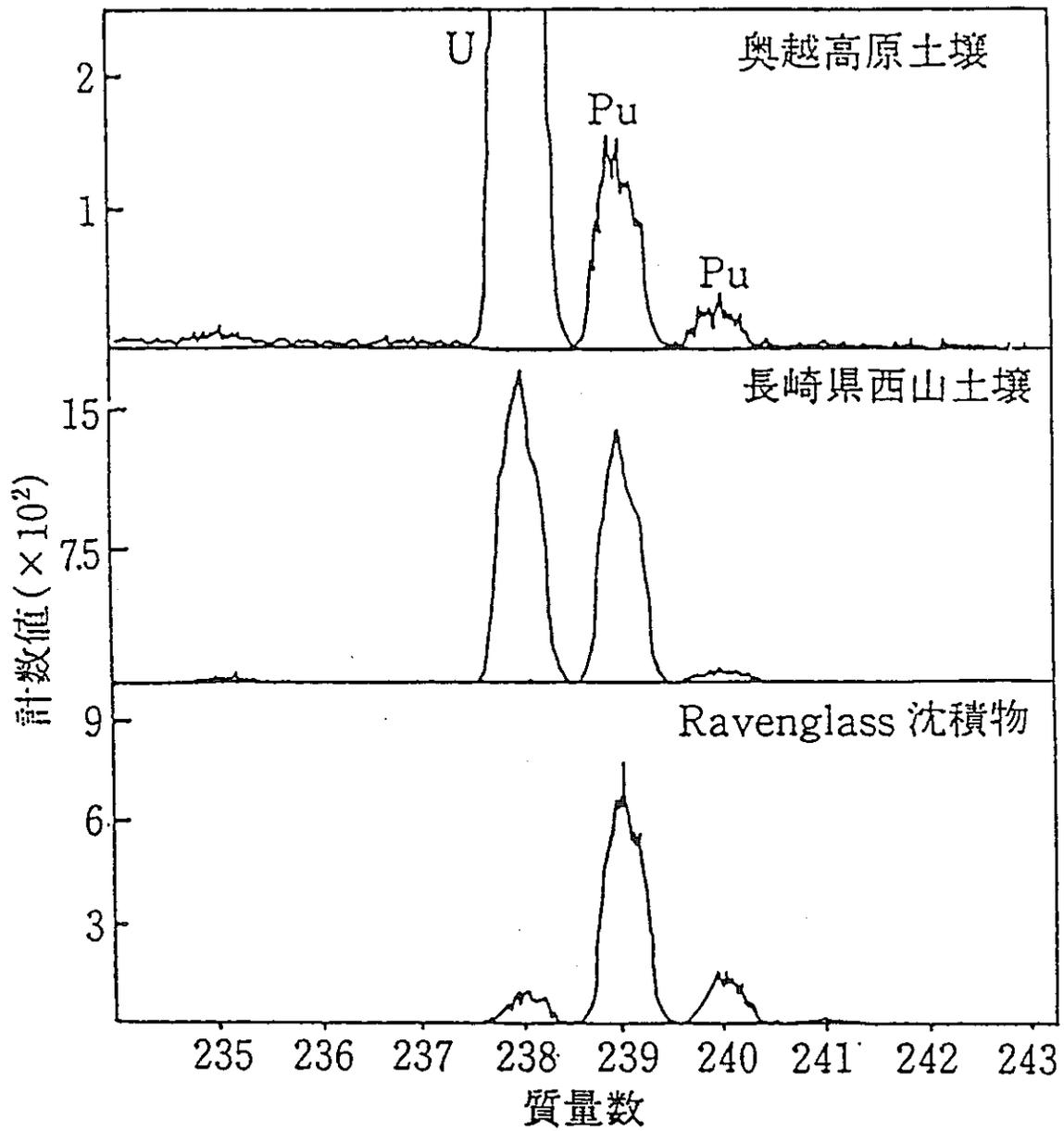


図4.7.5 電離型質量分析法による海洋試料中のPuの検出限界

$$({}^{239}, {}^{240}\text{Pu} = 10^{-3}\text{dpm} = 1.70 \times 10^{-5} \text{ Bq})$$

$$= 4.3 \times 10^{-15} \text{ g } {}^{239}\text{Pu} : {}^{239}\text{Pu}/{}^{240}\text{Pu} \text{ 原子比} = 0.18)$$

#### 4.8 アメリシウム

現在、一般環境中に存在するアメリシウムはほとんど全て半減期 433年の  $^{241}\text{Am}$ であり、核実験によって環境中に放出されたものである。核爆弾中に含まれていた  $^{241}\text{Am}$ は無視できる量であったが、核爆弾中の  $^{241}\text{Pu}$ あるいは核爆発時にU, Puの中性子捕獲によって生じた  $^{241}\text{Pu}$ より成長したものである。 $^{241}\text{Pu}$ は半減期14.4年で $\beta$ 崩壊し、 $^{241}\text{Am}$ となる。このため、環境中の  $^{241}\text{Am}$ 量は次第に増加し、2020-2030年には最大となり、放射能量で  $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ の42%に達する見込である。現在は、フォールアウトが蓄積されている土壤中の放射能比で  $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ の30%程度となっている。

##### 4.8.1 アメリシウム測定法

環境中の  $^{241}\text{Am}$ の測定法としてはSi半導体検出器による $\alpha$ 線スペクトロメトリーを用いるのが主流であり、定量下限は4000秒測定で0.1mBq程度である。試料中の  $^{241}\text{Am}$ 濃度が高ければ、低エネルギー用Ge半導体検出器<sup>1)</sup>、Phoswich検出器<sup>2)</sup>による測定、あるいは低レベル液体シンチレーション測定も可能となる。遮蔽を十分に行なえば、低エネルギー用Ge半導体検出器、Phoswich検出器の検出下限はそれぞれ10mBq、6mBqである。しかし、Amに対して十分な選択性を持つ手法はSi半導体検出器による $\alpha$ 線スペクトロメトリーと低エネルギー用Ge半導体検出器による $\gamma$ 線スペクトロメトリーだけである。液体シンチレーション測定およびPhoswich検出器を用いた場合には化学収率補正用のトレーサーが使えないため、化学収率を一定とし、なおかつ、他の放射性核種との分離を確実にしなければならない。これは通常的环境試料中のような低レベルのAmの分析ではなかなか困難と思われる。Np, Puなどの長半減期の超ウラン元素ではICP-MSを用いた高感度測定が可能であるが、 $^{241}\text{Am}$ では半減期が短く、感度は落ちる。このため、一般的には、放射化学的に  $^{241}\text{Am}$ を分離した後に、Si検出器による $\alpha$ 線スペクトロメトリーが行なわれる。そこで、まず、 $\alpha$ 線スペクトロメトリーのための放射化学分離操作について記述し、つぎに低エネルギー $\gamma$ 線スペクトロスコーピーについて触れる。

##### 4.8.2 アメリシウムの放射化学的分離

$^{241}\text{Am}$ の化学分離はPuに比較するとやや複雑であり、稀土類元素との分離が必要となる、また、 $^{241}\text{Am}$ の分析を単独で行なうことは稀であり、多くはNp, Puの分析と同時に  
行なう。Np, Puは硝酸溶液から陰イオン交換樹脂や TOAへの分配係数が大きい  
ため、こ

れらが頻用されるが、この際の樹脂カラムからの流出液あるいは TOA抽出の水層がAmの分析に用いられることが多い。また、分析操作が複雑であるため、実試料で一定の化学収率を常に上げることは困難であり、化学収率補正用のトレーサーとして  $^{243}\text{Am}$ 、あるいはAmと挙動が似ている  $^{244}\text{Cm}$ が用いられる。

表4.8.1にLivens<sup>3)</sup>によってまとめられた環境試料に適用された手法<sup>4) - 10)</sup>を示した。この表は試料を溶液とした後の処理をまとめたものであるが、Amの分析には比較的大量の試料を処理する必要があるため、前処理としてのマトリックス元素からの分離と放射化学的にAmを精製する処理過程に分けて記載されている。

前処理としてよく用いられるのは共沈操作であり、種々の沈殿が用いられる。水酸化鉄、シュウ酸Ca、リン酸Bi、フッ化Laなどがよく使用される。シュウ酸Ca共沈はマトリックスからの分離は良好であるが、後の操作の妨害となるシュウ酸を除くため、550°Cの電気炉内で分解し、炭酸塩としなければならないのが煩雑である。

マトリックスの大部分を除いた後に、Puなどを硝酸溶液から陰イオン交換樹脂、あるいは TOA抽出によって分離する。TTAが用いられることもある。その後、さらに妨害元素の除去のために陰イオン交換樹脂、あるいは TTA抽出が行なわれる。 $\alpha$ 線スペクトロメトリー用の薄い線源を得るためには稀土類元素から分離しなければならない。このためにチオシアン酸系での陰イオン交換なども行なわれたが、最近ではHolm<sup>10)</sup> が取入れた硝酸メタノール系での陰イオン交換がよく用いられる。これは、硝酸メタノール溶液として陰イオン交換樹脂に負荷し、チオシアン酸塩メタノール溶液で稀土類を溶出し、塩酸メタノール溶液でAmを溶離するものである。この方法は稀土類の他、微量の鉄などの元素からの分離も良好で、蒸発残渣をほとんど含まないAmフラクションを得ることができる。

Am分離の概要は上述のとおりであるが、これらの内、代表的な分離法および特徴のあるものを以下に記す。

#### 4.8.2.1 科学技術庁プルトニウムアメリカウム逐次分析法<sup>20)</sup>

この方法はPuとAmを同時に分析する方法である。方法としてはPuとAmそれぞれについて2つの方法が併記されている(図4.8.1, 図4.8.2)。すなわち、Puの分析について陰イオン交換樹脂を用いた方法と TOA抽出法である。一般的には溶媒抽出法は処理時間が短くなるが、手間がかかる。イオン交換法はその逆となり、処理時間は長い、手間

は比較的少ない傾向となる。Puの分析操作に先立つマトリックスからの大まかな分離は採用されていない。イオン交換法、溶媒抽出法ともPuだけではなくNp、Thも分離されており、これらの分析も同時に可能である。

Amの分析に際しては、まず、シュウ酸Caによる共沈によってマトリックスの除去を行ない、その後、イオン交換樹脂だけを用いる方法と TTA抽出とイオン交換樹脂を組合わせた方法が併記されている。イオン交換法では硝酸系と塩酸系の陰イオン交換樹脂により、残存するU、Th、Bi、Po、Puを取り除き、最後に稀土類との分離を硝酸メタノール系の陰イオン交換で行なっている。TTA抽出・イオン交換法では、TTAによって、pH2の硝酸溶液からThなどを抽出した後に、pH4とした溶液からAmを抽出し、硝酸によって逆抽出を行なう。稀土類との分離はイオン交換法と同様である。

精製されたAmフラクションは硫酸アンモニウム溶液からステンレス板に電着される。電着後、電着板を赤熱することによりPoを除去する。環境試料中での $^{210}\text{Po}$ 濃度はAmに比較して高く、しかも、トレーサーとして用いられる $^{243}\text{Am}$ と同様のエネルギーの $\alpha$ 線を放出し、通常、環境試料の測定に用いられるSi半導体検出器ではスペクトル上で分離できない。

環境試料にこれらの方法を適用した研究室間比較が行なわれており、表4.8.2、表4.8.3に用いられた試料と参加分析機関および結果を示した。これによると平均のAm回収率は土壌と灰試料については概ね80%であるが、海水については平均58%であった。また、土壌、灰試料についても50%を切る回収率も散見され、改良の余地のあることを伺わせる。

この方法では、Puの分離処理以前にマトリックスの除去を行っていないが、骨試料のようにリン酸濃度の高い試料についてはPuの収率が落ちるため、リン酸濃度を低下させる処理が必要である<sup>21)</sup>。

#### 4.8.2.2 Afsarの方法<sup>12)</sup>

この方法はAmだけを分析対象とし、Amの抽出にTOPOによる抽出クロマトグラフィーを用いているのが特徴である。分析操作の概要を図4.8.3に示した。マトリックスの除去は特に行わず、pH1-1.3に調整した試料溶液を直接TOPO/ジエチルベンゼン/Kieselgur カラムに通す。彼等は、この他に、HDEHP抽出、TOPO抽出、HDEHP/Kieselgur 抽出クロマトグラフィーを検討している。しかし、HDEHP抽出、TOPO

抽出ともAmの抽出率が悪かったため、採用されていない。HDEHP/Kieselgur 抽出クロマトグラフィーはAmの分離に関しては良好であったが、HDEHPが Kieselgurより脱離し、後の処理を妨害するため、最終的に、TOPO/Kieselgur抽出クロマトグラフィーが採られている。なお、TOPO/Kieselgur にAmを負荷する際に、試料溶液のpHを上げなければならない。それにより珪酸が沈殿するが、Amのロスは0.08-3.9%であると報告している。

TOPO/Kieselgurカラムより溶離されたAmフラクションを陰イオン交換樹脂と陽イオン交換樹脂の2つのカラムを塩酸系で通し、Fe、Po、U、Th、Puを除去する。その後、硝酸メタノール系での陰イオン交換により稀土類と分離し、シュウ酸アンモニウム溶液から電着を行なう。シュウ酸アンモニウム溶液からの電着は通常行なわれる硫酸アンモニウム溶液からの電着に比較して収率のばらつきが少なく、収率も高かった。最終的な化学収率は84%であった。

#### 4.8.2.3 Livensの方法<sup>9)</sup>

Levinsらは多量のMn (300-500mg)を含む試料を分析したところ、シュウ酸Caの共沈操作がうまくいかなかったため、陽イオン交換樹脂を用いてMnを除去している。シュウ酸Caによる共沈操作は科技庁法でも採用されているが、同じ問題を引き起こすと思われる。分析操作の概要は図4.8.4に示したが、Feをジイソプロピルエーテルによる溶媒抽出で除去した後、塩酸系の陰イオン交換樹脂でPuを分離する。つぎに、Mnを陽イオン交換樹脂を用いて除去し、リン酸Biまたは水酸化Fe共沈の後に、硝酸メタノール溶液として陰イオン交換樹脂による稀土類との分離を行ない、最後に硝酸系からの陰イオン交換によってThを除去して電着する。これにより、高濃度のMnを含む試料からも良好な収率が確保できた。

#### 4.8.3 低エネルギーγ線スペクトロメトリー

Amは 59KeVのγ線を37%の割合で放出するため、これを用いて定量が可能である。低エネルギー用のγ線スペクトロメーターは円盤上のGeまたはSi半導体検出器であり、試料から検出領域に至るまでの低エネルギー光子の吸収・散乱を極力押さえるため、窓はBeの薄い板であり、入射面の不感層も薄い。検出領域も薄いため、高エネルギーγ線の影響を受けにくく、バックグラウンドの面でも有利である。増幅器初段のPMTは熱雑音を押さえるために冷却される。分解能は検出器の大きさにつれて悪くなるが、Amの分析だ

けに限れば、分解能は十分であり、感度を上げるためにできるだけ大きな検出器が望ましい。

Yamamotoは直径32mm、厚さ10mm、分解能が59KeVで0.45KeVの低エネルギー用Ge半導体検出器を用いて土壤中のAmを定量している<sup>1)</sup>。図4.8.5にスペクトルを示す。50gの試料をプレスし、4000分測定した場合の検出下限は10mBqであり、 $\alpha$ 線スペクトロメトリと比較して100倍程度の差がある。この差の主因は低エネルギー用Ge半導体検出器のバックグラウンドが $\alpha$ 線用Si半導体検出器に較べて100倍程度高いためである。このため、バックグラウンドの低減が望まれ、手法としては、ガードカウンターの使用などのアクティブな遮蔽が考えられる。

GuilmetteはPhoswitch検出器を制作し、10cmの鉛などで遮蔽した測定系を組み立てた<sup>2)</sup>。灰試料中のAmの信頼下限は20分測定により36mBqであり、これから、4000分測定での検出限界を計算すると6mBqとなる。Phoswitch検出器はNaI(Tl)とCsI(Tl)を光学的に組合わせた検出器であり、NaI(Tl)が試料用の検出器、CsI(Tl)がガードカウンターとして用いられる。光電子増倍管は双方の検出器からの光を受けるが、その後、波形弁別によってNaI(Tl)とCsI(Tl)からの信号を分け、逆同時係数を行なってバックグラウンドを減少させる。検出効率、バックグラウンドともに低エネルギー用Ge半導体検出器の10倍程度であり、感度はGe半導体検出器と同等であるが、エネルギー分解能が環境試料用としては十分ではない。

## 参考文献

- 1) Yamamoto, M. et al., J. Radiat. Res., 21, 204-212 (1980)
- 2) Guilmette, R. A., Health Physic., 51, 797-803 (1986)
- 3) Livens, F. R., Singleton, D. L., Analyst, 114, 1097-1101 (1989)
- 4) Knab, D., Anal. Chem., 51, 1095 (1979)
- 5) Sill, C. W. et al., Anal. Chem., 46, 1725 (1974)
- 6) Schulz, R. K. et al., Soil Sci., 132, 71 (1981)
- 7) Pillai, K. C., Matkar, V. M., J. Radioanal. Nucl. Chem., Art., 115, 217(1987)
- 8) Leshinen, S. et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. Art., 115, 289 (1987)
- 9) Bernabee, R. P., Health Phys., 44, 688 (1983)
- 10) Hayashi, N. et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. Art., 115, 369 (1987)
- 11) Sekine, K. et al., Talanta, 34, 567 (1987)
- 12) Afsar, M., Schuttelkopf, H., "Determination of Am-241, Cm-242 and Cm-244 in Environmental Samples", Kernforschungszentrum Karlsruhe, Karlsruhe, KFK 4346 (1988)
- 13) Buntzl, K., Kracke, W., J. Radioanal. Nucl. chem., Art., 115, 13 (1987)
- 14) Mathew, E. et al., J. Radioanal. Chem., 62, 267 (1981)
- 15) Yamato, A., J. Radioanal. Chem., 75, 265 (1982)
- 16) Hindman, F. D., Anal. Chem, 58, 1238 (1986)
- 17) Holm, E. et al. Talanta, 26, 791-794 (1979)
- 18) Ballestra, S. Fukai, R., Talanta, 23, 853 (1983)
- 19) Holm, E., Fukai, R., Talanta, 23, 853 (1976)
- 20) 科学技術庁、プルトニウムアメリシウム逐次分析法、日本分析センター、千葉(1990)
- 21) Hisamatsu, S. et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. Art., 138, 303-319 (1990)

## イオン交換法

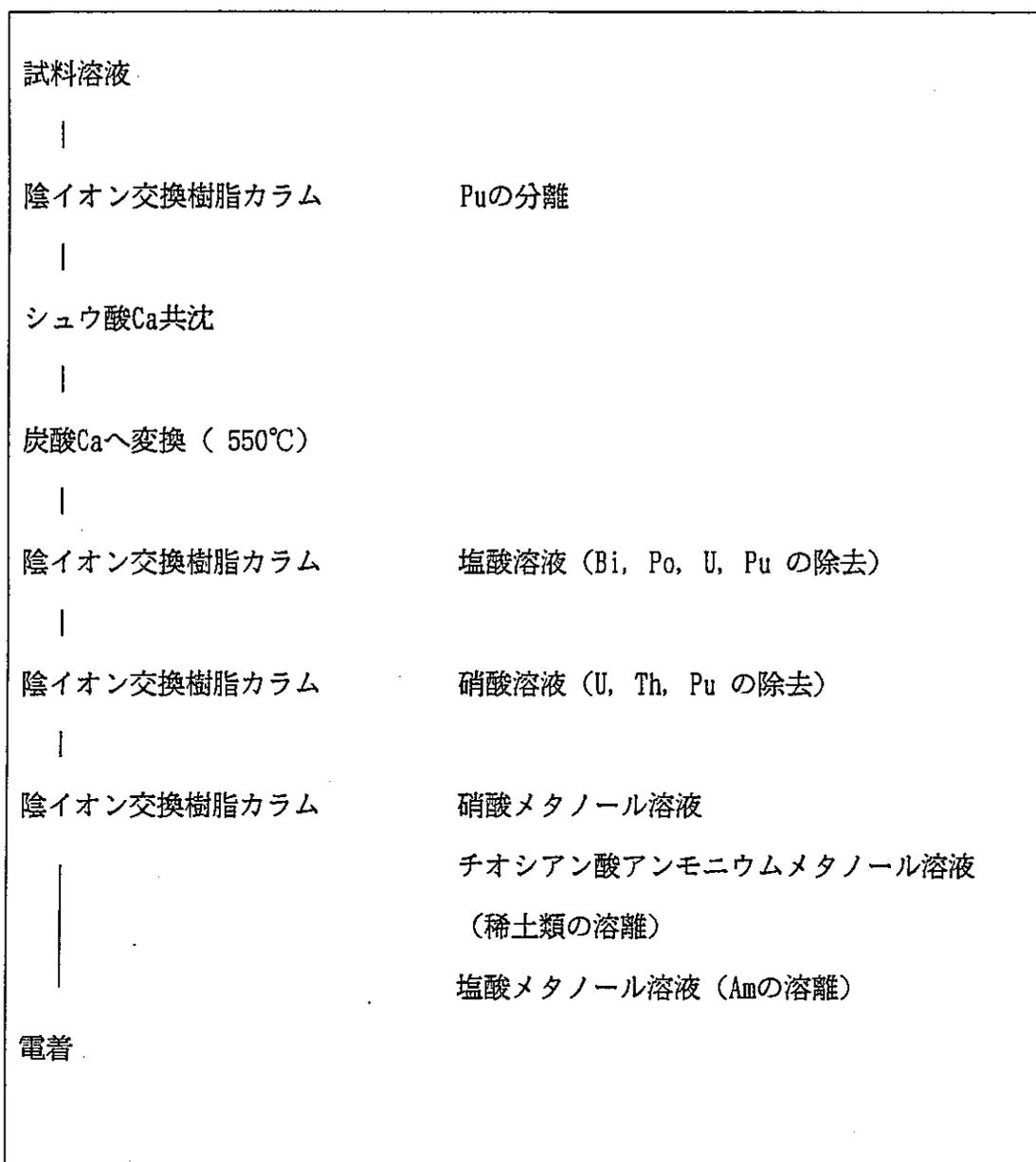


図4.8.1 科学技術庁によるAmの分析操作 (イオン交換法) の概要<sup>20)</sup>

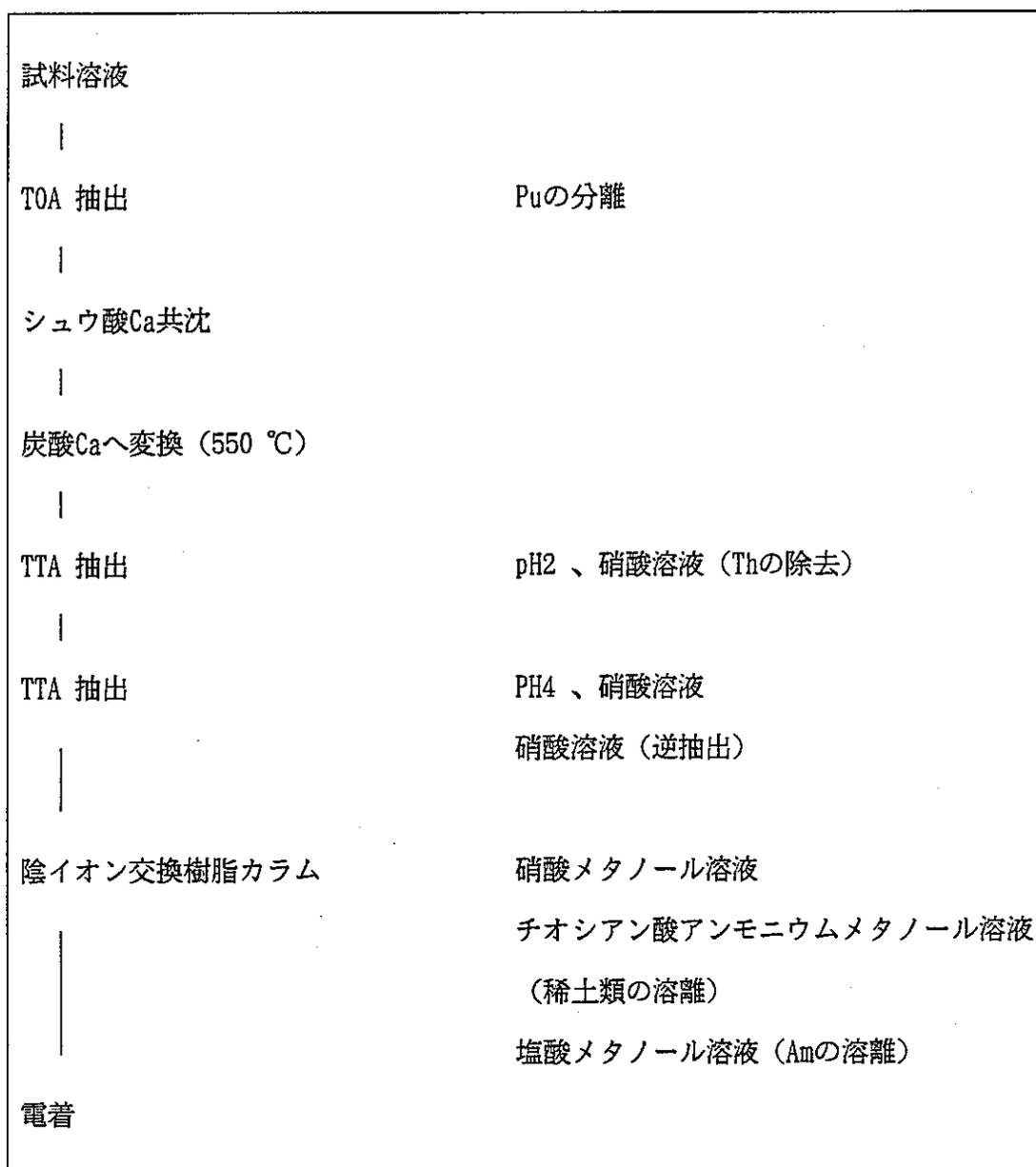


図 4. 8. 2 科学技術庁によるAmの分析操作 (溶媒抽出、イオン交換法) の概要<sup>20)</sup>

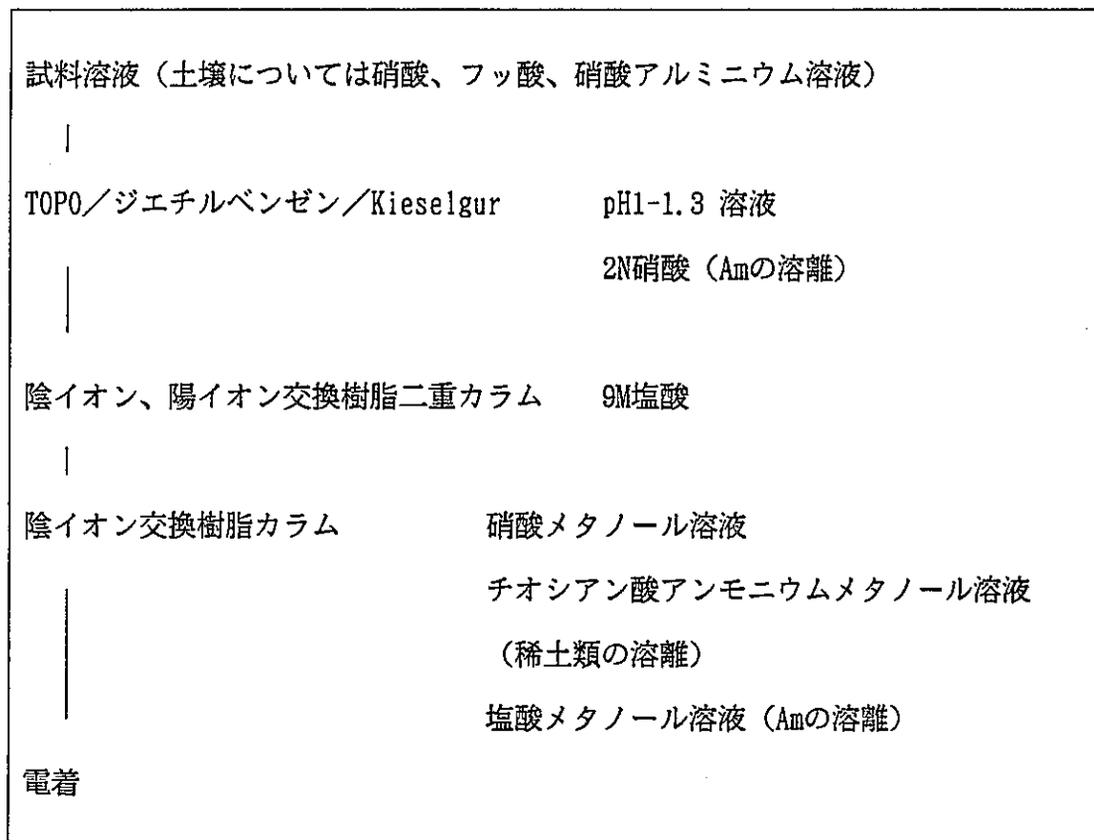


図4.8.3 AfsarによるAm分析操作の概要<sup>12)</sup>

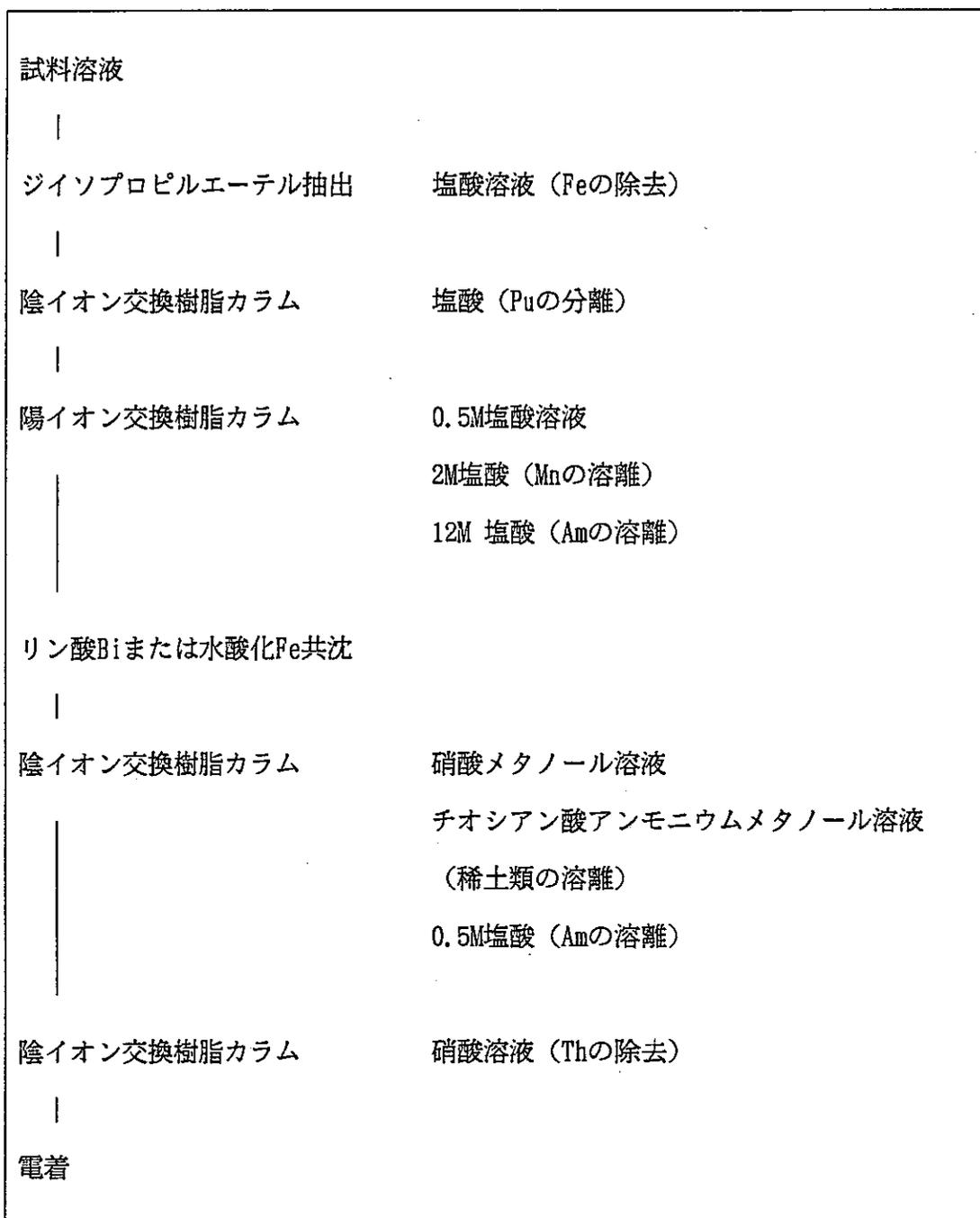
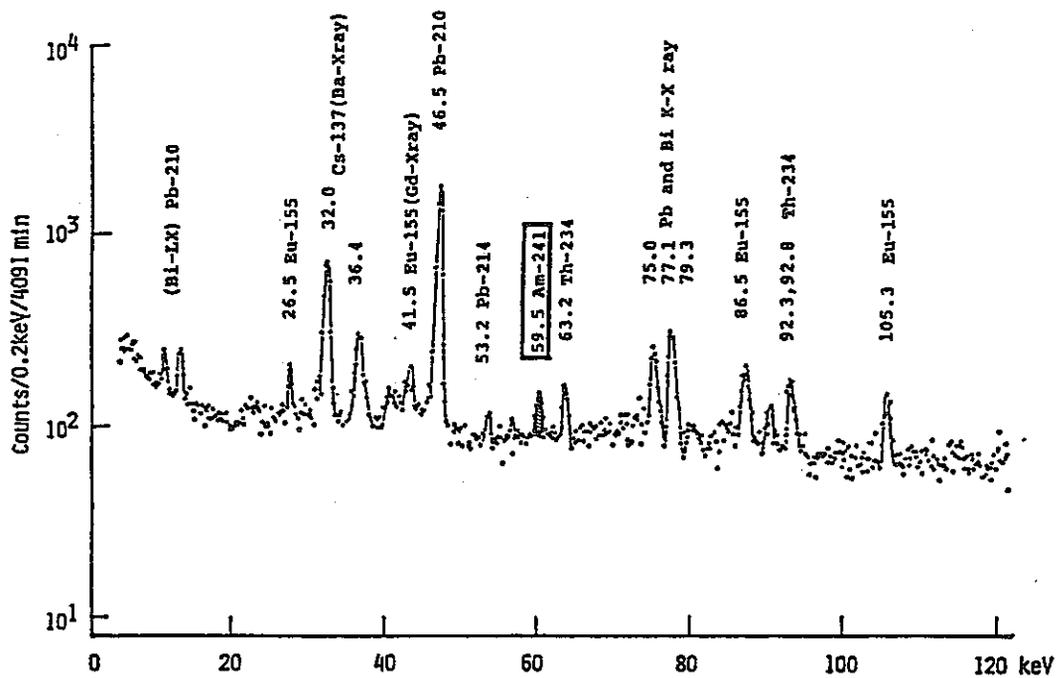


図4.8.4 LivensによるAm分析操作の概要<sup>3)</sup>



Photon spectrum of non-destructive LEPS measurements of soil.  
 Detector: Intrinsic Germanium ( $32 \text{ mm}^{\phi} \times 10 \text{ mm}^{\text{h}}$ ).  
 Sample: 53.1 g (Surface soil collected from Kohno).

図4.8.5 Ge半導体検出器による低エネルギー $\gamma$ 線スペクトルの例<sup>1)</sup>

表 4. 8. 1 環境試料に適用されたAm分離法<sup>3)</sup>

Table 1. Summary of techniques for the determination of <sup>241</sup>Am. Abbreviations: TIOA = triisooctylamine; HDEHP = bis(2-ethylhexyl)phosphoric acid; TTA = thenoyltrifluoroacetone; TOA = trioctylamine; TOPO = trioctylphosphine oxide; DDCP = dibutyl-N,N-diethylcarbamoyl phosphonate

Matrix	Pre-treatment	Am isolation	Reference
Plant material	Fe(OH) <sub>3</sub> pptn. TIOA solvent extraction of Pu and Np	Cation exchange (HCl - CH <sub>3</sub> OH)	17
Sediments	BiPO <sub>4</sub> pptn. 2	Cation exchange (HCl) Anion exchange (HNO <sub>3</sub> )	18
Sediments	Pu removal by anion exchange (HNO <sub>3</sub> ) Fe(OH) <sub>3</sub> pptn.	Ca oxalate pptn.; S <sub>2</sub> O <sub>8</sub> <sup>2-</sup> oxidation and repeated NdF <sub>3</sub> pptn.	19
Soil	BaSO <sub>4</sub> pptn.	2× liquid ion exchange (Aliquat 336) Extraction chromatography (HDEHP)	16
Soil, vegetation, animal tissues (all small; 5 g)	None	Cation exchange (HCl) Anion exchange (alcohol - HNO <sub>3</sub> )	12
Soil, sediment, animal tissue (all 2-5 g)	CeF <sub>3</sub> pptn.	HDEHP solvent extraction from HClO <sub>4</sub>	20
Sediment, biological material	Anion exchange (HNO <sub>3</sub> ); Ca oxalate and Fe(OH) <sub>3</sub> pptns.	Anion exchange (HCl) Anion exchange (HNO <sub>3</sub> ) Anion exchange (HNO <sub>3</sub> - CH <sub>3</sub> OH)	21
Soils	Fe(OH) <sub>3</sub> and Ca oxalate pptns. TOA solvent extraction of Pu (HNO <sub>3</sub> )	TTA solvent extraction, pH 4 Anion exchange (HNO <sub>3</sub> - CH <sub>3</sub> OH)	22
Soils	None	Extraction chromatography (TOPO - Kieselguhr) Dual-layer anion/cation exchange (HCl) Anion exchange (HNO <sub>3</sub> - CH <sub>3</sub> OH)	23
Soils, animal tissue, vegetation	Ca oxalate pptn. (soil and vegetation) OH <sup>-</sup> /PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> pptn. (tissue) Cation exchange (citrate) LaF <sub>3</sub> pptn.. Pu removal by TTA extraction	La oxalate pptn. Anion exchange (SCN <sup>-</sup> )	24
Sediment (5-g samples)	BiPO <sub>4</sub> pptn. Cation exchange (HCl)	Anion exchange (HNO <sub>3</sub> )	25
Soil, vegetation, filters	Ca oxalate pptn. (soils) Pu removal by anion exchange	Fe(OH) <sub>3</sub> pptn. Anion exchange (HCl) Anion exchange (HNO <sub>3</sub> - CH <sub>3</sub> OH)	26
Soil	BaSO <sub>4</sub> pptn. Sequential pptns. Ce(IO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub> , 2× HdF <sub>3</sub>	NdF <sub>3</sub> pptn.	27
Sediments, biological materials	Fe(OH) <sub>3</sub> pptn. Pu removal by anion exchange (HNO <sub>3</sub> or HCl)	HDEHP solvent extraction (HNO <sub>3</sub> , pH 2-3) Anion/cation exchange (HCl) Anion exchange (HNO <sub>3</sub> - CH <sub>3</sub> OH)	28
Sediments, biological materials	Fe(OH) <sub>3</sub> pptn. Pu removal by anion exchange (HNO <sub>3</sub> or HCl)	Ca oxalate pptn. Anion/cation exchange (HCl) DDCP extraction (HNO <sub>3</sub> ) Anion exchange (HNO <sub>3</sub> - CH <sub>3</sub> OH)	29
Sediments, biological materials	Fe(OH) <sub>3</sub> pptn. Pu removal by anion exchange (HCl)	Cation exchange (HCl) Anion exchange (HNO <sub>3</sub> - CH <sub>3</sub> OH)	30

文献

- |                     |                     |                       |
|---------------------|---------------------|-----------------------|
| 12:4) Knab 1979     | 16:5) Sill 1974     | 17:6) Schulz 1981     |
| 18:7) Pillai 1987   | 19:8) Leshinen 1987 | 20:9) Bernabee 1983   |
| 21:10) Hayashi 1987 | 22:11) Sekine 1987  | 23:12) Afsar 1988     |
| 24:13) Bunzl 1987   | 25:14) Mathew 1981  | 26:15) Yamato 1982    |
| 27:16) Hindman 1986 | 28:17) Holm 1979    | 29:18) Ballestra 1983 |
| 30:19) Holm 1976    |                     |                       |

表 4.8.2 環境試料中Amのクロスチェック<sup>20)</sup>

1. 方法

改訂案に従って同一試料の分析を行った。

試料	; 土壌、灰、海水	供試量
土壌	—— 福井県奥越高原で採取	乾土 50 g
灰	—— すり身に土壌抽出液30mlを添加後灰化した	生 1 kg相当
海水	—— 海水に土壌抽出液15mlを添加した	5 ℓ

2. 分析機関

- No 1 茨城県公害技術センター  
 2 動力炉・核燃料開発事業団  
 5 日本分析センター

表 4.8.3 環境試料中Amのクロスチェック結果<sup>20)</sup>

試料名	分析機関 No	分析方法	プルトニウム			アメリシウム		単位
			<sup>238</sup> Pu	<sup>238+240</sup> Pu	化学収率	<sup>241</sup> Am	化学収率	
土壌 (20 ~ 50g乾 土)	1	イオン交換法	0.241 ± 0.074	6.93 ± 0.85	0.50	1.59 ± 0.14	0.40	Bq/kg 乾土
	2	イオン交換法	0.276 ± 0.019	7.01 ± 0.009	0.679	2.09 ± 0.03	0.781	
	5	イオン交換法	0.192 ± 0.034	6.06 ± 0.38	0.70	2.06 ± 0.11	1.00	
		イオン交換法	0.233 ± 0.032	5.88 ± 0.32	0.88	2.13 ± 0.12	0.82	
		溶媒抽出法	0.278 ± 0.040	7.46 ± 0.44	0.72	2.28 ± 0.12	1.00	
		溶媒抽出法	0.276 ± 0.035	6.34 ± 0.34	0.76	2.02 ± 0.10	1.00	
		平均	0.249 ± 0.034	6.61 ± 0.61	0.71	2.02 ± 0.23	0.83	
灰試料 (生 1kg相 当)	1	イオン交換法	2.52 ± 0.85	84 ± 12	0.60	20.3 ± 2.2	0.42	mBq/kg生
	2	イオン交換法	2.09 ± 0.32	60.9 ± 1.71	0.900	19.4 ± 1.06	0.815	
	5	イオン交換法	2.12 ± 0.42	59.8 ± 3.5	0.79	17.3 ± 1.1	1.00	
		イオン交換法	2.21 ± 0.41	59.6 ± 3.4	0.80	19.3 ± 1.5	0.84	
		溶媒抽出法	4.17 ± 0.95	61.8 ± 5.6	0.34	—	—	
		溶媒抽出法	1.52 ± 0.47	59.0 ± 4.6	0.45	—	—	
		平均	2.44 ± 0.90	64.2 ± 9.8	0.65	19.0 ± 1.3	0.77	
海水 (5ℓ)	1	イオン交換法	0.236 ± 0.069	5.64 ± 0.72	0.85	2.19 ± 0.30	0.35	mBq/ℓ
	2	イオン交換法	0.288 ± 0.025	5.98 ± 0.25	0.831	2.10 ± 0.12	0.468	
	5	イオン交換法	0.245 ± 0.056	6.08 ± 0.37	0.93	1.67 ± 0.15	0.93	
		平均	0.256 ± 0.027	5.90 ± 0.23	0.87	1.99 ± 0.27	0.58	

## 5. まとめ

初年度の報告書が、案ずるより産むが易しで、委員の皆様方の献身的協力により、中身の濃い予想より随分分厚いものに仕上がった。ご多忙な中原稿をお寄せ頂いたことに、この場を借りて感謝申し上げる次第である。

長半減期核種の分析定量法は、環境物質からのこれらの核種の検出定量がつきまとしており、環境保全の意味では重要であるが、核燃料サイクルの確立からは必ずしも本筋ではないのが本音であろう。しかしながら、近年の原子力や核エネルギーに対する一般的公衆のアレルギーは、マスコミの歪んだ報道にも一部責任があるものの、裏方としての環境放射能研究を必ずしも日の当たる分野にしなかったことも原因しているように思われる。一方、最新の分析法は、ICP-MS法に見られるように、極微量までも検出可能となり、その分析値の意義づけが困難となり、分析値のみが一人歩きする危険性も出てきた。更に分析機器も通常の研究室では手が出せない位に高価になってきており、放射性核種分析でも例外でなくなりつつある。今一度、分析定量の目的をしっかりと考える時期が来たように思われる。二年目はこれらのことも意識しながら調査を続けたい。

# JOISによる検索文献リスト

CN 81A0276321, K81081603, N81081416, P81160535  
TI 改良型Wickbold装置での燃焼による活性炭フィルタ中<sup>129</sup>Iの定量  
ET Determination of <sup>129</sup>I in active carbon filters by combustion in a modified Wickbold apparatus.  
AU BUNZL K, KRACKE W, WINKLER R (Gesellschaft fuer Strahlen- und Umweltforschung mbH, FRG)  
JN B0021C (RRALA) (0079-9483) Radiochem Radioanal Lett  
VN VOL. 46, NO. 6 PAGE. 323-330 1981  
CI (A) (a1) (EN) (CHE) (写図1, 表1, 参9)  
AB 電気加熱石英容器中で活性炭フィルタろ過材を, 酸水素炎で燃焼することにより<sup>129</sup>Iが迅速簡便に定量できた。活性炭を燃焼してアルカリ溶液に移し, 約30KeVのK<sub>α</sub>, K<sub>β</sub>X線を測定した。<sup>131</sup>Iの混入は80KeVのγ線で弁別できた。<sup>129</sup>Iの検出限界は, 1000分間計測で81mBqであった。150gの活性炭で3000m<sup>3</sup>の空気中のよう素を集めることができた。この方法の感度は, <sup>129</sup>Iの空気中の最大許容濃度60.3mBq/m<sup>3</sup>よりはるかに低いのでモニタリングの目的に適する  
CC MB02030K, AD08020J (614.73:614.876, 539.1.073/.074)  
KW 活性炭; ろ過装置; よう素同位体; 定量分析; 放射能汚染; 大気汚染; 放射能測定; 放射線監視; 感度  
FT [よう素129]

---

CN 81A0425674, C81360825, E81241098, N81120215  
TI LSI材料中のウラン及びトリウムの定量及びアルファ粒子の測定  
ET Determination of uranium and thorium and measurement of alpha-particles in LSI materials.  
AU KUDO K, SHIGEMATSU T, YONEZAWA H, KOBAYASHI K (Ibaraki Electrical Communication Lab.)  
JN B0949A (JRACB) (0134-0719) J Radioanal Chem  
VN VOL. 63, NO. 2 PAGE. 345-351 1981  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写図2, 表4, 参2)  
AB 標記の目的に機器中性子放射化法及び表面障壁型Si半導体検出器のα線スペクトロメトリーを適用。シリコン基体, モリブデン及びアルミニウム金属, エポキシ樹脂などの標記材料を放射化したのち, 生成する<sup>239</sup>Np及び<sup>233</sup>PaをGe(Li)検出器で測定。最も含量の多いのはジルコニア(288ppmU及び212ppmTh)。セラミックス及びシリコーン樹脂も高い含量(~1ppm)を示し, α-放射能も同様。他の材料中の両元素はいずれも20ppb以下。α粒子に対する本法の検出限界は0.03カウント/cm<sup>2</sup>/hr。セラミックス及びジルコニアのウラン及びトリウム含量から計算したα線束は測定結果とよく一致  
CC CC06010J, NC03161C (543.52/.53, 621.3.049.77)  
KW 放射化分析; LSI; ネプツニウム同位体; プロトアクチニウム同位体; ウラン同位体; トリウム同位体; ジルコニウム; セラミック; シリコーン樹脂; LiドリフトGe検出器; モリブデン; アルミニウム; エポキシ樹脂; アルファ粒子; アルファ線スペクトル; 定量分析

---

CN 82A0175838, C82150684, K82061526, N82050393, P82101167  
TI 水中の低レベルトリチウムの電解濃縮法の現状と動向  
ET Present status and trends in electrolytic enrichment of low-level tritium in water.  
AU TAYLOR C B (Inst. Nuclear Sciences, Dep. Scientific and Industrial Research, New Zealand)  
JN K820106 (92-0-030081-2) Methods Low-Level Count Spectrom  
VN PAGE. 303-323 1981  
CI (C) (a1) (EN) (AUT) (写図7, 表1, 参28)  
AB 低レベルトリチウム測定における電解濃縮法を, 検出感度に対する濃縮セルの役目, NaOH電解液中で効率よくトリチウムを分離する表面とカソードの機構, 電気化学的安定性と腐食の防止, 濃縮度の定量的測定法, 大きく体積を減らすセルの開発の諸問題について調べた。最後に濃縮方法に関する指針を提案した  
CC CB10030R, AD08010Y, MB02030K (621.039.3, 539.121.8.08, 614.73:614.876)  
KW 三重水素; 水溶液; 低レベル計数; 電解; 同位体濃縮; レビュー; 検出; 感度; 電解槽; 電極; 構造; 電気化学反応; 定量分析; 放射線検出器; 環境放射性核種移動

---

CN 82A0316479, C82261095, G82183366, K82090271, N82090244  
TI 環境試料中のウラン定量のための新しい放射化学的方法  
ET A new radiochemical procedure for uranium assay in environmental samples.  
AU GAVINI M B, ROCCO F G, KIM S M (Radiation Management Corp., PA)  
JN B0949A (JRACB) (0134-0719) J Radioanal Chem  
VN VOL. 67, NO. 2 PAGE. 437-444 1981  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写図1, 表6, 参12)  
AB 陰イオン交換樹脂カラム(マクロポーラス型, AG-MP-1)を用いるウラン( $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ 及び $^{238}\text{U}$ )の精製分離法を確立。1.2M塩酸溶液から $\text{U}^{6+}$ をカラムに吸着, アスコルビン酸及びヒドラジンを含む4.5M塩酸で $\text{Fe}^{3+}$ を溶離したのち, 6M塩酸でカラムを洗浄。0.1M塩酸を用いて溶離した $\text{U}^{6+}$ を蒸発乾固あるいは電着したのち, Si表面障壁型検出器の $\alpha$ 線スペクトロメトリーを適用。本法による除染率は次のとおり; $^{241}\text{Am}$  ( $7.3 \times 10^5$ ),  $^{228}\text{Th}$  ( $3.4 \times 10^4$ ),  $^{210}\text{Po}$  ( $2.4 \times 10^6$ ),  $^{239}\text{Pu}$  ( $2.7 \times 10^3$ ),  $^{237}\text{Np}$  ( $1.4 \times 10^4$ ),  $^{226}\text{Ra}$  ( $3.9 \times 10^5$ )。草, 石炭, ピッチブレンド鉱石などに添加したpCi量Uの平均回収率は32.4~40.9%。 $^{232}\text{U}$ を用いて回収率を補正  
CC CC01020L, CC06032N, CC06080I, CC06090T, MB02030K (543.21.05:541.183.12, 543.52/.53:547-121, 543.52/.53:614.777, 543.52/.53:549, 614.73:614.876)  
KW 環境汚染; 試料; ウラン; 定量分析; 放射化学分析; 陰イオン交換樹脂; 分離; 吸着; カチオン; 表面障壁型検出器; アルファ線スペクトル; 放射能除染; アメリカン同位体; トリウム同位体; ポロニウム同位体; プルトニウム239; ネプツニウム同位体; ラジウム同位体; 放射化学的分離

---

CN 83A0056128, G83031862, N83020278  
TI タンデム静電加速器の超高感度質量分析および核年代測定への応用  
ET The application of electrostatic tandems to ultrasensitive mass spectrometry and nuclear dating.  
AU PURSER K H, RUSSO C J, LIEBERT R B (General Ionex Corp., MA); GOVE H E, ELMORE D, FERRARO R (Univ. Rochester, NY); LITHERLAND A E, BEUKENS R P, CHANG K H (Univ. Toronto, Canada)  
JN H0588B ACS Symp Ser (Am Chem Soc)  
VN NO. 176 PAGE. 45-74 1982  
CI (C) (b2) (EN) (USA) (写真15, 表2, 参39)  
AB 標記加速器をその構成機器として含むような超高感度粒子同定法についての総説。希少な核種についての直接検出ならびに同位体比の精密測定によって、核年代測定への応用が可能。 $^{14}\text{C}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{129}\text{I}$ について $1:10^{14}$ の濃度付近での検出に伴う分別の問題と実験法を述べた。 $^{14}\text{C}$ についてはmg程度の試料について1%の精度を得、 $200\mu\text{g}$ の試料について年代測定が可能。マイクロプローブ質量分析法および同位体比測定による年代測定法への適用する場合の本法の応用について議論した  
CC MC03011P (621.039.86)  
KW タンデム型Van de Graaff; 質量分析; 放射性炭素法年代測定; 定量分析; 同位体存在比; 炭素14; ベリリウム同位体; アルミニウム同位体; 塩素同位体; よう素同位体; 自然放射能

---

CN 83A0056129, G83031863, N83020279  
TI タンデム加速器による天然のベリリウム-10と炭素-14の直接測定法  
ET Techniques for the direct measurement of natural beryllium-10 and carbon-14 with a tandem accelerator.  
AU SOUTHON J R, NELSON D E, KORTELING R (Simon Fraser Univ., Canada); NOWIKO W I, HAMMAREN E, MCKAY J, BURKE D (McMaster Univ., Canada)  
JN H0588B ACS Symp Ser (Am Chem Soc)  
VN NO. 176 PAGE. 75-87 1982  
CI (C) (b2) (EN) (USA) (写真5, 参6)  
AB 本報告は標記計画についてのレビューである。現在の実験装置は、Csスパッタイオン源から負イオンを25-30kVで引き出し、 $20^\circ$ の屈折磁場を経由してタンデム・ヴァンデグラフ装置に導いている。高圧端で気体/はくストリッパで正イオンとし、さらに加速を受け、 $90^\circ$ 分析磁場で運動量/電荷比により分離、ファラデイカップで検出、希少核種は静電偏向をさせてエネルギー/電荷比による分離をおこなう。現状では $^{14}\text{C}$ の実用測定にはビーム中での干渉が大きすぎる。Beについては $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}=10^{-9}\sim 10^{-11}$ の測定が可能。屈折ビームを利用した新型のCsスパッタイオン源を開発中である  
CC MC03011P (621.039.86)  
KW タンデム型Van de Graaff; ベリリウム同位体; 炭素14; 質量分析; 放射性炭素法年代測定; 同位体存在比; 定量分析; 自然放射能

---

CN 83A0075457, C83061303, N83020251  
TI 中性子放射化分析による<sup>129</sup>Iの分離及び定量  
ET Iodine-129 separation and determination by neutron activation analysis.  
AU BATE L C, STOKELY J R (Oak Ridge National Lab., Tennessee)  
JN B0949A (JRACB) (0134-0719) J Radioanal Chem  
VN VOL. 72, NO. 1/2 PAGE. 557-570 1982  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写図2, 表3, 参15)  
AB 核燃料再処理及び低レベル廃水の核分裂生成物中に含まれる標記核種の分析法について検討。よう素の前分離法として酸化還元処理(次亜塩素酸塩による酸化及びヒドロキシルアミンによる還元)及び四塩化炭素抽出法を採用。前処理した<sup>129</sup>I(よう化物イオン)を陰イオン交換樹脂カラム(NO<sub>3</sub>型)に吸着したのち、気送管照射法(5×10<sup>14</sup>n/cm<sup>2</sup>·s, 100秒)で放射化。(n, γ)反応で生成する<sup>130</sup>I(T<sub>1/2</sub>=12.4h)を測定する本法の分析感度は約0.03ng。<sup>129</sup>Iの定量的捕集は硝酸(<0.1N)のほかに水酸化ナトリウム溶液からも可能。硝酸ナトリウム溶液による樹脂カラムの洗浄によって<sup>82</sup>Brの妨害を除去。2年間にわたる日常分析の実績を紹介  
CC CC06100H, MD08060N (543.52/.53 OTHERS, 621.039.54 OTHERS)  
KW 中性子照射; よう素同位体; 放射化分析; 定量分析; 核分裂生成物; 前処理; 溶媒抽出; 気送管コンベヤ; 照射装置; 感度; 妨害成分; 放射化学的分離  
FT [よう素129]

---

CN 83A0260711, K83071664, N83071570  
TI 原子力施設からの排気あるいは環境大気中の水分に含まれるトリチウムの簡単な濃度定量法  
OT Einfaches Verfahren zur Bestimmung der Tritiumkonzentration in der Luftfeuchte der Fortluft kerntechnischer Anlagen oder in der Umgebungsluft.  
AU WEBER H W, SCHUETTELKOPF H (Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, FRG)  
JN P0902A (0303-4003) Kernforschungszentrum Karlsruhe (Germany)  
VN NO. KFK-3480 PAGE. 58p 1983  
CI (T) (a1) (DE) (DEU) (写図62, 表8, 参24)  
AB 原子力発電所運転の時に放射性トリチウムが発生し、<sup>3</sup>H<sub>2</sub>Oの形で大気中へ、または放流水として環境へ放出される。放出トリチウムの測定とその収支を知ることは住民被ばくの評価のために必要である。放出<sup>3</sup>H<sub>2</sub>Oの定量のため測定空気の水分を棒状のモレキュラーシーブ1/16"メッシュのものに吸着させる。乾燥剤をトリチウムを含めぬ水と接触させ、水のトリチウムの放射能は<sup>3</sup>H/Hの交換をさせて求める。棒状のモレキュラーシーブは、その乾燥容量が大きく、温度や空気湿度その他により影響を受けぬ。検知限度は19Bq<sup>3</sup>H<sub>2</sub>O/m<sup>3</sup>空気である。カールスルーエ原子力研究所ではこの方法でトリチウムのモニタを行っている  
CC MB02030K (614.73:614.876)  
KW 水; 三重水素; 三重水素化合物; 原子力発電; 放射能放出; 放射能汚染; 放射線監視; 排ガス; 放射性廃棄物; 環境; 定量分析; 放射能測定; 同位体交換; 空気; 発電所

---

CN 83A0267007, K83071682, N83071584  
TI 環境物質中よう素-129の定量のための高感度法  
ET A sensitive method for the  
determination of iodine-129 in  
environmental materials.  
AU WILKINS B T, STEWART S P (National R  
adiological Protection Board, U. K.  
)  
JN C0201A (IJARA) (0020-708X) Int J Appl Radiat Is  
ot  
VN VOL. 33, NO. 12 PAGE. 1385-1388 1982  
CI (A) (a1) (EN) (USA) (写真1, 参6)  
AB 熱中性子による放射化分析法,  $^{129}\text{I}$  ( $n, \gamma$ )  $^{130}\text{I}$  を用い $^{129}\text{I}$  の環境試  
料中の高感度定量法を開発。試料中に $^{127}\text{I}$  を混入し, 生じる $^{128}\text{I}$  で回収率  
を測定, 6試料の分析を2.5時間で終了した。検出感度は2時間測定で6  
.5 Bq。本法を英国牛乳試料の分析に応用した。 $^{129}\text{I}$  濃度は $<0.2 \sim$   
 $55.5 \text{ mBq l}^{-1}$ , 人体の吸収線量は $4 \mu\text{Sv}$  で年間許容線量の0.1%  
であった  
CC MB02030K (614.73:614.876)  
KW 環境; 放射能汚染; 放射能測定; 定量分析; 放射化分析; 中性子照射; よう  
素同位体; 感度; 牛乳; 環境汚染  
FT [よう素129]

---

CN 83A0462817, K83121201, N83122911  
TI 誘導結合プラズマ法によるプルトニウム定量の試み  
OT Versuche zur Pu-Bestimmung mit  
Hilfe der ICP-Methode.  
AU MAINKA E, MUELLER H G, GEYER F (Kernf  
orschungszentrum Karlsruhe, FRG)  
JN P0902A (0303-4003) Kernforschungszentrum Ka  
rlsruhe (Germany)  
VN NO. KFK-3578 PAGE. 175-187 1983  
CI (T) (a1) (DE) (DEU) (写真7, 表4, 参7)  
AB 標記プラズマを利用する原子発光分析の適用性について検討。アルゴンを用  
いる誘導結合高周波プラズマ発生装置の概要(噴霧部, グローボックス技術  
との組み合わせ, 光学系)について論述。Puのスペクトル線(13種)に対  
する検出感度は0.019(297.23 nm)から $0.63 \mu\text{g/ml}$  ( $346.5 \text{ nm}$ )。格子型分光器(3.5 m)の使用によって共存U( $<1$   
 $00 \mu\text{g/ml}$ )の影響を受けることなく直接定量が可能。廃水(U/  
Pu=50~100)中のU及びPuの分析へ適用した結果を例示した。特  
別仕様の格子を利用して同位体の組成分析も可能で, U( $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}$   
 $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ )の分析線(424.4 nm)及びPu( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}$   
Pu,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ )の分析線(402.1 nm)における半値全幅を  
表示  
CC MB05000Y, MD08060N (621.039.7, 621.039.54 OTHERS)  
KW 原子発光分析; プルトニウム; 定量分析; プラズマ; 同位体存在比; プルト  
ニウム同位体; 廃水; 放射性廃棄物; ウラン; 誘導結合プラズマ

---

CN 84A0106093, C84080884, G84063476, N84030257  
TI 機器中性子放射化分析によるuraniferous岩石の多元素分析  
ウラン及びウランの核分裂による妨害に対する配慮  
ET Multielement analysis of  
uraniferous rocks by INAA :  
Special reference to interferences  
due to uranium and fission of  
uranium.  
AU I L A P, J A G A M P, M U E C K E G K (Dalhousie  
Univ., Canada)  
JN B0949A (JRACB) (0134-0719) J Radioanal Chem  
VN VOL. 79, NO. 2 PAGE. 215-232 1983  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写図6, 表4, 参24)  
AB Uを含有する標記試料の非破壊分析ではLa, Ce, Nd及びSm含量が高い  
値を示し,  $^{235}\text{U}$ の核分裂生成物による妨害の補正操作が必要である。共  
存U ( $1\mu\text{g}$ )による妨害はCeの $0.28\mu\text{g}$ 及びNdの $0.23\mu\text{g}$ に  
相当する(5時間照射の場合)。Uの定量に最適な光電ピークは $^{239}\text{Np}$ の  
 $278\text{keV}$   $\gamma$ 線で, Uの核分裂及び(n,  $\gamma$ )反応- $\beta$ -壊変にともなう  
スペクトル妨害について考察し, Laの定量時における $^{140}\text{Ba}$ の影響,  $^{141}$   
Ce ( $145.4\text{keV}$ ),  $^{147}\text{Nd}$  ( $91\text{keV}$ )及び $^{153}\text{Sm}$  ( $103\text{k}$   
eV)の測定に対する具体的な妨害の補正法を提示した。8種の標準岩石(  
U含量:  $40\sim 10200\text{ppm}$ )へ適用し, La, Ce, Nd, Sm, E  
u, Tb, Yb, Lu, Ba, Co, Cr, Cs, Hf, Sc, Ta, Th  
及びUを定量  
CC CC06090T (543.52/.53:549)  
KW ウラン鉱; 放射化分析; 核分裂; ウラン; 妨害成分; 中性子照射; 補正; 定  
量分析; 標準岩石; セリウム; ネオジウム同位体; ネプツニウム同位体; バリ  
ウム同位体; セリウム同位体; サマリウム同位体

---

CN 84A0126601, N84041058  
TI 鉛減速スペクトロメータを用いるプルトニウム定量の正確さ  
ET Accuracy for plutonium assay using  
a lead slowing down spectrometer.  
AU A L A M B, W I L K I N S O N J W, V A N T E R P O O L E  
C, H A R R I S D R, B L O C K R C (RPI)  
JN E0387B (TANSA) (0003-018X) Trans Am Nucl Soc  
VN VOL. 45 PAGE. 136-137 1983  
CI (A) (a2) (EN) (USA) (写図1, 表1, 参5)  
AB 使用済燃料の定量では, 減速した中性子で核分裂を起し, その速中性子を測  
定するアクチブNDA法がある。このLSDTS法により $^{239}\text{Pu}$ と $^{241}\text{Pu}$   
混合物中のそれぞれを定量する方法を検討。 $^{239}\text{Pu}$ と $^{241}\text{Pu}$ のエネルギー  
依存核分裂断面積をRPI鉛スペクトロメータで拡大した。9個のエネルギ  
ー領域につき $^{239}\text{Pu}$ と $^{241}\text{Pu}$ のn計数率化をとり, 自己しゃへい効果等を  
考察  
CC MD08060N (621.039.54 OTHERS)  
KW プルトニウム; 定量分析; 使用済燃料要素; 放射化分析; 核分裂; 断面積;  
スペクトロメータ; 放射線しゃへい; プルトニウム239; 測定精度

---

CN 84A0149155, C84111111, K84041648, N84052114  
TI 非揮発性液体シンチレータ収着剤によるトリチウム化水蒸気の分析  
ET Analysis of tritiated water vapor  
by non-volatile liquid scintillant  
sorberent.  
AU KATO T (Mie Univ.)  
JN C0201A (IJARA) (0020-708X) Int J Appl Radiat Is  
ot  
VN VOL. 34, NO. 12 PAGE. 1593-1595 1983  
CI (A) (a1) (EN) (USA) (写図1, 表1, 参11)  
AB シリコン油を収着剤とする大気中の標記成分 (I) の簡便な定量法につ  
いて検討した。水蒸気の捕集はシリコン油表面への吸着及びバルク相への吸  
収の二段階過程で進行し、収着した I の  $\beta$  放射能から  $10^{-7} \mu\text{Ci/ml}$  の  
I を直接定量できる。大気中の I の蒸気分圧は液体シンチレータに捕集され  
た I の収着量に比例する。吸着等温式を Langmuir 吸着等温式と比較  
した結果は固体収着剤による吸着機構を支持した。大気中に含まれる気体状  
の放射性核種を同時に捕そくできる点で汚染の解明に有用である。  $50^\circ\text{C}$   
に加熱 (数時間) することによって I を完全に脱着できる。湿度の変動は I  
の収着にほとんど影響を及ぼさない  
CC MB02030K, CC06060M (614.73:614.876, 543.52/.53:614.71/.73)  
KW 液体シンチレータ; 収着剤; ガス吸収; 定量分析; 液体シンチレーション検  
出器; シリコン油; 水蒸気; 捕収剤; 放射化学分析; 三重水素; 三重水素  
化合物/1; 水/1; 放射能測定; 放射線監視

---

CN 84A0288197, C84211037, K84071708, N84081861, P84141185  
TI 原子力施設周辺のような素同位体存在比決定の確立した手法 (film)  
ET An integrated method for the  
determination of iodine isotopic  
ratios near a nuclear facility.  
AU RANKIN R A, HOHORST F A, NIELSEN R A  
, FILBY E E, EMEL W A (Exxon Nuclear  
Idaho Co. Inc.)  
JN P0998A US DOE Rep  
VN NO. ENICO-1142 PAGE. 25p 1983  
CI (T) (a1) (EN) (USA) (写図8, 表4)  
AB  $^{129}\text{I}$  に注目して、核燃料再処理施設周辺大気中のよう素の同位体存在比を  
負荷電熱イオン化質量分析法により定量する方法の開発について述べた。本  
法により  $1\text{ng}$  の試料中の  $1\text{fg}$  のオーダーの  $^{129}\text{I}$  を定量することができる。  
標準試料の調整時の誤差、試料採取時の分別化、及び Idaho 化学処  
理プラント (ICPP) 大気試料による実地試験について報告  
CC MB02030K, CC03013N, BH02030R (614.73:614.876, 543.51, 539.183.2)  
KW よう素同位体; 核燃料再処理; 廃棄物処理施設; 大気汚染; 放射能汚染; 汚  
染監視; 定量分析; 質量分析; 試料採取; 試料調製; 微量元素; 同位体存在  
比  
FT [よう素129]

---

CN 84A0429685, C84310980, G84211704, K84111560, N84112235  
TI 環境試料中のよう素-129及びよう素-127の中性子放射化分析  
ET Neutron activation analysis of iodine-129 and iodine-127 in environmental samples.  
AU MURAMATSU Y, OHMOMO Y (National Institute of Radiological Sciences, Nakaminato-shi); CHRISTOFFERS D (Univ. Hannover, F. R. G.)  
JN B0949B (JRNCD) (0236-5731) J Radioanal Nucl Chem  
VN VOL. 83, NO. 2 PAGE. 353-361 1984  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写図2, 表1, 参19)  
AB アルカリ融解処理した試料からよう素を四塩化炭素抽出法(A)で分離したのち、原子炉中中性子で6h照射した。生成した<sup>130</sup>I及び<sup>128</sup>Iを(A)の方法で精製したのち、PdI<sub>2</sub>として回収して、γ線スペクトロメトリーを適用した。1981~82年に採取した松葉、雨水、土壌、沼水、海そうの分析結果を述べた。<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>Iの含量比は $1 \times 10^{-9}$  (砂) ~  $7.9 \times 10^{-8}$  (松葉) で、<sup>129</sup>Iの検出限界は $1 \times 10^{-3}$  pCiであった  
CC MB02030K, CC06070X (614.73:614.876, 543.52/.53:(551.444+551.48)  
KW 環境; マツ属; 葉; 降水; 土; 湖沼水; 海藻; 放射化分析; 中性子照射; 定量分析; よう素同位体; 放射能汚染; 核分裂生成物; 放射線監視  
FT [よう素127; よう素129]

---

CN 84A0435459, C84310793, E84211712, N84111560, P84210814  
TI 共鳴イオン化型質量分析によるウランおよびプルトニウムの同位体比測定  
ET Isotopic measurements of uranium and plutonium by resonance ionization mass spectrometry.  
AU DONOHUE D L, YOUNG J P, SMITH D H (Oak Ridge National Lab., TN)  
JN E0569B Anal Chem Symp Ser  
VN VOL. 19 PAGE. 143-148 1984  
CI (C) (a2) (EN) (NLD) (表2, 参14)  
AB ウランおよびプルトニウムの同位体比測定のイオン化源としてレーザー励起共鳴を用いた。元素に対する選択性の向上、同重核の妨害の減少を期待し、レーザー励起の最適条件を調べた。NBS標準物質を含むレジンビーズ試料(ウラン、プルトニウムを数ng程度吸着)に適用し、二段階磁場収束型質量分析計で同位体比を測定、<sup>235</sup>U/<sup>238</sup>Uの場合は相対偏差が0.65%, <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Puでは0.24%, <sup>241</sup>Pu/<sup>239</sup>Puでは1.4%の値を得た。従来の熱イオン化型質量分析に比べて、ウランとプルトニウムの相互の選択性は著しく向上した  
CC CC03013N, MD08020V, BD04100V (543.51, 621.039.542/.543, 621.375.826.06)  
KW レーザ応用; 共鳴; イオン化; 質量分析; ウラン同位体; プルトニウム同位体; 同位体存在比; 定量分析; 測定精度; 共鳴イオン化質量分析

---

CN 84A0451377, J84111604, K84111476, N84112204  
TI 低レベル長半減期核種分析の進歩 土壤中の<sup>129</sup>Iの定量法  
AU 野村保(動燃)  
JN Z0881A NIRS-M (Natl Inst Radiol Sci)  
VN NO. 46 PAGE. 189-195 1982  
CI (T) (b2) (JA) (JPN) (写図4, 参6)  
AB 乾燥, 粉碎などの試料前処理, 燃焼, 活性炭捕集, 溶媒抽出などによる分離, 精製, 中性子放射化後の<sup>130</sup>Iのγ-スペクトロメトリより測定する放射化分析法につき解説  
CC MB02020Z, FB04100T (613.648:614.89, 628.516:614.76)  
KW よう素同位体; 定量分析; 土壤汚染; 前処理; 分離; 溶媒抽出; 放射化分析; ガンマ線スペクトル; スペクトル解析; 放射線監視; 土壤分析  
FT [よう素129]

---

CN 84A0492511, C84360791, L84240481, N84120296  
TI テクネチウム-99の放射化学的定量  
ET Radiochemical determination of technetium-99.  
AU CHU N Y, FELDSTEIN J (Environmental Measurements Lab. U. S. Dep. Energy, NY)  
JN E0324A (TLNTA) (0039-9140) Talanta  
VN VOL. 31, NO. 10A PAGE. 809-813 1984  
CI (A) (a1) (EN) (GBR) (写図1, 表2, 参33)  
AB 植物中の<sup>99</sup>Tcの定量法を確立した。<sup>95m</sup>Tcをトレーサとして加え, 試料を湿式灰化した後, 炭酸カルシウムと共沈させる。硝酸溶液とし陰イオン交換分離法によって精製, 次いで白金板上に電着させる。Tcの収率は<sup>95m</sup>Tcの204 keVのγ線測定によって求め, 0.292 MeVのβ線測定で得た<sup>99</sup>Tcの値を補正する。<sup>99</sup>Tcの検出限界は10gの試料を用いて3000分計数を行った場合で0.1µCiである。化学分離の収率は60~80%であった  
CC CC06034V, EH01050J (543.52/.53:547-124, 581.192)  
KW テクネチウム99m; 放射化学分析; 定量分析; 植物; 放射性トレーサ法; 検出限界; 生体成分分析; テクネチウム同位体

---

CN 85A0085679, C85060646, L85042842, N85030290  
TI 制動放射線測定による溶液中のテクネチウム-99の定量  
ET Determination of technetium-99  
content in solutions by using  
bremsstrahlung measurements.  
AU MUENZE R, GROSSMANN B (Central Inst.  
Nuclear Research, DDR)  
JN C0201A (IJARA) (0020-708X) Int J Appl Radiat Is  
ot  
VN VOL. 35, NO. 11 PAGE. 1073-1074 1984  
CI (A) (a2) (EN) (USA) (写図1, 表2, 参7)  
AB 試料は井戸型 $\gamma$ 線 [NaI (T1)] シンチレーション検出器で測定 ( $^{99}\text{Tc}$ :  
100~500 $\mu\text{g}$ , 0.5~5ml)。計数効率39.4カウント/分 $\cdot\mu\text{g}$  (BG1000カウント/分)。測定は迅速かつ非破壊的で、試  
料の濃度及び化学型を問わない。ただし、完全に溶解していることが必要  
CC CB10050N, CC06032N, GW180100 (541.28:621.039.85, 543.52/.53:547-121,  
615.2:621.039.8)  
KW テクネチウム99m; 標識化合物; 非破壊分析; 固体シンチレーション検出  
器; よう化ナトリウム; 内部制動放射; ガンマ線検出; 溶液; 放射性医薬品  
; 定量分析; 放射化学分析; 効率; バックグラウンド  
FT [テクネチウム99]

---

CN 85A0376518, C85261081, G85182406, K85091837, N85090374  
TI 中性子放射化分析による土壌中の $^{129}\text{I}$ と $^{127}\text{I}$ を定量するためのよう素分離  
操作  
ET Iodine separation procedure for  
the determination of  $^{129}\text{I}$  and  $^{127}\text{I}$  in  
soil by neutron activation  
analysis.  
AU MURAMATSU Y, UCHIDA S, SUMIYA M, OHMO  
MO Y (National Inst. Radiological S  
ciences, Ibaraki)  
JN B0949B (JRNCD) (0236-5731) J Radioanal Nucl Che  
m  
VN VOL. 94, NO. 5 PAGE. 329-338 1985  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写図3, 表2, 参10)  
AB よう素を中性子照射前に試料から気化 (石英製燃焼管: 内径30mm, 長さ  
350mm) 後, トラップ (KOH-K<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>-水系) で集める操作をし,  
引き続いて硝酸酸性下でCCl<sub>4</sub>による抽出操作で分離した。この一連の操  
作を通してのよう素の化学的収率は90%以上であった。中性子照射は5.  
5 $\times 10^{13}\text{ncm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の中性子束で6hおこない, 次いで溶媒抽出法によ  
ってよう素を精製後,  $\gamma$ スペクトロメトリーを適用して $^{129}\text{I}$ と $^{127}\text{I}$ を定量  
した。 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比の検出限界は $1\times 10^{-9}$ であるがその内の1種の定量  
値は $^{129}\text{I}$ : 1.12m, Bq/kg,  $^{127}\text{I}$ : 58.9  
CC CC06090T, MB02030K (543.52/.53:549, 614.73:614.876)  
KW 土壌分析; 中性子照射; 放射化分析; よう素同位体; 定量分析; よう素; 試  
料調製; 前処理; 溶媒抽出; ガンマ線スペクトル; 放射能汚染; 環境汚染  
FT [よう素127; よう素129]

---

CN 86A0016652, C86021113, N86010021  
TI 使用済燃料中の核分裂および核分裂親物質測定のための遅発中性子測定法  
ET Delayed neutron method for  
measurement of fissile/fertile  
content of samples ranging from  
environmental to irradiated fuel.  
AU PROCTOR A E, HARKER Y D, AKERS D W, M  
ANDLER J W (EG&G Idaho Inc.)  
JN C0283B Nucl Mater Manage  
VN VOL. 13, NO. Proceedings Issue PAGE. 2  
82 - 292 1984  
CI (A) (a1) (EN) (USA) (写真10, 表3, 参20)  
AB 遅発中性子の測定は,  $^{235}\text{U}$ と $^{238}\text{U}$ との含有量を決定するために使用されて  
いる  
CC MA01060H, CC06100H (621.039.54:65, 543.52/.53 OTHERS)  
KW 使用済燃料要素; 遅発中性子; 放射化分析; ウラン235; ウラン238;  
定量分析; 保障措置; 核物質管理; 核分裂性物質; 核分裂中性子; 核反応分  
析  
FT [アクティブ分析]

---

CN 86A0049619, C86031118, K86021755, N86021799  
TI 誘導結合プラズマ-発光分光分析による水溶液試料中の $^{99}\text{Tc}$ の定量  
ET Determination of  $^{99}\text{Tc}$  in  
aqueous samples by inductively  
coupled plasma-optical emission  
spectrometry.  
AU BROWN R M, PICKFORD C J, PORTSMOUTH  
N J (United Kingdom Atomic Energy A  
uthority)  
JN P0908A U K At Energy Auth  
VN NO. AERE - M - 3477 PAGE. 14 p 1985  
CI (T) (a1) (EN) (GBR) (写真1, 表2, 参3)  
AB 密閉容器から外部へ移行した $^{99}\text{Tc}$ 濃度の定量にICP-AESを適用した  
。3~5mlの水溶液試料を取り, 2.2ml/minの流量でネブライザ  
に送り, 261.00nmのスペクトルを測定した。検出限界は3ppbで  
あった。他の方法, すなわちICP-質量分析法(MS), 黒鉛炉原子吸光  
分析法, 液体シンチレーション法と比較し, 正確さでは差がないことを確か  
めた。検出限界はICP-MSの0.04ppbには劣るが, 他の二法とは  
同程度である。迅速性, 簡便性ではICP-AESが優れており, 環境分析  
のような多数の試料を扱う場合に適している  
CC MB02030K, CC03022H (614.73:614.876, 543.4/.51:546-121)  
KW 発光分析; プラズマ応用; テクネチウム同位体; 水溶液; 定量分析; 濃度測  
定; 核分裂生成物; 放射能汚染; 試料調製; 比較  
FT [テクネチウム99]

---

CN 86A0117958, K86031783, N86031840  
TI トリチウム分析のための植物中水分の分離法  
ET Separation method of water from plants for tritium analysis.  
AU 五十嵐修一, 北川貞治 (福井県衛研)  
JN Z0254A (0388-2020) 福井県衛生研究所調査研究報告  
VN NO. 23 PAGE. 58-61 1985  
CI (A) (a1) (JA) (JPN) (写図2, 表4, 参2)  
AB 松葉, ヨモギ葉中の環境トリチウム濃度レベルを知る目的として, トルエン共沸蒸留法により水分を分離して計測した。トルエンと水の共沸蒸留処理中の同位体交換は認められず, 従来の真空蒸留法との比較を水の回収率, データの精度について行ったところ, 同程度であった。蒸留中の不純物の混入は, 過マンガン酸カリウム添加精製蒸留により解決できた  
CC MB02030K (614.73:614.876)  
KW マツ科; ヨモギ; 葉; 三重水素; 環境汚染; 放射能汚染; 水分分析; 原子力発電

---

CN 86A0167323, C86111283, G86082380, N86040378  
TI エピサーマル中性子放射化分析によるブラジル産石炭中のウラン及びトリウムの定量  
ET Uranium and thorium determination in Brazilian coals by epithermal neutron activation analysis.  
AU BELLIDO L F, AREZZO B C (Comissao Nacional de Energia Nuclear, Brasil)  
JN B0949B (JRNC) (0236-5731) J Radioanal Nucl Chem  
VN VOL. 92, NO. 1 PAGE. 151-158 1985  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写図3, 表3, 参12)  
AB カドミウム容器に封入した標記試料を原子炉内で8h照射 (Cd比: 2.24) した後, Uから生成した<sup>239</sup>Npの106.1keV $\gamma$ 線をLEPS検出器, Thから生成した<sup>233</sup>Paの311.8keV $\gamma$ 線をGe (Li) 検出器によって測定した。本法による定量限界は0.15 $\mu$ gU/g及び0.078 $\mu$ gTh/gであり, 最適な冷却時間は5~6日 (Uの場合) 及び18日 (Thの場合) であった。Uを定量する場合, 228及び278keVの $\gamma$ 線は<sup>177m</sup>Lu, <sup>169</sup>Yb, <sup>182</sup>Ta, <sup>175</sup>Hf, <sup>75</sup>Seなどの妨害が存在した。Thの測定に対して<sup>169</sup>Yb (307.5keV $\gamma$ 線) の影響を考慮する必要があった。NBS標準試料 (SRM1632a) の分析結果は保証値と良く一致し, 17種の標記試料中に含まれる $\mu$ g/g量のUを平均精度3%で定量できた  
CC CC06090T (543.52/.53:549)  
KW ブラジル; 石炭; 中性子照射; 放射化分析; ウラン; トリウム; ガンマ線検出; ガンマ線スペクトル; LiドリフトGe検出器; 定量分析; 検出限界; ネプツニウム同位体; プロトアクチニウム同位体; 妨害成分; 精度; 原子炉  
FT [ネプツニウム239; プロトアクチニウム233]

---

CN 86A0244944, C86151038, N86060264  
TI  $^{129}\text{I}$ の放射化分析  
ET Activation analysis of  $^{129}\text{I}$ .  
AU FILISTOVICH V J, NEDVECKAITE T N, ST  
YRA B J (Inst. Physics Academy of S  
ciences of Lithuanian SSR, USSR)  
JN B0949B (JRNC) (0236-5731) J Radioanal Nucl Che  
m  
UN VOL. 97, NO. 1 PAGE. 123-130 1986  
CI (A) (al) (EN) (NLD) (写図1, 表1, 参29)  
AB  $^{127}\text{I}$ および $^{129}\text{I}$ の混合物系における $^{129}\text{I}$ の定量法を理論的に考察し,  $^{129}\text{I}$   
 $\text{I}$ の放射化分析に及ぼす $^{127}\text{I}$  ( $n, \gamma$ )  $^{128}\text{I}$  ( $n, \gamma$ )  $^{129}\text{I}$  ( $n, \gamma$ )  $^{130}\text{I}$   
の影響などを検討した。試料中の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比 ( $k$ ) が $10^{-3}$ の場合  
には大きな中性子束 ( $\geq 10^{14} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ ) を必要とし,  $k$ および $^{129}\text{I}$   
含量の少ない試料に対して質量分析が適していた。 $\beta$ - $\gamma$ コインシデ  
ンス計数による $^{130}\text{I}$ 測定法の検出限界は約 $1.2 \times 10^{10}$ 原子であった。環  
境試料中の $^{129}\text{I}$ の定量法 ( $\beta$ -,  $\gamma$ -およびX線測定, 放射化分析, 質量  
分析) について概観し, 分析感度,  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比の測定下限などを表示し  
た。放射化分析に必要な $^{128}\text{I}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{130m}\text{I}$ および $^{130}\text{I}$ の核的データ (壊  
変定数, 熱中性子捕獲断面積) を提示した  
CC CC06010J (543.52/.53)  
KW よう素同位体; 放射化分析; 定量分析; 断面積  
FT [よう素129; 熱中性子捕獲断面積]

---

CN 86A0540597, K86121233, N86122346  
TI 光核分裂を用いる中レベル廃棄物の500lドラムかんのアクチノイド含  
量分析の評価  
ET An assessment of the assay of the  
actinide content of 500 litre  
drums of intermediate level waste  
using photofission.  
AU FINDLAY D J S. (United Kingdom Atomi  
c Energy Authority)  
JN P0908A U K At Energy Auth  
UN NO. AERE-R-12009 PAGE. 30p 1986  
CI (T) (al) (EN) (GBR) (写図5, 表5, 参2)  
AB 光核分裂を用いる中レベル廃棄物固化体の500lドラムかんに含まれるア  
クチノイド量分析法の評価を行った。この分析法は約7MeVの線型加速器  
からの電子線の制動放射により, ドラムかん内のアクチノイドに誘起される  
光核分裂と光中性子反応で放出される速発中性子を, ドラムかんをかこむ数  
本の $^{10}\text{BF}_3$ 計数管で検出することに基づいている。アクチノイドの定量に  
影響する固化体中重水素からの中性子などを考慮した測定では, 中レベル廃  
棄物の500l固化体ドラムかんの $^{238}\text{U}$ を主成分とする全アクチノイド  
量は, 10分間で約40gまで分析できる  
CC MB05000Y (621.039.7)  
KW 放射性廃棄物; 光核分裂; アクチノイド; 定量分析; ドラム缶; 重水素; 中性  
子; ウラン238; ぶっ化ほう素; ほう素同位体; 制動放射; 中レベル廃棄  
物  
FT [ほう素10]

---

CN 87A0201268, C87131149, N87040337  
TI 環境試料中のよう素の放射性核種 それらの分析法  
ET Iodine radionuclides in environmental samples : A procedure for their assay.  
AU MELONI S (Univ. Pavia, Pavia, ITA); NOGARA G (Univ. Milano, Milano, ITA); QUEIRAZZA G (ENEL, Milano, ITA)  
JN B0086B (JTMTD) (0733-4680) J Trace Microprobe Tech  
VN VOL. 3, NO. 3 PAGE. 221-253 1985  
CI (A) (al) (EN) (USA) (写図2, 表8, 参37)  
AB 環境試料に含まれる<sup>125</sup>I, <sup>129</sup>I, <sup>131</sup>Iを放射線防護に関する国際委員会の許容値に匹敵する水準で同時に測定できる放射化学的方法を開発した。化学的方法はAgCl-SiO<sub>2</sub>を充填したクロマトカラムでの吸着及び精製によるIの分離に基づく。放射能測定は<sup>125</sup>Iと<sup>131</sup>Iについてはガンマ線分光法により、また<sup>129</sup>Iについてはベータ線を液体シンチレーション計測することで行った。本法はミルク、河川水、水生あるいは陸生の野菜、魚、堆積物、土壌内の3種のI放射性核種の分析に応用した。精度、正確度、感度などに関する本法の特徴を提出し、議論した  
CC CC06010J (543.52/.53)  
KW よう素131; ICRP; 許容量; カラムクロマトグラフィー; 分離; ガンマ線検出; ベータ粒子検出; 乳汁; 河川水; 野菜; 魚類; 堆積物; 土; 測定精度; 感度; 放射化学分析; よう素同位体; 定量分析; こん跡分析; 痕跡量成分; 放射線監視; 放射線防護; 土壌分析; よう素125  
FT [よう素129]

---

CN 87A0415183, N87090110  
TI ガンマ線測定による核種定量システム技術現状 (film)  
ET A state-of-the-art passive gamma-ray assay system.  
AU SAMPSON T E, PARKER J L, COWDER L R, KERN E A, GARCIA D L, ENSSLIN N (Los Alamos National Lab., NM, USA)  
JN P0998A US DOE Rep  
VN NO. LA-UR-87-962 PAGE. 7p 1987  
CI (T) (al) (EN) (USA)  
AB 極微量の<sup>235</sup>Uを正確に、高い精度で測定する方法をロアラムス国立研究所で開発。低濃度ウランの場合、200mlの溶液があれば、 $1 \times 10^{-4} \text{g } ^{235}\text{U/l}$ の濃度まで分析可能。測定時間は1000秒である。<sup>235</sup>Uからの185.7keVのガンマ線を測定する。このとき、<sup>169</sup>Ybと<sup>241</sup>Amを用い、途中の吸収の補正等に使用  
CC MC01040R (621.039.84 OTHERS)  
KW ウラン235; ガンマ線検出; イッテルビウム同位体; アメリシウム同位体; 定量分析  
FT [イッテルビウム169; アメリシウム241]

---

CN 88A0070770, G88032459, J88020271, N88020472  
TI 炭素-14 加速器質量分析用試料作製時における現代炭素の混入  
ET Contamination of modern carbon in sample preparation for measurement of carbon-14 by accelerator MS.  
AU 吉川英樹 (共立薬大 薬); 佐藤和宏 (東邦大 理); 吉田邦夫 (東大 理); 小林紘一 (東大 原子力研総セ); 三浦太一, 野崎正 (理研); 今村峯雄 (東大 原子核研); 本間義夫, 中原弘道 (東京都大 理)  
JN F0008A (BNSKA) (0525-1931) 分析化学  
VN VOL. 36, NO. 11 PAGE. 755-760 1987  
CI (A) (a1) (JA) (JPN) (写図2, 表3, 参6)  
AB 加速器質量分析法では $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ が $10^{-17}$ まで測定可能で年代測定に用いられている。現行の二酸化炭素をMgで無定形炭素に還元する方法では, $^{14}\text{C}$ を多く含む現代炭素の混入が1.3%となり3万5千年までの年代測定しか出来ない。現代炭素の混入につき検討した。市販のMgは36~1600ppmの炭素を含み汚染の影響が明らかになった。他洗浄用アセトンも現代炭素を含んでいたが、トルエン及び真空ライン用ロータリポンプの油の $^{14}\text{C}$ 濃度はバックグラウンド以下であった。コールドトラップ, グリースレスコック, 炭素含量6ppmのMgの使用, 器具の洗浄方法の改良などにより, 現代炭素の混入は0.4%まで防ぐことができ, 年代測定下限が4万6千年になった  
CC MC03011P, CC06010J (621.039.86, 543.52/.53)  
KW 炭素14; 質量分析; 試料調製; 放射性炭素法年代測定; 妨害成分; バックグラウンド; 加速器; マグネシウム; 還元; 二酸化炭素/1; 検出限界; 純度試験; 定量分析; こん跡分析; 痕跡量成分; 放射化分析; 荷電粒子  
FT [加速器質量分析; 荷電粒子放射化分析]

---

CN 88A0085737, K88020653, N88021829  
TI 環境における元素の存在形態別分析定量法 I 大気 総論  
ET Physical and chemical forms of the elements in the environment and analytical methods of them. Atmosphere (Review).  
AU 高島良正 (九大 理)  
JN Z0881A NIRS-M (Natl Inst Radiol Sci)  
VN NO. 57 PAGE. 5-17 1986  
CI (T) (b2) (JA) (JPN) (写図10, 表2, 参10)  
AB 気圏の構造, 大気の平均組成とその変動成分ならびに大気汚染問題について概説。また大気中に存在する元素の形態別分析法としてガスクロマトグラフィー分離による大気汚染物質の分析法およびエアサンプラー使用のエアロゾルに取込まれた核種分析法に加え, 大気中 $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{220}\text{Rn}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^3\text{H}$ など放射性核種個々の分析法を紹介した  
CC CC04060Y, SB03010B, MB02030K (543.544/.545:614.71/.73, 614.71/.73, 614.73:614.876)  
KW 大気組成; 大気構造; 大気汚染; 大気汚染質; 元素形態; エーロゾル; ラドン222; 娘核種; ラドン同位体; キセノン同位体; クリプトン同位体; 炭素14; 三重水素; 定量分析; 活性炭; 溶離液; 放射能測定; 液体シンチレーション検出器; 試料採取器; ガスクロマトグラフィー; 電子捕獲検出器  
FT [ラドン220; キセノン133; クリプトン85]

---

- CN 88A0094312, K88020651, N88021865  
TI 環境における元素の存在形態と形態別分析定量法 I 大気 大気中の  
よう素  
ET Physical and chemical forms of the  
elements in the environment and  
analytical methods of them. Iodine  
in the atmosphere.  
AU 成富満夫 (原研)  
JN Z0881A NIRS-M (Nat'l Inst Radiol Sci)  
VN NO. 57 PAGE. 18-23 1986  
CI (T) (b2) (JA) (JPN) (写図5, 参3)  
AB 極低濃度の環境雰囲気中の放射性よう素を形態別に識別定量するのに必要な  
サンプリング装置を紹介。元素状のよう素を銀添加フィルタにAgIの形で  
効率よく捕集するため、活性炭に有機よう素と化学反応する薬品を添着した  
捕集剤を使用のMaypack Sampler (I)の構成を図説。Iの  
捕集材中のoff gasに含まれるよう化メチルは塩化メチルに変化して  
、遊離するよう素は活性炭に吸着。質量スペクトルでよう素量を測定する方  
法について概説  
CC CC03060R, SB03010B, MB02030K (543.4/.51:614.71/.73, 614.71/.73, 614.  
73:614.876)  
KW 大気汚染; 大気汚染質; よう素同位体; よう素131; 放射能測定; 定量分  
析; 試料採取器; フィルタ; 活性炭; よう化銀; よう化メチル/1; 吸着; 質  
量分析; 塩化メチル/2; ガンマ線スペクトル  
FT [よう素129; よう素127]
- 

- CN 88A0192799, C88121204, G88082407, K88041843, N88040315  
TI 沿岸堆積物中の自然放射性核種の定量 分析結果の相互比較実験  
ET Determination of natural  
radionuclides in a coastal marine  
sediment. An analysts'  
intercomparison exercise.  
AU HARVEY B R, YOUNG A K (Directorate o  
f Fisheries Research, Ministry of  
Agriculture, Fisheries and Food, S  
uffolk, GBR)  
JN C0501B (0048-9697) Sci. Total Environ  
VN VOL. 69 PAGE. 13-28 1988  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (表4, 参7)  
AB 英国のいくつかの研究所から少数の分析グループが集まり、環境中の放射化  
学的測定に関する経験交流を行っている。多くの分析結果相互比較実験中の  
1例: Irish Sea堆積物中の $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$   
の定量, を報告。処理法, 均質性試験, 分析法の概略を述べ, 結果につ  
いては, 試料の初期溶解や抽出といった処理法との関連で考察した  
CC CC06090T, MB02030K (543.52/.53:549, 614.73:614.876)  
KW 放射性同位体; 潮間帯堆積物; 放射化学分析; 定量分析; ウラン238; ウ  
ラン235; ラジウム同位体; 鉛同位体; 環境汚染; 放射能汚染  
FT [ウラン234; ラジウム226; 鉛210]
-

CN 88A0218561, G88092435, J88050394, N88050263  
TI テノイルトリフルオロアセトン液-液抽出分離法を用いた中性子放射化分析法によるアルミニウム及びマグネシウム中のウランとトリウムの定量  
ET Determination of uranium and thorium in aluminium and magnesium by NAA using thenoyltrifluoroacetone liquid-liquid extraction.  
AU 米沢伸四郎, 星三千男, 立川円造 (原研 東海研); 上沖寛 (放射線照射振興協)  
JN F0008A (BNSKA) (0525-1931) 分析化学  
VN VOL. 37, NO. 1 PAGE. 7-11 1988  
CI (A) (a1) (JA) (JPN) (写図1, 表4, 参11)  
AB 半導体メモリ構成材料のAl及びMg中のppb量のUとThの定量法を検討した。試料を原子炉で照射後1M塩酸溶液とし, 生成した<sup>239</sup>Np (IV)と<sup>233</sup>Pa (V)をテノイルトリフルオロアセトン-キシレン溶液で抽出する。10M硝酸で<sup>239</sup>Npを, 5M硫酸で<sup>233</sup>Paを逆抽出する。UとThの標準溶液についても試料と同様に操作し, γ線スペクトロメトリーにより<sup>239</sup>Npと<sup>233</sup>Paを測定し, UとThを定量する。<sup>239</sup>Npと<sup>233</sup>Paの回収率は90%以上であった。岩石標準試料の分析により本法の正確さを確認した。分析例は, Al, JIS A1050ではU630ppb, Th67ppbが検出されたが, Mgについては, U, Thとも限出限界の0.5ppb以下であった  
CC CC06090T, CC06040Q (543.52/.53:549, 543.52/.53:669)  
KW 溶媒抽出; 中性子照射; 放射化分析; アルミニウム; マグネシウム; トリウム; ウラン; チオフェン誘導体/1; 標準岩石; 検出限界; 定量分析; こん跡分析; 痕跡量成分; ブタンジオン誘導体/1; 有機ふっ素化合物/1; 分析試薬; 鉱物分析; 半導体メモリ; ネプツニウム同位体; プロトアクチニウム同位体  
FT [テノイルトリフルオロアセトン]

---

CN 88A0253350, A88121901, K88050304, N88051873  
II ベルギー沿岸で採取した褐藻類 *Fucus spiralis* 中の<sup>99</sup>Tcの  
定量  
ET The determination of technetium-99  
in the brown marine alga *Fucus  
spiralis* collected along the  
Belgian coast.  
AU HURTGEM C, KOCH G, BONOTTO S (Belgian  
Nuclear Centre, Mol, BEL); VAN DER  
BEN D (Inst. royal des Sciences Na  
turelles de Belgique, Bruxelles, B  
EL)  
JN C0501B (0048-9697) *Sci Total Environ*  
VN VOL. 70 PAGE. 131-149 1988  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写真10, 表1, 参18)  
AB 標題試料を湿式分解(濃硝酸法)したのち、陰イオン交換樹脂カラム法(B  
io-Rad AG1×8, OH<sup>-</sup>型)を適用した。<sup>99</sup>Tcの溶離に7.5  
M硝酸を使用し、GMあるいは比例計数管法によって測定した。褐藻中の<sup>99</sup>  
Tc含量は増加する傾向(1985年3月~1986年2月)が観測された  
。中心及び基底部位の<sup>99</sup>Tc含量は先端部に比べて高い値を示し、中心及び  
基底部位の古い*Fucus spiralis*組織は長期間にわたり<sup>99</sup>Tc  
の取り込みに関与していた。海水中の<sup>99</sup>Tc濃度を基準とした場合の濃縮係  
数は(0.8~3.6)×10<sup>4</sup>であり、中心部位では5.1×10<sup>4</sup>に達し  
た。本法による<sup>99</sup>Tcの放射化学収率は50~58%であった。*Fucus  
spiralis*は沿岸水の<sup>99</sup>Tc汚染に対する生物指標として有用であ  
った  
CC SB02040B, MB02030K (614.777(26), 614.73:614.876)  
KW ヒバマタ科; ベルギー; 海岸; テクネチウム99m; 定量分析; 含有量; 海  
洋汚濁; 放射能汚染; 生物指標; 生物濃縮; 放射能測定; 取込; 生体内分布  
; イオン交換クロマトグラフィー; 放射化学分析  
FT [*Fucus spiralis*]

---

CN 88A0253358, A88121923, K88050420, N88051880  
II 非放射化学的方法による長寿命放射性核種の測定  
ET The measurement of long lived  
radionuclides by non-radiometric  
methods.  
AU BROWN R M, LONG S E, PICKFORD C J (Ha  
rwell Lab., Oxfordshire, GBR)  
JN C0501B (0048-9697) *Sci Total Environ*  
VN VOL. 70 PAGE. 265-274 1988  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (表5, 参2)  
AB 比放射能の低い標題元素を誘導結合プラズマの発光及び質量分析によって定  
量した。試料溶液の噴霧によって生成したエアロゾルをArプラズマに導入  
する質量分析法の検出限界は<sup>99</sup>Tc; 25(15), <sup>129</sup>I; 300(2)  
, <sup>232</sup>Th; 10(0.004), <sup>237</sup>Np; 10(0.26), <sup>238</sup>U; 1  
0(0.012), <sup>137</sup>Cs; 10pg/ml(60Bq/ml)であった  
。質量分析法は前処理が不必要であり、天然水中のUの定量へ適用した結果  
はα線スペクトロメトリーによる分析値(水酸化鉄共沈法)とよく一致した  
。誘導結合プラズマ発光分析によるコンクリート浸出液中のTcの定量限界  
は3ng/mlであった。海草中のng/g量<sup>99</sup>Tcの定量、雨水の放射能  
汚染監視(<sup>99</sup>Tc, <sup>129</sup>I, <sup>238</sup>U)に質量分析法が適していた  
CC SB02060X, MB02030K (614.777:543, 614.73:614.876)  
KW 放射性同位体; 定量分析; ICP-ES分析; ICP-MS分析; 水質試験  
; ウラン238; テクネチウム99m; よう素同位体; セシウム137; ト  
リウム232; 検出限界; 放射化学分析

---

CN 88A0344592, K88071491, N88071867  
 TI ネバダ州 Yucca 山貯蔵所から地下水面への放射性核種の積算放出量の推定 (film)  
 ET Estimates of cumulative releases of radionuclides to the water table from a repository at Yucca Mountain, Nevada.  
 AU TIERNEY M S, BINGHAM F W (Sandia National Lab., NM, USA)  
 JN P0998A US DOE Rep  
 VN NO. SAND-86-2178-C PAGE. 13 p 1986  
 CI (T) (ai) (EN) (USA)  
 AB 標記の放出量を、貯蔵所閉鎖後一万年の長期間に対して、サイトの不飽和帯の水文学的モデルに基く地下水の移動時間分布を、Simmons の理念に合体させた単純な数学モデルを用いて見積り、Yucca 山の水質化学における核種の収着率を計算した。70,000 MTU の使用済核燃料を含む貯蔵所から、一万年の間に地下水面に放出される核種は C-14, I-129 と Tc-99 である。放出量は許容量の 10/1,000,000 程度であった  
 CC MB05000Y (621.039.7)  
 KW 使用済燃料要素; 高レベル廃棄物; 地中処分; 地下貯蔵; 廃棄物処分施設; 環境放射性核種移動; 放射能放出; 放射能汚染; 地下水汚濁; 定量分析; 数値計算; 数学モデル; 水文モデル; 地下水面; 水質基準; 環境指数; 炭素 14; よう素同位体; テクネチウム 99m; 長期予測; 積算; 化学吸着; 地下水; 地下水流動; 流動解析  
 FT [よう素 129]

---

CN 88A0349592, K88071860, N88071675  
 TI 環境試料中の Am-241, Cm-242, Cm-244 の定量  
 ET Determination of Am-241, Cm-242 and Cm-244 in environmental samples.  
 AU AFSAR M, SCHUETTEKOPF H (Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe, DEU)  
 JN P0902A (0303-4003) Kernforschzent Karlsruhe (Ger)  
 VN NO. KFK-4346 PAGE. 30 p 1988  
 CI (T) (ai) (EN) (DEU) (写真 9, 表 9, 参 10)  
 AB Karlsruhe 原子力研究所と WAK 再処理施設の周辺の環境モニタを行うため、高感度で迅速な Am, Cm の定量法を開発した。環境への液体、気体放出試料中の Am, Cm の定量法では、化学収率の平均値は約 90%、検出限界は  $7 \mu\text{Bq/g}$  となった。重要な  $\alpha$  放射体の除染係数は  $> 10^4$  である。一週当たり四回の分析操作を一人の技術者で実施できる  
 CC MB02030K (614.73:614.876)  
 KW 西ドイツ; 核燃料再処理; 原子力施設; 放射能放出; 環境放射性核種移動; 放射線防護; 放射線監視; 放射能測定; キュリウム同位体; 定量分析; アメリカシウム同位体; アルファ廃棄物; 検出限界; 放射能除染; 分離係数; 廃水; 排ガス; 試料採取; 試料調製  
 FT [キュリウム 242; キュリウム 244; アメリカシウム 241]

---

CN 88A0388253, C88231409, K88081949, N88080254  
TI  $^{129}\text{I}$  の中性子放射化分析と質量分析測定  
ET Neutron activation and mass spectrometric measurement of  $^{129}\text{I}$ .  
AU STREBIN R S JR, BRAUER F P, KAYE J H, RAPIDS M S, STOFFELS J J (Pacific Northwest Lab., WA, USA)  
JN B0949B (JRNC) (0236-5731) J Radioanal Nucl Chem  
VN VOL. 127, NO. 1 PAGE. 59-73 1988  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写図4, 表1, 参13)  
AB  $^{129}\text{I}$  の質量分析 (MA) 測定法を検証するために, 中性子放射化分析 (NAA) 測定用試料の精製法をMAにも適用できるように改善した。本精製法を用いて環境試料を処理し, NAAとMAの双方で分析したところ, その測定値は誤差の範囲内で一致した。それらの検出限度は  $10^7$  原子/2fg であった  
CC CC06010J, MB02030K (543.52/.53, 614.73:614.876)  
KW 放射化分析; 中性子照射; よう素同位体; 質量分析; 定量分析; 精製; 放射能汚染; 環境汚染  
FT [よう素129]

---

CN 88A0400471, C88241568, N88080290  
TI 原子炉冷却水中のこん跡量アクチニド元素の定量  
ET Determination of actinide traces in reactor water.  
AU NIESE U, NIESE S (Central Inst. Nuclear Research Rossendorf, Academy of Sciences of the GDR, Dresden, DDR)  
JN E0154B (IPRAX) (0021-1915) Isotopenpraxis  
VN VOL. 24, NO. 2 PAGE. 77-79 1988  
CI (A) (a1) (EN) (DDR) (表5, 参10)  
AB 一次冷却水中の  $^{239}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  及び  $^{239, 240}\text{Pu}$  を定量した。  $^{238}\text{Np}$  及び  $\text{Pu}$  トレサの同位体希釈分析によって  $^{239}\text{Np}$  ( $\gamma$ 線スペクトロメトリー) 及び  $^{238}\text{Pu}$  ( $\alpha$ 線スペクトロメトリー) を定量した。  $^{239, 240}\text{Pu}$ ,  $^{237}\text{Np}$  及び  $^{238}\text{U}$  の定量に放射化学分離の中性子放射化法が適当であり, トリオクチルホスフィンオキシド抽出 (3N硝酸) - 逆抽出 (0.01N硝酸) - 陰イオン交換樹脂法 ( $\text{Cl}^-$ 型) によって  $\text{U}$  を分離した。  $\text{Np}$  (IV) 及び  $\text{Pu}$  (IV) は TTA抽出 (1N硝酸) 及び逆抽出 (10N硝酸) を適用し, 陰イオン交換樹脂法 ( $\text{NO}_3^-$  及び  $\text{Cl}^-$ 型) によって相互分離した。原子力発電所の腐食生成物及び冷却水試料へ応用した。被覆材の局所的な損傷の特性化に有用であった  
CC CC06100H, MD04040P (543.52/.53 OTHERS, 621.039.534)  
KW 原子炉冷却系; 原子炉冷却材; アクチニド; ウラン238; ネプツニウム同位体; プルトニウム同位体; こん跡分析; 定量分析; アルファ線スペクトル; 放射化分析; 中性子照射; ホスフィンオキシド誘導体/1; 陰イオン交換樹脂; チオフェン誘導体/2; ケトン/2; 有機ふっ素化合物/2; 腐食生成物; 発電所; 原子力発電; 冷却水; 同位体希釈分析

---

CN 88A0483047, C88280919, G88192757, N88100944  
TI オクロウラン鉱試料の希土類元素の核種解析 中性子フルエンスを評価する新しい方法  
ET Nuclide analyses of rare earth elements of the Oklo uranium ore samples: A new method to estimate the neutron fluence.  
AU HIDAKA H, MASUDA A (Univ. Tokyo, Tokyo, JPN)  
JN B0688A (EPSLA) (0012-821X) Earth Planet Sci Lett  
VN VOL. 88, NO. 3/4 PAGE. 330-336 1988  
CI (A) (al) (EN) (NLD) (写図3, 表3, 参19)  
AB 二つのオクロウラン鉱試料のすべてのREEの同位体存在比と元素存在度を測定した。GdとU同位体比に基づいて中性子フルエンス、ウランの転換因子および平均中性子エネルギーを評価する新しい方法を発展させることに成功した。この新しい計算法はオクロの天然原子炉に対するこれらの因子を評価するのに有効である。Gd同位体を用いて本方法により評価した中性子フルエンス値とSmとNd同位体を用いた以前の値と比較検討した  
CC CC03090Y, MD08030G (543.4/.51:549, 621.039.1:622)  
KW ウラン鉱; 希土類元素; 中性子フルエンス; 元素存在度; オクロ現象; ガドリニウム同位体; 質量分析; 同位体存在比; ウラン235; ウラン238; 定量分析; こん跡分析; 痕跡量成分; ガドリニウム; 鉱物分析

---

CN 88A0585077, C88351506, K88121522, N88121717  
TI 日本で採取した環境試料中よう素-129とよう素-127の定量  
ET Determination of iocine-129 and iodine-127 in environmental samples collected in Japan.  
AU MURAMATSU Y, OHMOMO Y, SUMIYA M (National Inst. Radiological Sciences, Nakaminato, JPN)  
JN B0949B (JRNCD) (0236-5731) J Radioanal Nucl Chem  
VN VOL. 123, NO. 1 PAGE. 181-189 1988  
CI (A) (al) (EN) (NLD) (写図3, 表2, 参6)  
AB 放射化学的中性子放射化分析法で<sup>129</sup>I, <sup>127</sup>Iの定量を行なった。土壌(0.9~4.1mBq/kg), 沈降物(0.002~0.11mBq/kg), 松葉(1.2~3.2mBq/kg), 海草(<0.1~1.7mBq/kg)を東海村原子炉施設付近で採取し, 燃焼法でよう素を分離, <sup>129</sup>I(n, γ)<sup>130</sup>I, <sup>127</sup>I(n, 2n)<sup>126</sup>I反応により定量した。土壌では0~5cmの表土で高く, <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>Iの値は松葉で高い。<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>Iは麦畑より米田土壌の方が高いが<sup>129</sup>Iの濃度は麦畑の方が高い  
CC MB02030K, CC06032N (614.73:614.876, 543.52/.53:547-121)  
KW よう素同位体; 放射化分析; 中性子照射; 定量分析; 放射能測定; 土; フォールアウト; 原子炉; 原子力施設; マツ属; 葉; 畑地土; 水田土; 日本; 放射能汚染; 環境汚染  
FT [よう素127; よう素129]

---

CN 88A0590848, K88121539, N88121731  
TI アルファスペクトロメトリーによるグランドキャニオンの水中のウランとラジウム濃度の定量  
ET Determination of uranium and radium concentrations in the waters of the Grand Canyon by alpha spectrometry.  
AU STEWART B D, MCKLVEEN J W, GLINSKI R L (Arizona State Univ., AZ, USA)  
JN B0949B (JRNCD) (0236-5731) J Radioanal Nucl Chem  
VN VOL. 123, NO. 1 PAGE. 121-132 1988  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写図3, 表2, 参11)  
AB グランドキャニオン (コロラド川) 15か所の表面水, 地下水を採取し, 標記定量を行なった。 $^{226}\text{Ra}$ は $^{133}\text{Ba}$ を回収率トレーサとして $\text{BaSO}_4$ と共沈分離後,  $\alpha$ -スペクトル法で定量。Uは $\text{BaSO}_4$ 共沈物から溶媒抽出後 $\text{CsF}_3$ と共沈分離し $\alpha$ -スペクトル法で定量。小コロラド川以外では飲料水は $185\text{mBq/l}$  ( $5\text{pCi/l}$ )  $^{226}\text{Ra}$ であり,  $433\text{mBq/l}$  ( $11.7\text{pCi/l}$ )  $^{238}\text{U}$ であった。15地点の放射能濃度を表示した  
CC MB02030K (614.73:614.876)  
KW ウラン同位体; ラジウム同位体; 地下水; 定量分析; アルファ線スペクトル; アルファ線スペクトロメータ; 硫酸バリウム; 共沈; 溶媒抽出; ぶっ化セシウム; コロラド; 放射能測定; 放射能汚染; 環境放射線; 表面水

---

CN 89A0009670, C89011603, N89010233  
TI 生体組織中の $^{239}\text{Pu}$ と $^{241}\text{Am}$ の同時液体シンチレーション定量  
ET Simultaneous liquid scintillation determination of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  in tissue.  
AU MIGLIO J J, WILLIS L C (Los Alamos National Lab., NM, USA)  
JN B0949B (JRNCD) (0236-5731) J Radioanal Nucl Chem  
VN VOL. 123, NO. 2 PAGE. 517-528 1988  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写図2, 表1, 参3)  
AB 作業員がPu, Am汚染した組織を酸化し, 9M HCl溶液とし, PuをD2EHPAでトルエン溶液シンチレーターへ抽出し, Amを0.15M  $\text{HNO}_3$ -ジオキサン溶液とし, 二層カクテルでマルチチャンネル法で標記核種の同時測定を行なった。本法をZnSシンチレーションと $\alpha$ -スペクトロメトリーと比較した。妨害核種 $^{241}\text{Pu}$ の存在下で $^{241}\text{Am}$ の測定が可能  
CC CC06032N (543.52/.53:547-121)  
KW プルトニウム239; アメリシウム同位体; 液体シンチレーション検出器; りん酸エステル/1; ヘキサノール誘導体/1; 脂肪族アルコール/1; トルエン/2; 溶媒抽出; 硝酸/3; ジオキサン/4; 妨害成分; 定量分析; 作業員; 塩酸/5; 同時分析; 生体組織; 放射分析  
FT [アメリシウム241]

---

CN 89A0009675, C89011601, N89010228  
II 放射化学的中性子放射化分析によるモリブデン中U, Thその他の不純物の  
定量  
ET Determination of U, Th and other  
impurities in molybdenum by  
radiochemical neutron activation  
analysis.  
AU PARK K S, KIM N B, KIM Y S, LEE K Y, C  
HOI H W, YOON Y Y (Korea Inst. Energ  
y and Resources, Seoul, KOR)  
JN B0949B (JRNC) (0236-5731) J Radioanal Nucl Che  
m  
VN VOL. 123, NO. 2 PAGE. 585-592 1988  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写図1, 表3, 参11)  
AB Moを熱中性子照射後, 6M HCl溶液からDowex 50 X8陽イ  
オン交換樹脂でSm, Cr, Cs, Rb, Zr, Fe, Zn, Co, La,  
Na, Kを除去し, 1M HClで陰イオン交換樹脂Dowex 1 X8  
で<sup>239</sup>Np, <sup>233</sup>Paを分離し, U, Thの定量を行なった。中性子モニター  
にAu, Coを使用した  
CC CC06022C (543.52/.53:546-121)  
KW 放射化分析; 中性子照射; モリブデン; ウラン; トリウム; 塩酸; 陽イオン  
交換樹脂; 陰イオン交換樹脂; ネプツニウム同位体; プロトアクチニウム同  
位体; 定量分析; 不純物

---

CN 89A0236626, K89051769, N89051604  
II 陰イオン交換による環境試料中の<sup>99</sup>Tcの定量  
ET Determination of <sup>99</sup>Tc in  
environmental samples by anion  
exchange.  
AU CHEN Q J, AARKROG A, DAHLGAARD H, NIE  
LSEN S P, JENSEN H L, BRUUN J, PEDERS  
EN A H, MANDRUP K (Riso National Lab  
., Roskilde, DNK)  
JN P0911A (0418-6435) Risoe-M (Den Risoe Natl  
Lab)  
VN NO. RISOE-M-2739 PAGE. 22p 1988  
CI (T) (a1) (EN) (DNK) (写図2, 表4, 参3)  
AB 200mlの海水試料に<sup>99m</sup>Tcトレーサを加えて分析法ならびに収率を検  
討した。第1段階ではTcO<sub>4</sub><sup>-</sup>の形で陰イオン交換樹脂 (AG1-X<sub>4</sub>) カ  
ラムに吸着させ, 10N硝酸で脱離させる。次に, 100°C硫酸中でRu  
O<sub>4</sub>を蒸発させてRuを除去。第3段階ではFe(OH)<sub>3</sub>共沈とAgCl沈  
澱による他核種の除去, 第4段階でTIOA/キシレン抽出を行う。本分析  
法の化学収率は約70%であった  
CC MB02030K, CC03080N (614.73:614.876, 543.4/.51:614.777)  
KW 放射性トレーサ法; 海水; テクネチウム99m; 陰イオン交換樹脂; ルテニ  
ウム; 共沈; 溶媒抽出; 定量分析; 放射能汚染; 水質汚濁; 水質試験  
FT [テクネチウム99]

---

CN 89A0578330, C89351724  
TI EDXRFと各種の放射性同位体励起による種々のマトリックス中のウランの定量分析  
ET Determination of uranium in various matrices using EDXRF and excitation by different radionuclides.  
AU HOFFMANN P, PILZ N, LIESER K H (Technische Hochschule Darmstadt, Darmstadt, DEU)  
JN B0949B (JRNC) (0236-5731) J Radioanal Nucl Chem  
VN VOL. 132, NO. 1 PAGE. 121-129 1989  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写真4, 表3, 参9)  
AB エネルギー分散型蛍光X線分析法 (EDXRF) と<sup>109</sup>Cd, <sup>241</sup>Am, <sup>57</sup>Co, <sup>133</sup>Baおよび<sup>192</sup>Irを励起源とする蛍光X線分析法によってウランの定量分析を行った。定量分析に影響を与える重なる因子は試料の組成, 粒度, ウランの濃度および共存する元素である。最小検出感度はRbとMoを含む粉末試料で50, 水溶液で10, Puを含む水溶液で50ppmであった  
CC CC03022H (543.4/.51:546-121)  
KW エネルギー分散型蛍光X線分析; ウラン; 定量分析; アメリシウム同位体; カドミウム同位体; コバルト同位体; バリウム同位体; イリジウム同位体  
FT [アメリシウム241; カドミウム109; コバルト57; バリウム133; イリジウム192]

---

CN 90A0135779, C90021224, N90010128  
TI 環境試料中のアメリシウム-241を放射能測定により定量する方法の評価  
ET Evaluation of methods for the radiometric measurement of americium-241 in environmental samples.  
AU LIVENS F R, SINGLETON D L (Inst. Terrestrial Ecology, Cumbria, GBR)  
JN A0392A (ANALA) (0003-2654) Analyst  
VN VOL. 114, NO. 9 PAGE. 1097-1101 1989  
CI (A) (a1) (EN) (GBR) (写真3, 表5, 参34)  
AB 一連の土試料中にかなりの量のマンガン (約7000ppm) が存在すると, 土試料や環境試料中のアメリシウム-241を定量するために確立された方法は, 正確な結果を与えない。これに対する別の方法を模索し, より確実な方法を開発し, それを最適化することになった。すなわち試料を酸分解し, 鉄を溶媒抽出し, プルトニウム同位体を陰イオン交換分離した後, マンガンを陽イオン交換により除去した。希土類元素とアメリシウムは, 水酸化鉄 (III) で共沈し, 硝酸-メタノール中で陰イオン交換によって分離し, 残留不純物を硝酸中での陰イオン交換により除去した。これら操作により化学収率は著しく改良され, 標準試料の分析値は好結果を与えた  
CC CC06100H, FB04040C (543.52/.53 OTHERS, 631.41/.42)  
KW 環境汚染; アメリシウム同位体; 放射能測定; 土; 土壌分析; 妨害成分; 溶媒抽出; イオン交換; 共沈; 収率; 標準物質; 放射化学的分離; 定量分析; こん跡分析; 痕跡量成分; 放射化学分析  
FT [アメリシウム241]

---

CN 90A0253454, G90172756, N90090431  
TI ニュージーランドのスペレオセムからのラドン放出  
ET Radon escape from New Zealand speleothems.  
AU LYONS R G, CROSSLEY P C (Univ. Auckland, Auckland, NZL); DITCHBURN R G, MCCABE W J, WHITEHEAD N (Inst. Nuclear Sciences, Dep. Scientific and Industrial Research, Lower Hutt, NZL)  
JN C0201A (IJARA) (0883-2889) Int J Radiat Appl Instrum Part A  
VN VOL. 40, NO. 10/12 PAGE. 1153-1158 1989  
CI (A) (a1) (EN) (GBR) (写図3, 表4, 参8)  
AB 環境放射線の吸収線量を評価するために、ウラン系列の崩壊の途中でラドンが試料からどの程度放出されるかを知る必要がある。スペレオセムのウラン、トリウム、プロトアクチニウム、ポロニウムの定量分析を行った。多くの試料はラドンの放出をゼロと評価して良いことを示した  
CC MC03011P (621.039.86)  
KW ウラン-トリウム-鉛法年代測定; 放射能放出; 放射能測定; ラドン同位体; ウラン235; ウラン238; トリウム232; アルファ粒子検出; 線量率; 環境放射線; 同位体分離; 時間依存性; 陸水成堆積物; 炭酸カルシウム; 放射性崩壊; 環境放射性核種移動; ポロニウム同位体; 吸収線量; プロトアクチニウム同位体; 定量分析; ラドン222  
FT [ラドン210; ラドン220; トリウム230; ポロニウム210; プロトアクチニウム231]

---

CN 90A0348014, C90161218, K90062130, N90062047  
TI 土壌中長寿命放射性よう素の分布と挙動  
ET Distribution and behavior of long-lived radioiodine in soil.  
AU SEKI R, KIMURA E, TAKAHASHI T, IKEDAN (Univ. Tsukuba, Ibaraki, JPN)  
JN B0949B (JRNC) (0236-5731) J Radioanal Nucl Chem  
VN VOL. 138, NO. 1 PAGE. 17-31 1990  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写図8, 表4, 参13)  
AB 日本における<sup>129</sup>Iの土壌中濃度を中性子放射化分析法で定量した。放射化前の酸分解、よう素の蒸留と放射化後のイオン交換分離と溶媒抽出を行なった。安定核種のよう素、<sup>137</sup>Csの濃度分布も同時に調べた。茨城、福井、福島、長崎県土壌表面で $10^{-7} \sim 10^{-5}$  Bq/gの<sup>129</sup>Iを認めた。深さ方向の分布は他の核種が表土に留まるにも拘らず比較的早く浸透することを認めた  
CC MB02030K, CC06100H (614.73:614.876, 543.52/.53 OTHERS)  
KW よう素同位体; 土; 中性子照射; 放射化分析; 環境汚染; 定量分析; イオン交換; 溶媒抽出; セシウム137; 環境放射性核種移動; 土壌分析; 土壌物質動態  
FT [よう素129]

---

CN 90A0348018, C90161219, K90062132, N90062049  
TI インド都市住民のウラン日常摂取量  
ET Daily intake of uranium by urban Indian population.  
AU DANG H S, PULLAT V R, JAISWAL D D, PARAMESWARAN M, SUNTA C M (Bhabha Atomic Research Centre, Bombay)  
JN B0949B (JRNCD) (0236-5731) J Radioanal Nucl Chem  
VN VOL. 138, NO. 1 PAGE. 67-72 1990  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (表4, 参10)  
AB 中性子放射化分析と放射化学的分離法を用いて食料品, 飲料水, 空気試料を分析しインド都市住民の $^{238}\text{U}$ の日常摂取量を推定した。食料品から $0.55\mu\text{g}$ , 飲料水 $0.09\mu\text{g}$ , 空気中 $0.01\mu\text{g}$ で食料品から取込みが最大である。インド国民平均のウラン摂取量は食事構成から算出して $2.2\mu\text{g}$ であり, 都市住民の3.5倍であった。これは穀類からの摂取量が大きいためである  
CC MB02030K, CC06100H, CB10010V (614.73:614.876, 543.52/.53 OTHERS, 541.28)  
KW ウラン238; 定量分析; 放射化学分析; 中性子照射; 放射化分析; 取込; インド; 環境汚染; 食品汚染

---

CN 90A0348022, C90161086, N90060290  
TI ICP-イオン源マススペクトロメトリーによる骨灰中ThとUの定量  
ET Determination of Th and U in bone ash by ICP-ion source mass spectrometry.  
AU KAWAMURA H, IGARASHI Y, SHIRAISHI K (National Inst. Radiological Sciences, Ibaraki, JPN)  
JN B0949B (JRNCD) (0236-5731) J Radioanal Nucl Chem  
VN VOL. 138, NO. 1 PAGE. 103-109 1990  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写図2, 表3, 参12)  
AB NIRS-GT-1ヒト骨灰とNBSSRM-4351ヒト肺試料を酸で分解後希釈して直接ICP-マススペクトルを測定した。 $^{232}\text{Th}$ と $^{238}\text{U}$ の濃度を定量した。 $\alpha$ 線放射能から定量したNBSS試料の保証値と結果は良く一致した。NIRS骨灰中Thは $172\pm 16\text{ng/g}$ , Uは $60\pm 5.4\text{ng/g}$ であることを示した  
CC CC03013N, CB10010V, MB02020Z (543.51, 541.28, 613.648:614.89)  
KW トリウム232; ウラン238; 灰; 肺; 定量分析; 骨; ICP-MS分析; ヒト; 環境汚染; 放射能汚染

---

CN 90A0348032, C90170895, K90062155, N90062070  
TI 環境試料中の<sup>129</sup>Iの低レベル測定  
ET Low level measurements of <sup>129</sup>I in environmental samples.  
AU KATAGIRI H, NARITA O, YAMAMOTO A, KINOSHITA M (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corp., Ibaraki-Ken, JPN)  
JN B0949B (JRNC) (0236-5731) J Radioanal Nucl Chem  
VN VOL. 138, NO. 1 PAGE. 187-192 1990  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写図4, 表1, 参7)  
AB 土壌試料中の<sup>129</sup>Iを定量するため, 試料を1000℃に加熱し活性炭で捕集し, 抽出, PdI<sub>2</sub>沈澱で精製し, よう素として回収する方法を開発した。回収したよう素を原子炉照射し生成する<sup>126</sup>I, <sup>130</sup>Iを照射後分離精製してγ線スペクトル法で定量し<sup>127</sup>I, <sup>129</sup>I濃度を求めた。本法の精度は標準偏差で6%であった  
CC MB02030K, CB10010V (614.73:614.876, 541.28)  
KW 放射能汚染; 環境汚染; よう素同位体; 土; 活性炭; 溶媒抽出; パラジウム; 中性子照射; ガンマ線スペクトル; 微量分析; 定量分析  
FT [よう素129; よう素127]

---

CN 90A0348708, K90060462, N90060417  
TI 液体シンチレーション計数法によるαおよびβ放射核種の同時定量分析  
ET Simultaneous determination of alpha and beta-emitting nuclides by liquid scintillation counting.  
AU YANG D, ZHU Y (Tsinshua Univ. Beijing, CHN); MOEBIUS S, KELLER C (Nuclear Research Centre, Karlsruhe, DEU)  
JN B0949B (JRNC) (0236-5731) J Radioanal Nucl Chem  
VN VOL. 144, NO. 1 PAGE. 63-71 1990  
CI (A) (a2) (EN) (NLD) (写図3, 表1, 参6)  
AB 液体シンチレーション検出器に多チャンネル分析装置とパルス形状解析装置をつけ, <sup>241</sup>Am, <sup>210</sup>Po, <sup>144</sup>Ce/Pr, <sup>106</sup>Ru/Rhの水溶液をInstant Sint-Gelに加えてαおよびβ放射核種の測定を行った。α放射体に対する効率 は事実上100%, β放射体の識別は99.99%以上であった  
CC CC06080I (543.52/.53:614.777)  
KW 液体シンチレーション検出器; アルファ粒子検出; ベータ粒子検出; アメリカシウム同位体; ポロニウム同位体; セリウム同位体; プラセオジム同位体; ルテニウム同位体; ロジウム同位体; ジルコニウム同位体; ニオブ同位体; 定量分析; アルファ崩壊; ベータ崩壊; イオン放出; 電子放出; 水溶液; 液体シンチレータ  
FT [アメリカシウム241; ポロニウム210; セリウム144; プラセオジム144; ルテニウム106; ロジウム106; ジルコキウム95; ニオブ95]

---

- CN 90A0854624, C91070980, K91031820, N91030257  
 TI ネプツニウム発見50周年記念祭に寄せて 溶液中のネプツニウム化学  
 ET On the occasion of the fiftieth anniversary of neptunium discovery. Chemistry of neptunium in solution.  
 AU NIESE U (Central Inst. Nuclear Research Rossendorf, Academy of Sciences of the GDR, Dresden)  
 JN E0154B (IPRAX) (0021-1915) Isotopenpraxis  
 VN VOL. 26, NO. 8 PAGE. 352-355 1990  
 CI (A) (b1) (EN) (DDR) (参87)  
 AB Npの発見に至る歴史及びその溶液化学について概観した。Np核種として重要な $^{237}\text{Np}$ 及び $^{238}\text{Np}$ の生成核反応, 自然界におけるNpの存在, Npの酸化状態, Np錯体, 陽イオン-陽イオン間相互作用, Npの分析化学, 環境中のNp, 原子力におけるNpの利用などについて論述した。mgあるいは $\mu\text{g}$ 量Npの定量分析に果たす電気化学及び分光化学的方法の役割を強調した  
 CC CB10010V, MB02030K (541.28, 614.73:614.876)  
 KW ネプツニウム同位体; 酸化還元反応; 中性子捕獲; ウラン238; ウラン235; プルトニウム239; ベータマイナス崩壊; 環境放射線; 水溶液; 環境放射性核種移動; 元素分析; 定量分析; 酸化ネプツニウム; 原子力電池; 核分裂生成物; 放射能測定; 放射性物質取扱; ネプツニウム錯体; 金属イオン; 多価イオン; イオン間相互作用  
 FT [ネプツニウム237; ネプツニウム238; ウラン237; ウラン236; ウラン239; ネプツニウム239; プルトニウム240; アメリシウム240; アメリシウム241; ネプツニウム235; ネプツニウム236]
- 

- CN 90A0884149, K91021864, N91021832  
 TI アルコール飲料中の $^{14}\text{C}$ の定量分析  
 ET Determination of  $^{14}\text{C}$  in alcoholic beverages.  
 AU SCHOENHOFER F (Federal Inst. Food Control and Research, Wien, AUT)  
 JN A0226A (RACAA) (0033-8222) Radiocarbon  
 VN VOL. 31, NO. 3 PAGE. 777-784 1989  
 CI (A) (a1) (EN) (USA) (写真5, 表1, 参12)  
 AB 超低レベル液体シンチレーションカウンタを用い, バイアル, カクテル, 混合比, エタノール濃度について計数条件を最適化して, エタノール中の $^{14}\text{C}$ を簡易に迅速定量する方法を開発した。オーストリア産ワインに適用して, トリチウムの測定結果と比較した。この方法をワインの年代測定に適用するには過去40年間のワインについてさらに詳しく研究する必要がある  
 CC MB02030K (614.73:614.876)  
 KW 炭素14; ぶどう酒; エタノール; 液体シンチレーション検出器; 検出限界; 三重水素; 放射性炭素法年代測定; 環境放射線; 放射能汚染; 放射能測定; 放射線監視; 濃度測定; 定量分析
-

- CN 91A0037841, C91130864, K91050916, N91050453  
 TI プルトニウム, ストロンチウム, ウラン, 鉄核種の放射化学的同時定量と大気およびエアロゾル試料への応用  
 ET Simultaneous radiochemical determination of plutonium, strontium, uranium, and iron nuclides and application to atmospheric deposition and aerosol samples.  
 AU ROSNER G, HOETZL H, WINKLER R (GSF-Inst. Strahlenschutz, Neuherberg, DEU)  
 JN E0425A (ZACFA) (0937-0633) Fresenius J Anal Chem  
 VN VOL. 338, NO. 5 PAGE. 606-609 1990  
 CI (A) (a1) (EN) (DEU) (写真1, 表2, 参24)  
 AB 大気試料中の標記放射性核種を単一の陰イオン交換カラムで分離し定量する方法を検討した。陰イオン交換カラムとしてBio Rad AG1-X4を用いた。核種は分離後, 精製しPu, Uは $\alpha$ 線計数管, Srは低レベル $\beta$ 線比例計数管, FeはSi(Li)計数管によるX線分光法でそれぞれ測定した。本法での化学収率はPu $70 \pm 20$ , Sr $80 \pm 15$ , U $80 \sim 90$ , Fe $75 \pm 10\%$ であった。チェルノブイリ事件後ノイエルベルグで捕集して浮遊粉じん中の放射性核種は $^{239+240}\text{U}$  2.58,  $^{238}\text{Pu}$  1.40,  $^{235}\text{U}$  0.65,  $^{234}\text{U}$  0.67,  $^{90}\text{Sr}$  7600,  $^{55}\text{Fe}$  990  $\mu\text{Bgm}^{-3}$ であった  
 CC CC06060M, CB11030Y, MB02030K, CC06022C (543.52/.53:614.71/.73, 541.182.2/.3, 614.73:614.876, 543.52/.53:546-121)  
 KW 放射性同位体; プルトニウム同位体; ストロンチウム90; ウラン同位体; 鉄同位体; 放射化学分析; 大気汚染質; 大気質試験; エアロゾル; 陰イオン交換樹脂; 定量分析; 同時分析; X線スペクトル; 懸濁物質; 塵あい
- 

- CN 91A0086183, G91072368, N91030430  
 TI 国際放射性炭素相互比較の全第3段階の概観  
 ET An overview of all three stages of the international radiocarbon intercomparison.  
 AU SCOTT E M, AITCHISON T C (Glasgow Univ., Glasgow, GBR); HARKNESS D D (NERC Radiocarbon Lab., Glasgow, GBR); COOK G T, BAXTER M S (Scottish Univ Research and Reactor Centre, Glasgow, GBR)  
 JN A0226A (RACAA) (0033-8222) Radiocarbon  
 VN VOL. 32, NO. 3 PAGE. 309-319 1990  
 CI (A) (b2) (EN) (USA) (写真9, 表5, 参3)  
 AB 国際協力研究では広範囲の試料および年代が含まれており, 完成時には独立に各段階について評価した。第3段階の研究および全体の操作および各過程における不確実性を概観した  
 CC MC03011P (621.039.86)  
 KW 放射性炭素法年代測定; 炭素14; 再現性; 測定精度; 定量分析; 放射能測定; 放射能; 誤差解析; 測定誤差; 系統誤差; 比例計数管; 質量分析; 液体シンチレーション検出器; 前処理; 試料調製; データ解析; 国際協力; プロジェクト; 不確実性
-

CN 91A0086192, G91072373, K91031854, N91030093, P91061339  
TI 時間分解液体シンチレーション計数  
ET Time-resolved liquid scintillation counting.  
AU KESSLER M (Packard Instrument Co., Connecticut)  
JN A0226A (RACAA) (0033-8222) Radiocarbon  
VN VOL. 32, NO. 3 PAGE. 381-386 1990  
CI (A) (b2) (EN) (USA) (写図3, 表3)  
AB 年代測定用<sup>14</sup>Cおよび環境汚染測定用<sup>3</sup>H<sub>2</sub>Oの測定を行う研究者は、一般の液体シンチレーション検出器(LSA)を低レベル放射能定量用に改良した。特別時間分解3-Dスペクトロメータ(TR-LSC)では試料計数効率を大きく減少させることなく、バックグラウンドを減少させることができた  
CC AD08020J, MB02030K, MC03011P (539.1.073/.074, 614.73:614.876, 621.039.86)  
KW 液体シンチレーション検出器; 放射能測定; 放射性炭素法年代測定; 炭素14; 低レベル計数; トリチウム水; 環境放射線; 放射能汚染; 環境汚染; 定量分析; 時間分解分光法; バックグラウンド放射線; 検出限界; 標識化合物; ベンゼン; プラスチックシンチレーション検出器; プラスチックシンチレータ; 液体シンチレータ; 三重水素; 100-1000eV; 1-10keV; 10-100keV

---

CN 91A0389356, C91220847, K91081705, N91081872  
TI 高性能液体クロマトグラフィー分離後の同時レーザー誘起蛍光および熱レンズ分光法による希土類元素痕跡定量分析  
ET Rare-earth trace determination by simultaneous laser-induced fluorescence and thermal lensing spectroscopy after high performance liquid chromatography separation.  
AU DELORME N (CEA, Fontenay aux Roses, FRA)  
JN C0563A (RAACA) (0033-8230) Radiochim Acta  
VN VOL. 52/53, NO. Pt 1 PAGE. 105-110 1991  
CI (A) (a1) (EN) (DEU) (写図6, 表4, 参13)  
AB 地下水中の放射性同位体挙動の理解は、核廃棄物貯蔵所近くの放射性同位体移動モデルのために興味がある。地下水中のランタニドおよびアクチニドの場合には、極低レベルの酸化状態やその種形成を知る必要がある。同時検出法を開発し、実験装置を組立てた。NdおよびUの結果および将来について述べた  
CC CC01050S, MB02030K, MC01040R, CC03012W (543.21.05:543.544/.545, 614.73:614.876, 621.039.84 OTHERS, 543.42)  
KW こん跡分析; ネオジウム; ウラン; 微量元素; 元素分析; 定量分析; 高速液体クロマトグラフィー; レーザ蛍光分析; 熱レンズ分光法; 地下水; 環境放射性核種移動; 同時計測; 放射性廃棄物; ウラン同位体; 酸化; レーザ照射; 蛍光; 廃棄物処分; 貯蔵; 化学種; 廃棄物処分施設

---

CN 91A0115015, C91221223, N91080443  
TI 放射化学的中性子活性化分析による高純度モリブデン中のウラン, トリウム及び18の他の元素の定量  
ET Determination of uranium, Thorium, and 18 other elements in high-purity Molybdenum by radiochemical neutron activation analysis.  
AU THEIMER K-H, KRIVAN V (Univ. Ulm, Ulm/Donau, DEU)  
JN A0395A (ANCHA) (0003-2700) Anal Chem  
VN VOL. 62, NO. 24 PAGE. 2722-2727 1990  
CI (A) (a1) (EN) (USA) (写真5, 表5, 参46)  
AB 放射化学分離は20MHF/3% $H_2O_2$ 水溶液中のDowex 1×8カラムを使用して行った。ウラン及びトリウムに用いた指標放射性核種はそれぞれ $^{239}Np$ 及び $^{233}Pa$ である。同時にAg, Co, Crなどの18元素も定量した。検出限界は、ウランで4pg/g及びトリウムで40pg/gであった。Agなど他の18元素について検出限界は1pg/g-100ng/gの範囲であった  
CC CC06022C (543.52/.53:546-121)  
KW ウラン; トリウム; モリブデン; ネプツニウム同位体; プロトアクチニウム同位体; 中性子照射; 放射化分析; 超LSI; リチウム; ナトリウム; カリウム; マグネシウム; 不純物; 定量分析; 鉄

---

CN 91A0523043, K91101717, N91111105  
TI バックシブ型ビニル捕集器による露天ウラン鉱山の放射性塵あいの大気拡散についての研究  
ET Investigation of aerial dispersion of radioactive dust from an open-pit uranium mine by passive vinyl collectors.  
AU PETERSSON H B L (Lund University Teaching Hospital, Lund, SWE); KOPERSKI J (Ranger Uranium Mines P/L, N. T., AUS)  
JN B0373A (HLTPA) (0017-9078) Health Phys  
VN VOL. 60, NO. 5 PAGE. 681-690 1991  
CI (A) (a1) (EN) (USA) (写真8, 表3, 参20)  
AB オーストラリア最大の露天ウラン鉱山について、鉱石の採掘・粉碎と $^{238}U$ 系列の長寿命核種の大気拡散による空間分布との関係について調べた。試料採取にはバックシブ型粉じん捕集器を用い、 $\alpha$ ,  $\gamma$ スペクトル分析, 重量分析により比放射能を求め、拡散・輸送方程式に基づくモデルの結果と比較。水平方向移動流束, 乾式沈着, 再浮遊について50km範囲で調べ、それぞれの量について距離との関係関係を明らかにし、本鉱山が長寿命U系列核種の主要汚染源であることを述べた  
CC MD08030G, MB02030K (621.039.1:622, 614.73:614.876)  
KW オーストラリア北部; ウラン鉱山; 露天採掘; ウラン238; 娘核種; 放射能汚染; 呼吸域粉塵; 乾式粉碎; 大気拡散; 空間分布; 試料採取器; アルファ線スペクトル; ガンマ線スペクトル; 核分光法; 同位体分析; 重量分析; 放射率; 運動論的方程式; 拡散方程式; 数学モデル; 横方向  
FT [長寿命核種; Ranger鉱山]

---

CN 91A0524021, C92030983, K92021733, N92021803  
TI 長寿命放射性核種測定への高分解能誘導結合プラズマ質量分析計の応用  
ET Application of a High Resolution Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer to the Measurement of Long-lived Radionuclides.  
AU KIM C-K, SEKI R, MORITA S (Univ. Tsukuba, Tsukuba, JPN); YAMASAKI S, TSUMURA A (National Inst. Agro-Environmental Sciences, Ibaraki, JPN); TAKAKU Y (Marubun, Tokyo, JPN); IGARASHI Y (National Inst. Radiological Sciences, Ibaraki, JPN); YAMAMOTO M (Kanazawa Univ., Ishikawa, JPN)  
JN C0770C (0267-9477) J Anal At Spectrom  
VN VOL. 6, NO. 3 PAGE. 205-209 1991  
CI (A) (a1) (EN) (GBR) (写真5, 表3, 参16)  
AB 環境試料中の放射性核種を直接測定する予備実験として, HR-ICP-MSによる若干の長寿命放射性核種 ( $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ) の高感度測定法を記述。超音波噴霧器を併用した上記分析法による核種の検出限度は0.002~0.02 pg/mlで, 超音波噴霧器を併用しない場合よりも10倍も高感度である。また, HR-ICP-MSによればイオン透過効率が高いために計数統計値が向上し, 被検質濃度が低い側では四重極ICP-MSによる場合よりも正確な同位体データを得ることができる。 $^{240}\text{Pu}$ : $^{239}\text{Pu}$ 同位体比の測定結果も比較した  
CC CC03013N, MB02030K (543.51, 614.73:614.876)  
KW ICP-MS分析; 放射性同位体; トリウム232; プルトニウム239; テクネチウム99m; ラドン同位体; ウラン238; ネプツニウム同位体; 環境汚染; 高分解能; 定量分析; 検出限界; こん跡分析; 痕跡量成分

---

CN 91A0531926, C91260812, N91100317, P91190717  
TI 水素とヘリウム同位体の混合気体分析用オメガトロン型高分解能質量分析計の応用  
ET Application of an omegatron type high resolution mass spectrometer for the analysis of mixtures of hydrogen and helium isotopes.  
AU ENGELMANN U, GLUGLA M, PENZHORN R-D, ACHE H J (Kernforschungszentrum Karlsruhe, Karlsruhe, DEU)  
JN D0208B (NIMRD) (0168-9002) Nucl Instrum Methods Phys Res Sect A  
VN VOL. 302, NO. 2 PAGE. 345-351 1991  
CI (A) (a1) (EN) (NLD) (写真7, 表1, 参15)  
AB 水素同位体 $\text{H}_2$ , HD, HT,  $\text{D}_2$ , DT,  $\text{T}_2$ と安定ヘリウム同位体 $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$ を含む混合気体をオメガトロンで分析した。この装置によって $^3\text{He}^+$ と $\text{T}^+$ を除く全ての水素/ヘリウム同位体イオンを分離出来た。真空計とオメガトロンを組み合わせると, 極めて低い濃度の試料で測定ができ, メモリ効果が非常に低く, 運転が簡単, 費用も少ない  
CC BD02060M, MC01040R (621.384.8, 621.039.84 OTHERS)  
KW 質量分析計; 混合気体; サイクロトロン共鳴; 高分解能分光法; 定量分析; 圧力依存性; イオン伝導; 質量スペクトル; 重水素; 三重水素; 水素; ヘリウム3; ヘリウム4; 電離真空計; 分子ビーム; アルファ粒子ビーム; 三重陽子ビーム; 重陽子ビーム; ヘリウム3ビーム

---

CN 91A0532589, K91091779, N91101897  
TI 誘導結合プラズマ質量分析法による海洋生物中の<sup>238</sup>Uの定量  
ET Determination of <sup>238</sup>U in Marine  
Organisms by Inductively Coupled  
Plasma Mass Spectrometry.  
AU 石井紀明, 中原元和, 松葉満江, 石川昌史 (放医研)  
JN F0898A (NSUGA) (0021-5392) 日本水産学会誌  
VN VOL. 57, NO. 5 PAGE. 779-787 1991  
CI (A) (a1) (JA) (JPN) (写図2, 表9, 参11)  
AB 海洋生物55種中の<sup>238</sup>Uの定量に誘導結合プラズマ質量分析法が適用され  
た。動物試料中の<sup>238</sup>U濃度は生重量あたり0.076~5000 ng/g  
であり, 生物の種類や組織の違いによって大きな濃度差が観察された。特に  
頭足類のエラ心臓は<sup>238</sup>Uを高濃度に蓄積する特異的濃縮器官であることが  
分った。最も高い<sup>238</sup>U濃度を示したマダコのエラ心臓の濃縮係数は, 沿岸  
水の<sup>238</sup>U濃度(3.2±0.2 ng/ml)との比から約10<sup>3</sup>と計算され  
た。海藻20種における<sup>238</sup>U濃度は乾燥重量あたり10~3700 ng/  
gの範囲にあった。(同所抄録)  
CC MB02030K (614.73:614.876)  
KW 海洋生物; ウラン238; ICP-MS分析; 放射線障害; 定量分析; 生体  
組織; 種差; 生体内蓄積; マダコ; えら; 心臓; 海藻  
FT [Octopus vulgaris]

---

CN 91A0882916, J92040519, N92030347  
TI 放射化学中性子放射化分析法による高純度二酸化ケイ素中の極微量ウラン及  
びトリウムの定量  
ET Radiochemical neutron activation  
analysis for ultratrace uranium  
and thorium in high purity silica.  
AU 岡田往子, 平井昭司 (武蔵工大 原子力研)  
JN F0008A (BNSKA) (0525-1931) 分析化学  
VN VOL. 40, NO. 10 PAGE. 549-555 1991  
CI (A) (a1) (JA) (JPN) (写図6, 表4, 参9)  
AB 半導体材料となる高純度SiO<sub>2</sub>中のUとThを陰イオン交換分離法及び共  
沈分離法を伴う放射化学中性子放射化分析法により数pptレベルまで定量  
する方法を開発した。本法はU及びThの分析目的核種である<sup>239</sup>Np及び<sup>235</sup>Pa  
をまず陰イオン交換樹脂に吸着させ, 主な不純物を選択的に分離し,  
溶離した後LaF<sub>3</sub>の共沈で<sup>239</sup>Npと<sup>235</sup>Paとを沈殿させ, わずかな不純  
物からの分離を行った。その後ろ紙に捕集した沈殿物のγ線測定をし, U及  
びThの数pptレベルの分析を可能にした。回収率はUで99%, Thで  
96%と良く, 繰り返し分析でも良い再現性を得た。試料を数gに増加し,  
照射時における放射化量の均一性を調べたが, 影響なく分析できることが分  
かった  
CC CC06022C (543.52/.53:546-121)  
KW 中性子照射; 放射化分析; ウラン; トリウム; シリカ; 陰イオン交換; 陰イ  
オン交換樹脂; 半導体材料; ネプツニウム同位体; プロトアクチニウム同位  
体; 吸着; こん跡分析; 痕跡量成分; 定量分析

---

- CN 92A0208440, N92082036
- TI テトラメチレンジチオカルバミン酸アンモニウムとの錯体生成によるテクネチウム-99のクロロホルムへの抽出とその方法の低レベル放射性廃棄物中のテクネチウム-99の定量への応用
- ET Extraction of technetium-99 by complexation with ammonium tetramethylenedithiocarbamate into chloroform and its application to the determination of technetium-99 in low-level radioactive wastes.
- AU CHIU J-H, CHU T-C, WENG P-S (National Tsing Hua Univ., Hsinchu, TWN)
- JN A0394A (ACACA) (0003-2670) Anal Chim Acta
- VN VOL. 256, NO. 2 PAGE. 293-299 1992
- CI (A) (a1) (EN) (NLD) (表8, 参27)
- AB 塩酸溶液から,  $^{99m}\text{TcO}_4^-$  のテトラメチレンジチオカルバミン酸アンモニウム (APDC) とのキレート錯体のクロロホルムへの抽出について研究した。抽出効率に影響する水相の酸性度, APDCの濃度, 振とう時間, 水相と有機相の容積比, 逆抽出, 稀塩酸溶液中の  $^{99m}\text{Tc}$  イオンの電荷, 親脂質性及び錯体の安定性のようなパラメータ並びに多数の干渉放射性核種の抽出条件を検討した。最適条件は低レベル放射性廃棄物中の  $^{99}\text{Tc}$  の定量に応用した。評価のための内標準トレーサとして  $^{99m}\text{Tc}$  を利用し, 低レベル放射性廃棄物試料中の  $^{99}\text{Tc}$  の回収率は90%以上, 共存する大部分の放射性核種の抽出係数は  $10^5$  以上であった。0.005kgの試料中の  $^{99}\text{Tc}$  の検出限界は100minのカウント間隔で,  $4.2\text{Bq kg}^{-1}$  ( $0.11\text{pCi g}^{-1}$ ) であった
- CC CC07010Q, MB05000Y (543.21/.24, 621.039.7)
- KW テクネチウム99m; 溶媒抽出; テクネチウム錯体; ピロリジン; ジチオカルバミド酸塩; アンモニウム化合物; 放射性廃棄物; 内部標準法; 標準物質; 定量分析; 検出限界; 放射性トレーサ法; 錯体生成; クロロホルム; 重量分析

- CN 92A0351590
- TI チェルノブイリの事故の後に北ドイツの土壤中に堆積した放射性同位体の移動速度
- ET Migration Rates of Radionuclides Deposited After the Chernobyl Accident in Various North German Soils.
- AU KIRCHNER G, BAUMGARTNER D (Univ. Bremen, Bremen, DEU)
- JN A0392A (ANALA) (0003-2654) Analyst
- VN VOL. 117, NO. 3 PAGE. 475-479 1992
- CI (A) (a1) (EN) (GBR) (写図6, 表3, 参20)
- AB チェルノブイリの事故の3年以上後に採取した3種類の北ドイツの土壤中の  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  および  $^{239+240}\text{Pu}$  の分布を測定した。コンパートメントモデルで計算した結果, 核兵器とチェルノブイリフォールアウトに由来するCsの移動速度に差は認められず, 土壤中のCsは3年間で吸着平衡に達していることなどが分かった
- CC CC03012W, FB04040C, MB02030K, MD06010W (543.42, 631.41/.42, 614.73:614.876, 621.039.58)
- KW ストロンチウム90; セシウム137; セシウム同位体; プルトニウム239; プルトニウム同位体; 放射性同位体; 土壌分析; ガンマ線スペクトル; 分光分析; ドイツ; フォールアウト; 吸着平衡; 同位体分析; 定量分析; 環境汚染; 環境放射性核種移動; 核兵器; 原子炉事故; 放射能汚染
- FT [Chernobyl-4原子炉]