

# 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

平成8年改訂

文 部 科 学 省

## 放射線審議会測定部会の委員及び専門委員

委員(部会長)	岩	島	清	株式会社 環境管理センター
	池	田	正道	社団法人 日本アイソトープ協会
	岩	崎	民子	財団法人 放射線影響協会
	田	村	浩一郎	電子技術総合研究所
	寺	尾	允男	国立衛生試験所
	中	田	啓	動力炉・核燃料開発事業団
	備	後	一義	日本原子力研究所

専門委員	阿	部	史朗	放射線医学総合研究所
	岡	野	眞治	財団法人 放射線影響協会
	阪	上	正信	金沢大学 名誉教授
	戸	田	誠	海上保安庁水路部
	廣	瀬	勝己	気象庁気象研究所
	深	津	弘子	財団法人 日本分析センター
	丸	山	隆司	財団法人 放射線影響協会
	大	和	愛司	動力炉・核燃料開発事業団
	吉	田	勝彦	水産庁中央水産研究所

(敬称略・五十音順)

特定物質の規制等によるオゾン層の保護に関する告示により、試薬等の一部を改訂した。本分析法の一部改訂にあたっては、下記委員の方々に協力を得た。

池	田	長	生	社団法人 日本アイソトープ協会
白	石	文	夫	立教大学
杉	山	広	和	岡山県環境保健センター
関	根	敬	一	日本原子力研究所
山	崎	慎	一	農林水産省農業科学技術研究所
山	本	政	儀	金沢大学
渡	辺		均	動力炉・核燃料開発事業団

(敬称略・五十音順)

# 目 次

序 論 .....	1
対象核種、測定法と分析目標値 .....	2
分析対象核種の核データ一覧表 .....	3
試薬の調製法 .....	4
イオン交換樹脂のコンディショニング .....	10
略号一覧 .....	11
I. チェレンコフ光測定による放射性ストロンチウム及び放射性セリウム分析法	
第1章 放射性ストロンチウムの分析 .....	15
1.1 海 水 .....	15
1.1. A イオン交換法 .....	16
1.1. A.1 試薬及び装置 .....	16
1.1. A.2 分析操作 .....	17
1.1. A.3 標準線源の作製 .....	24
1.1. A.4 安定ストロンチウムの定量 .....	25
1.1. A.5 放射能測定 .....	27
1.1. A.6 計 算 .....	28
1.1. B シュウ酸塩法 .....	30
1.1. B.1 試薬及び装置 .....	30
1.1. B.2 分析操作 .....	31
1.1. B.3 標準線源の作製 .....	39
1.1. B.4 安定ストロンチウムの定量 .....	39
1.1. B.5 放射能測定 .....	39
1.1. B.6 計 算 .....	39
1.2 海産生物、穀類、野菜類、牛乳、ドライミルク .....	40
1.2. A イオン交換法 .....	40
1.2. A.1 試薬及び装置 .....	40
1.2. A.2 分析操作 .....	40

1.2. A. 3	標準線源の作製 .....	47
1.2. A. 4	安定ストロンチウムの定量 .....	47
1.2. A. 5	放射能測定 .....	48
1.2. A. 6	計 算 .....	48
1.2. B	シュウ酸塩法 .....	50
1.2. B. 1	試薬及び装置 .....	50
1.2. B. 2	分析操作 .....	50
1.2. B. 3	標準線源の作製 .....	50
1.2. B. 4	安定ストロンチウムの定量 .....	50
1.2. B. 5	放射能測定 .....	50
1.2. B. 6	計 算 .....	50
1.2. C	溶媒抽出法 .....	57
1.2. C. 1	試 薬 .....	57
1.2. C. 2	分析操作 .....	57
1.2. C. 3	標準線源の作製 .....	63
1.2. C. 4	回収されたイットリウムの定量 .....	63
1.2. C. 5	放射能測定 .....	63
1.2. C. 6	計 算 .....	63
1.3	土 壤 .....	65
1.3. A	イオン交換法.....	65
1.3. A. 1	試薬及び装置 .....	65
1.3. A. 2	分析操作 .....	65
1.3. A. 3	標準線源の作製 .....	73
1.3. A. 4	安定ストロンチウムの定量 .....	73
1.3. A. 5	放射能測定 .....	74
1.3. A. 6	計 算 .....	74
1.3. B	シュウ酸塩法 .....	75
1.3. B. 1	試薬及び装置 .....	75
1.3. B. 2	分析操作 .....	75

1.3. B.3	標準線源の作製	82
1.3. B.4	安定ストロンチウムの定量	82
1.3. B.5	放射能測定	82
1.3. B.6	計 算	82
第2章	放射性セリウムの分析	83
2.1	海 水	83
2.1.1	試 薬	83
2.1.2	分析操作	84
2.1.3	標準線源の作製	94
2.1.4	放射能測定	94
2.1.5	計 算	95
2.2	海産生物	96
2.2.1	試 薬	96
2.2.2	分析操作	97
2.2.3	標準線源の作製	105
2.2.4	放射能測定	105
2.2.5	計 算	105
2.3	海底堆積物	106
2.3.1	試 薬	106
2.3.2	分析操作	107
2.3.3	標準線源の作製	116
2.3.4	放射能測定	116
2.3.5	計 算	116
第3章	チェレンコフ光による $\beta$ 線測定法	117
3.1	チェレンコフ光測定	117
3.2	測定機器及び測定法の概要	118
3.3	チェレンコフ光測定用標準線源	118
3.4	$\beta$ 線測定条件の設定	119
3.5	チェレンコフ光による $\beta$ 線測定	120

## II. 液体シンチレーション測定（ $\beta$ 線）による放射性コバルト及び放射性ヨウ素の分析法

第1章 放射性コバルトの分析 .....	123
1.1 海 水 .....	123
1.1.1 試 薬 .....	123
1.1.2 分析操作 .....	124
1.1.3 標準線源の作製 .....	128
1.1.4 放射能測定 .....	128
1.1.5 計 算 .....	129
1.2 海産生物 .....	130
1.2.1 試 薬 .....	130
1.2.2 分析操作 .....	131
1.2.3 標準線源の作製 .....	136
1.2.4 放射能測定 .....	136
1.2.5 計 算 .....	136
1.3 海底堆積物 .....	137
1.3.1 試 薬 .....	137
1.3.2 分析操作 .....	137
1.3.3 標準線源の作製 .....	142
1.3.4 放射能測定 .....	142
1.3.5 計 算 .....	142
第2章 放射性ヨウ素の分析 .....	143
2.1 原 乳 .....	143
2.1.1 試 薬 .....	143
2.1.2 分析操作 .....	144
2.1.3 標準線源の作製 .....	148
2.1.4 放射能測定 .....	148
2.1.5 計 算 .....	149

第3章 液体シンチレータによる $\beta$ 線測定法	150
3.1 測定機器及び測定法の概要	150
3.2 液体シンチレータ	151
3.3 標準線源とバックグラウンド用試料	152
3.3.1 クエンチング標準線源	153
3.4 $\beta$ 線測定条件の設定	154
3.5 クエンチング補正法	155
3.5.1 $\beta$ 線クエンチング補正曲線の作成	157
III. 液体シンチレーション測定 ( $\alpha$ 線) によるプルトニウムの分析法	
第1章 プルトニウムの分析	161
1.1 海 水	161
1.1.1 試 薬	161
1.1.2 分析操作	162
1.1.3 標準線源の作製	170
1.1.4 放射能測定	171
1.1.5 計 算	171
1.2 海産生物	172
1.2.1 試 薬	172
1.2.2 分析操作	172
1.2.3 標準線源の作製	178
1.2.4 放射能測定	178
1.2.5 計 算	178
1.3 海底堆積物	179
1.3.1 試 薬	179
1.3.2 分析操作	180
1.3.3 標準線源の作製	186
1.3.4 放射能測定	186
1.3.5 計 算	186

第2章 液体シンチレータによる $\alpha$ 線測定法	187
2.1 測定機器及び測定法の概要	187
2.2 液体シンチレータ	188
2.3 標準線源とバックグラウンド用試料	188
2.3.1 クエンチング標準線源	188
2.4 プルトニウム $\alpha$ 線の測定	188
2.5 $\alpha$ 線クエンチング補正曲線の作成	189
2.6 プルトニウム ( $^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ ) の測定	191

### 一般解説

解説1 液体シンチレーション測定法 (測定機器および測定法の概要)	195
解説2 コンピュータによるデータ処理	201
解説3 計数値の統計処理	202
解説4 分析目標値の算出	203

### Iの解説

解説I-1 放射性ストロンチウム及び放射性セリウム分析の実例	207
解説I-2 放射性ストロンチウムの分析法の選択	212
解説I-3 カルシウムを多量に含む試料に対する $^{89}\text{Sr}$ 及び $^{90}\text{Sr}$ の標準線源	214
解説I-4 $^{89}\text{Sr}$ 及び $^{90}\text{Sr}$ ( $^{90}\text{Y}$ ) のチェレンコフ光測定におけるカルシウムの影響	215
解説I-5 放射性セリウムの分析における回収率と除染係数について	216
解説I-6 放射性セリウムの測定について	219
解説I-7 連立方程式による複合核種の同時定量法	222
解説I-8 $^{89}\text{Sr}$ 及び $^{90}\text{Sr}$ の分析目標値の算出	225

### IIの解説

解説II-1 放射性コバルト及び放射性ヨウ素分析の実例	231
解説II-2 放射性コバルトの分析における除染係数について	235
解説II-3 放射性コバルトの測定における反同時計数回路を用いた時と用いない時の FOMの比較	237

解説Ⅱ-4	放射性コバルトの分析における酸化剤の種類について	239
解説Ⅱ-5	放射性コバルトの分析における添加する担体と回収率について	240
解説Ⅱ-6	放射性コバルトの分析における沈殿生成時のpHについて	242
解説Ⅱ-7	放射性コバルトの分析におけるイオン交換分離について	244
解説Ⅱ-8	$^{60}\text{Co}$ のクエンチング補正曲線	247
解説Ⅱ-9	放射性コバルトの分析における海底堆積物の処理について	248
解説Ⅱ-10	放射性ヨウ素の分析における回収率と除染係数について	250
解説Ⅱ-11	放射性ヨウ素の分析操作について	252
解説Ⅱ-12	$^{131}\text{I}$ のクエンチング補正曲線	255
解説Ⅱ-13	$\beta$ 線放射能絶対測定	256

### Ⅲの解説

解説Ⅲ-1	プルトニウム分析( $\alpha$ 線)の実例	261
解説Ⅲ-2	S C A 3点計数法による $\alpha$ ピーク中心とFWHMの算出	265
解説Ⅲ-3	$\alpha$ - $\beta$ 線波形弁別法について	267
解説Ⅲ-4	プルトニウムの分析におけるシンチレータについて	270
解説Ⅲ-5	プルトニウム、 $^{210}\text{Po}$ 及び $^{241}\text{Am}$ のエネルギースペクトルと ディスクリミネータの設定	271
解説Ⅲ-6	プルトニウムの分析における平均回収率について	276

### 参考文献

放射性ストロンチウムの分析	279
放射性セリウムの分析	280
放射性コバルトの分析	280
放射性ヨウ素の分析	281
プルトニウムの分析	282
液体シンチレーション測定法	285
$\alpha$ - $\beta$ 線波形弁別法	286

## 序 論

近年、原子力施設の拡充に伴い環境放射能モニタリングに関連する多くの放射性核種の測定が必要とされており、多試料を迅速かつ簡便に分析できる方法が望まれている。

この要求に対応できる測定法として、試料の調製が簡便であり、溶液状態での測定が可能で、しかも $\alpha$ 線及び $\beta$ 線に対して計数効率の高い液体シンチレーション測定法が最近注目されている。

本分析法は、環境放射能モニタリングで対象となる放射性核種の中から液体シンチレーション測定に適用できる核種を選択し、その分析法を確立したものである。

分析操作は主として『科学技術庁放射能測定法シリーズ』の中から液体シンチレーション測定に適合するように改良し、測定操作は測定条件の決定あるいはクエンチング補正曲線の作成法なども含めて、実用上十分活用できる内容とした。核種によっては液体シンチレータによる測定よりもむしろチェレンコフ光を測定した方が遙かに分析操作が簡略化される場合があり、このような核種についてはチェレンコフ光測定を採用することとした。

本分析法は、分析担当者にできるだけ便利になるよう、測定法を中心に、次のように構成した。

- I. チェレンコフ光による放射性ストロンチウム及び放射性セリウム分析法
- II. 液体シンチレーション測定 ( $\beta$ 線) による放射性コバルト及び放射性ヨウ素分析法
- III. 液体シンチレーション測定 ( $\alpha$ 線) によるプルトニウム分析法

この他に、本分析法の III. に基づきプルトニウムを分離し、II. に基づき $\beta$ 線を測定すれば、 $^{241}\text{Pu}$ の測定を行うこともできる。

対象核種、測定と分析目標値については表 1-1 に、分析対象核種の核データは表 1-2 に、また、測定及び分析に関する分析結果の解析など、参考となることは、付録及び解説に付記した。

表 1 - 1 対象核種、測定法と分析目標値

	対象核種	対象試料と供試量	分 析 法	測定法 (測定試料)	分析目標値*1	
放射性 ストロンチウム	$^{87}\text{Sr}$ および $^{90}\text{Sr}$	海水 2ℓ	イオン交換法	チェレンコフ光測定  (水溶液)	$^{87}\text{Sr}$	$^{90}\text{Sr}$
		10ℓ	シュウ酸塩法		0.04	0.02 Bq/ℓ
		海産生物 殻類・野菜 10g (灰)	イオン交換法 あるいは シュウ酸塩法		0.007	0.02 Bq/ℓ
		土壌 100g (乾土)			0.007	0.004 Bq/g 灰
	$^{90}\text{Sr}$	牛乳 10g (灰)	溶媒抽出法		—	0.4 Bq/g乾土 0.004 Bq/g
放射性セリウム	$^{144}\text{Ce}$	海水 20ℓ	溶媒抽出法	外部標準チャンネル比法による液体シンチレーション測定 $^{60}\text{Co}$ は水溶液+乳化シンチレータ $^{131}\text{I}$ はT i O A - キシレンによる液体シンチレータ	0.001	Bq/ℓ
		海産生物 20g (灰)			0.001	Bq/g 灰
		海底堆積物 50g (乾土)			0.6	Bq/kg 乾土
放射性コバルト	$^{60}\text{Co}$	海水 10ℓ	イオン交換法		0.006	Bq/ℓ
		海産生物 20g (灰)			0.003	Bq/g 灰
		海底堆積物100g (乾土)		0.6	Bq/kg 乾土	
放射性ヨウ素	$^{131}\text{I}$	原乳 4ℓ	イオン交換法 溶媒抽出法		0.01	Bq/ℓ
プルトニウム	$^{238}\text{Pu}$ + $^{239}\text{Pu}$ + $^{240}\text{Pu}$ の合計	海水 100 ℓ	イオン交換法	ピーク定量法による液体シンチレーション測定  {HDEHP抽出シンチレータ}	0.0001	Bq/ℓ *2
		海産生物 20g (灰)	溶媒抽出法		0.0007	Bq/g 灰*2
		海底堆積物 50g (乾土)			0.3	Bq/kg 乾土*2

\* 1 低バックグラウンド液体シンチレーション測定装置を用い、100分間測定で標準偏差の3倍を基準とした場合。

\* 2 平均収率を75%とした場合。

表1-2 分析対象核種の核データ一覧表

核種	半減期	崩壊式	E:MeV (%)	Er:MeV	Ir:%	IC:%	生成反応	$\sigma$ :バースン	E:MeV
$^{60}\text{Co}$	5.271y	$\beta$ -100%	$\beta^-$ 0.318 (99.92) 1.491 (0.08) $\bar{\beta}$ 0.0965	1.17324 1.33250	99.90 99.98		$^{59}\text{Co} (n, r)$ $^{60}\text{Ni} (n, p)$ $^{63}\text{Cu} (n, \alpha)$	17(2) 0.051(9) 0.050 $\sigma_c$ 6	thermal 14.0 14.6
$^{89}\text{Sr}$	50.5 d	$\beta$ -100%	$\beta^-$ 0.580 (0.001) 1.489 (99.99) $\bar{\beta}$ 0.573	0.9091 $\rightarrow (^{89\text{m}}\text{Y}$ を含む)	0.001		$^{88}\text{Sr} (d, p)$ $^{88}\text{Sr} (n, r)$ $^{89}\text{Y} (n, p)$ $^{92}\text{Zr} (n, \alpha)$	0.0058(4) 0.024(2) 0.0099(9)	144 143
$^{90}\text{Sr}$	29.12 y	$\beta$ -100%	$\beta^-$ 0.546 (100) $\bar{\beta}$ 0.196	$\rightarrow ^{90}\text{Y}$			fission		
$^{90}\text{Y}$	64.0 h	$\beta$ -100%	$\beta^-$ 0.518 (0.012) 2.279 (99.99) $\bar{\beta}$ 0.935	1.767		0.011	$^{89}\text{Y} (n, r)$ $^{87}\text{Rb} (\alpha, n)$ $^{89}\text{Y} (d, p)$ $^{90}\text{Sr} \rightarrow$ $^{90}\text{Zr} (n, p)$	1.28(2) 0.146(37) 0.18(2) 0.048(3)	13 9 14.3
$^{131}\text{I}$	8.04 d	$\beta$ -100%	$\beta^-$ 0.248 (2.1) 0.304 (0.6) 0.334 (7.4) 0.606 (89.4) 0.807 (0.4) $\bar{\beta}$ 0.183	0.08018 0.28430 0.36448 0.63697 0.72289 $\rightarrow ^{131\text{m}}\text{Xe}$	2.62 6.06 81.2 7.27 1.80	4.1 0.3 1.9	fission $^{130}\text{Te} (p, r)$ $^{130}\text{Te} (d, n)$ $^{131}\text{Xe} (n, p)$	0.00085 0.090(10) 0.0053	12 10 14.4
$^{144}\text{Ce}$	284.3 d	$\beta$ -100%	$\beta^-$ 0.182 (19.4) 0.235 (4.2)	0.03362 0.04089	0.29 0.40	1.39 1.11	fission		
$^{144}\text{Pr}$	17.28 m	$\beta$ -100%	$\beta^-$ 0.810 (0.98) 2.300 (1.06) 2.996 (98.0)	0.69649 1.48915 2.18570	1.34 0.27 0.70		$^{144}\text{Ce} \rightarrow$		
$^{238}\text{Pu}$	87.7 y	$\alpha$ 100%	$\alpha$ 5.456 (28.5) 5.499 (71.5)	0.04349 0.09987 0.15277	0.0394 0.0074 0.0010	28.6 0.13	$^{238}\text{Np} \rightarrow$ $^{242}\text{Cm} \rightarrow$ $^{239}\text{Pu} (n, 2n)$ $^{239}\text{Pu} (n, 2n)$	$\sigma_c$ 500 $\sigma_f$ 16.8 0.64(4) 0.42(5)	13.1 6.5
$^{239}\text{Pu}$	$2.413 \times 10^4$ y	$\alpha$ 100%	$\alpha$ 5.105 (11.5) 5.144 (15.1) 5.157 (73.3)	0.03869 0.05163 0.12928	0.0059 0.021 0.0062	2.5 9.0	$^{239}\text{Np} \rightarrow$	$\sigma_c$ 274 $\sigma_f$ 741	
$^{240}\text{Pu}$	6570 y	$\alpha$ 100%	$\alpha$ 5.124 (26.4) 5.168 (73.5)	0.04524 0.10423 0.16035	0.045 0.0070		multipl n-capt. from $^{238}\text{U}$ , $^{239}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu} (n, r)$ $^{239}\text{Pu} (n, r)$	$\sigma_c$ 286 $\sigma_f$ <0.08 268.8(30) 0.64	0.03

(放射線データブック (地人書館1982))

## 試薬の調製法

本分析法に記載された方法に従って分析を行う場合に必要な試薬の調製方法を示す。

本文中の重量及び容量の数字は、単に調製の割合を例示したもので、調製に当たっては必要に応じて適宜増減する。試薬は日本工業標準規格（J I S）試薬を用い、できるだけ純度のよいものを用いる。

### 1) I - 第1章放射性ストロンチウムの分析に用いる試薬の調製方法

#### (1) 標準溶液及び担体溶液

ストロンチウム担体溶液（ $10\text{ mg Sr}^{2+}/\text{ml}$ ）：塩化ストロンチウム（ $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ）

を正確に  $30.41\text{ g}$  とり  $1\text{ l}$  メスフラスコに移し、水を標線まで加える。

標準ストロンチウム溶液（ $25\text{ mg Sr}^{2+}/\text{l}$ ）：塩化ストロンチウム溶液（ $10\text{ mg Sr}^{2+}/\text{ml}$ ）を

水で正確に  $400$  倍に希釈する。

標準ストロンチウム溶液（ $50\text{ mg Sr}^{2+}/\text{l}$ ）：塩化ストロンチウム溶液（ $10\text{ mg Sr}^{2+}/\text{ml}$ ）を

水で正確に  $200$  倍に希釈する。

塩化物イオン標準溶液（ $2\text{ mg Cl}^-/\text{ml}$ ）：塩化ナトリウム（標準試薬）を  $500 \sim 650^\circ\text{C}$

で  $40 \sim 50$  分間乾燥し、デシケーター中で放冷後、正確に  $3.297\text{ g}$  をとり  $1\text{ l}$  メスフラスコに移し、水を標線まで加える。

0.1M硝酸銀標準溶液：硝酸銀（ $\text{AgNO}_3$ ） $17.0\text{ g}$  を水  $1\text{ l}$  に溶解し、かっ色瓶に入れて暗所に保存する。

塩化鉄（Ⅲ）溶液（ $5\text{ mg Fe}^{3+}/\text{ml}$ ）：塩化鉄（Ⅲ）六水和物（ $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ）<sup>\*1</sup>  $6\text{ g}$  を塩酸（ $1+1$ ） $5\text{ ml}$  及び水に溶解して  $250\text{ ml}$  とする。

塩化イットリウム溶液（ $1\text{ mg Y}^{3+}/\text{ml}$ ）：酸化イットリウム（ $\text{Y}_2\text{O}_3$ ）<sup>\*2</sup> を正確に  $1.270\text{ g}$  とり塩酸（ $1+1$ ） $50\text{ ml}$  に注意しながら加熱して溶解し、冷却後  $1\text{ l}$  メスフラスコに移し、水を標線まで加える。

---

（\*1）潮解性であるので、新しいものを用いるなど十分注意する。

（\*2）放射性物質を含んでいることがあるので、使用する前にブランクテストをして確かめる必要がある。

バリウム溶液 (10 mg Ba<sup>2+</sup>/ml) : 水酸化バリウム (Ba(OH)<sub>2</sub> · 8H<sub>2</sub>O) 5.7 g を 300 ml ビーカーにとり、水 200 ml を加え、塩酸 (1 + 1) を少しずつ加えて pH 約 4 として完全に溶解する。水を加えて 250 ml とする。

カルシウム溶液 (50 mg Ca<sup>2+</sup>/ml) : 無水塩化カルシウム (CaCl<sub>2</sub>) 46 g を水に溶かして 250 ml とする。

## (2) 酸

塩酸 (1 + 23) : 塩酸 1 容と水 23 容の割合で混合する。

塩酸 (1 + 11) : 塩酸 1 容と水 11 容の割合で混合する。

塩酸 (1 + 3) : 塩酸 1 容と水 3 容の割合で混合する。

塩酸 (1 + 1) : 塩酸 1 容と水 1 容の割合で混合する。

塩酸 (2 + 1) : 塩酸 2 容と水 1 容の割合で混合する。

硝酸 (1 + 1) : 硝酸 1 容と水 1 容の割合で混合する。

王水 : 塩酸 3 容と硝酸 1 容の割合で混合する。使用時に調製する。

酢酸 (7 + 13) : 酢酸 7 容と水 13 容の割合で混合する。

## (3) 塩基

アンモニア水 (1 + 100) : アンモニア水 1 容と水 100 容の割合で混合する。

アンモニア水 (1 + 1) : アンモニア水 1 容と水 1 容の割合で混合する。

アンモニア水 (炭酸イオンを含まないもの) : アンモニア水を蒸留フラスコにとり、水酸化ナトリウム 1 g を加えて溶解し、電熱器で加熱する。発生ガス及び留出液を煮沸して二酸化炭素を除いた水に、氷水で冷やしながら吸収させる。ただし、開栓直後のアンモニア水はそのまま使用できる。

## (4) 塩類

酢酸アンモニウム溶液 (0.6w/v%) : 酢酸アンモニウム 6 g を水に溶解して 1 l とする。

酢酸アンモニウム溶液 (15.4w/v%) : 酢酸アンモニウム 15.4 g を水に溶解して 100 ml とする。

酢酸アンモニウム溶液 (4.6w/v%) : 酢酸アンモニウム 46 g を水に溶解して 100 ml とする。

炭酸アンモニウム溶液（飽和）：炭酸アンモニウム 200 g に水 250 ml を加え、十分振り混ぜて静置する。未溶解の炭酸アンモニウムが沈降したのち上澄み液を使用する。使用後水を補充して振り混ぜておけば、瓶の底に固体の炭酸アンモニウムが残っているかぎり飽和溶液として使用できる。

シュウ酸アンモニウム溶液（飽和）：シュウ酸アンモニウム 30 g に水 250 ml を加え、十分振り混ぜて静置する。未溶解のシュウ酸アンモニウムが沈降したのち上澄み液を使用する。使用後水を補充して振り混ぜておけば、瓶の底に固体のシュウ酸アンモニウムが残っているかぎり飽和溶液として使用できる。

シュウ酸アンモニウム溶液(0.2w/v%)：シュウ酸アンモニウム 2 g を水に溶解して 1 l とする。

炭酸ナトリウム溶液（飽和）：炭酸ナトリウム 110 g に水 250 ml を加え、十分振り混ぜて静置する。未溶解の炭酸ナトリウムが沈降したのち上澄み液を使用する。使用後水を補充して振り混ぜておけば、瓶の底に固体の炭酸ナトリウムが残っているかぎり飽和溶液として使用できる。

クロム酸カリウム溶液（30w/v%）：クロム酸カリウム 30 g を水に溶解して 100 ml とする。

#### (5) 指示薬

フルオレセインナトリウム溶液(0.8w/v%)：フルオレセインナトリウム 0.8g を水に溶解して 100 ml とする。

デキストリン溶液（8w/v%）：デキストリン 8 g を水に溶解して 100 ml とする。

## 2) I - 第 2 章 放射性セリウムの分析に用いる試薬の調製方法

### (1) 標準溶液及び担体溶液

セリウム(III)担体溶液(1mgCe<sup>3+</sup>/ml)：塩化セリウム(III) CeCl<sub>3</sub>・7H<sub>2</sub>O 1.33 g を塩酸(1+99)で 500 ml とする。

硝酸ランタン溶液(10mgLa<sup>3+</sup>/ml)：硝酸ランタン La(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>・6H<sub>2</sub>O 31.2 g をビーカにとり、塩酸 10 ml と水を加えて溶かし、1 l メスフラスコに入れ、水を標線まで加えて振り混ぜる。

塩化鉄(III)溶液(50mgFe<sup>3+</sup>/ml)：塩化鉄(III) FeCl<sub>3</sub>・6H<sub>2</sub>O 30.85 g を塩酸 10 ml と水に溶かし、メスフラスコ 100 ml に移し入れ水を標線まで加えて振り混ぜる。

(2)酸

硝酸（5 + 2）：硝酸5容と水2容の割合で混合する。

硝酸（7 + 5）：硝酸7容と水5容の割合で混合する。

塩酸（1 + 99）：塩酸1容と水99容の割合で混合する。

塩酸（1 + 50）：塩酸1容と水50容の割合で混合する。

(3)塩基

水酸化ナトリウム溶液（5 w/v %）：水酸化ナトリウム50 gを水に溶かして1 ℓとする。

水酸化ナトリウム溶液（10 w/v %）：水酸化ナトリウム100 gを水に溶かして1 ℓとする。

(4)塩類

臭素酸ナトリウム溶液（30 w/v %）：臭素酸ナトリウム30 gを水に溶かして100 mlとする。

シュウ酸アンモニウム溶液（0.1 w/v %）：シュウ酸アンモニウム 0.1 gを水100 mlに溶かす。

(5)有機試薬

HDEHP-nヘプタン溶液（25 w/v %）：ビス-（2-エチルヘキシル）リン酸25 gをn-ヘプタンに溶かして100 mlとする。

3) II-第1章放射性コバルトの分析に用いる試薬の調製方法

(1)担体溶液

コバルト担体溶液（10 mg Co<sup>2+</sup>/ml）：塩化コバルトCoCl<sub>2</sub>・6H<sub>2</sub>O 20.19 gを塩酸（1 + 119）に溶解したのち塩酸（1 + 119）を加えて500 mlとする。

(2)酸

塩酸（1 + 119）：塩酸1容と水119容の割合で混合する。

塩酸（1 + 11）：塩酸1容と水11容の割合で混合する。

塩酸（1 + 3）：塩酸1容と水3容の割合で混合する。

塩酸（1 + 2）：塩酸1容と水2容の割合で混合する。

塩酸（1 + 1）：塩酸1容と水1容の割合で混合する。

塩酸（2 + 1）：塩酸2容と水1容の割合で混合する。

(3)塩基

水酸化ナトリウム溶液 (10 w/v%) : 水酸化ナトリウム 10 g を水に溶かし、100 ml にする。

(4)塩類

過ヨウ素酸ナトリウム溶液 (4.6 w/v%) : 過ヨウ素酸ナトリウム 4.6 g を水に溶かし 100 ml にする。

4) II - 第 2 章放射性ヨウ素の分析に用いる試薬の調製方法

(1)担体溶液

ヨウ素担体溶液 (10 mg I<sup>-</sup> / ml) : ヨウ化ナトリウム (NaI) 1.18 g を水に溶かし 100 ml とする。

(2)塩類

亜硫酸ナトリウム溶液 (12.6 w/v%) : 亜硫酸ナトリウム (Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> · 7H<sub>2</sub>O) 2.52 g を水に溶かし 100 ml とする。

次亜塩素酸ナトリウム溶液 (有効塩素 5~6%) : 市販の次亜塩酸ナトリウム溶液 (有効塩素 約 10%) 1 容と水 1 容の割合で混合する。

(3)有機試薬

尿素溶液 (1 w/v%) : 尿素 (CH<sub>4</sub>N<sub>2</sub>O) 1 g を水で 100 ml とする。

TiOA-キシレン溶液 (1 v/v%) : トリーイソオクチルアミンとキシレンを体積比 1 : 99 で混合する。

5) III - 第 1 章プルトニウムの分析に用いる試薬の調製方法

(1)担体溶液

鉄 (III) 担体溶液 (50 mg Fe<sup>3+</sup> / ml) : 塩化鉄 (III) FeCl<sub>3</sub> · 6H<sub>2</sub>O 30.85 g を塩酸 (1+120) に溶解したのち塩酸 (1+120) を加えて 100 ml とする。

(2)酸

硝酸 (1+13) : 硝酸 1 容と水 13 容の割合で混合する。

硝酸 (1+1) : 硝酸 1 容と水 1 容の割合で混合する。

硝酸 (3+2) : 硝酸 3 容と水 2 容の割合で混合する。

塩酸 (1+200) : 塩酸 1 容と水 200 容の割合で混合する。

塩酸 (1+120) : 塩酸 1 容と水 120 容の割合で混合する。

塩酸 (1+11) : 塩酸 1 容と水 11 容の割合で混合する。

塩酸（5 + 1） : 塩酸 5 容と水 1 容の割合で混合する。

(3)塩基

アンモニア水（1 + 150） : アンモニア水 1 容と水 150 容の割合で混合する。

(4)有機試薬

T i O A - キシレン溶液（1 v / v %） : トリーイソオクチルアミンとキシレンを体積比  
1 : 99 で混合する。

T i O A - キシレン溶液（10 v / v %） : トリーイソオクチルアミンとキシレンを体積比  
1 : 9 で混合する。使用直前に同量の硝酸（3 + 2）と振り混ぜ予備平衡にしたのち、有  
機層を使用する。

(5)指示薬

フェノールフタレイン溶液（1 w / v %） : フェノールフタレイン 1 g をエタノールに溶解し  
100 ml とする。

## イオン交換樹脂のコンディショニング

市販の陽イオン交換樹脂は通常Na-R形であり、陰イオン交換樹脂は通常R-C1形であるが、樹脂を使用する前に、ゴミや不純物を除去するため、陽イオン交換樹脂及び陰イオン交換樹脂のコンディショニング操作を次のように行う。

樹脂はあらかじめ約3倍量の水に浸し、よくかきまぜた後に傾斜法によってゴミや細粉を除去する。次に、塩酸(1+11)で2回、水で2回、水酸化ナトリウム(4w/v%)で2回、水で2回、塩酸(1+11)で2回の順に洗い、最後にpH2~3になるまで水で洗浄する。コンディショニングが終わったら水をいれた容器に密栓して保存する。

## 略号一覧

本報告書で使われた略号とその英名・和名・正式名は次のとおりである。

略号	英名	和名
ESCR	External Standard Channel Ratio	外部標準チャンネル比 (法)
FOM	Figure of Merit	———
FWHM	Full Width at Half Maximum	半値幅
HV	High Voltage	高圧 (電源)
LG	Linear Gate	リニアゲート
LLD	Lower Level Discriminator	下限ディスクリミネータ (レベル)
LSC	Liquid Scintillation Counter	液体シンチレーション測定装置
MA	Main Amplifier	主増幅器
MCA	Multi-Channel Analyzer	マルチチャンネル波高分析器
PA	Pre-Amplifier	前置増幅器
PMT	Photo-Multiplier Tube	光電子増倍管
PSD	Pulse Shape Discrimination	波形弁別 (法)
RAC	Risetime to Amplitude Converter	ライズタイム・波高変換器
SCA	Single Channel Analyzer	シングルチャンネル波高分析器
TAC	Time to Amplitude Converter	時間・波高変換器
ULD	Upper Level Discriminator	上限ディスクリミネータ (レベル)

略号	正式名
DMPOPOP	ビス-2-(4-メチル-5-フェニルオキサゾリル)-ベンゼン
HDEHP	ビス-(2-エチルヘキシル)リン酸
MIBK	メチルイソブチルケトン
PPO	2,5-ジフェニルオキサゾル
TBP	リン酸トルブチル
TiOA	トリーイソ-オクチルアミン

I. チェレンコフ光測定による放射性  
ストロンチウム及び放射性セリウム分析法

## 第 1 章 放射性ストロンチウムの分析

分析対象試料は、海水、灰試料（海産生物、野菜、牛乳等）及び土壌である。

試料中のストロンチウムの分離法には、発煙硝酸法、イオン交換法、シュウ酸塩法および溶媒抽出法がある。<sup>\*1</sup> このうち発煙硝酸法については、実験室における安全性確保の立場から本章では除外した。

液体シンチレーション測定装置を用いた<sup>89</sup>Sr および<sup>90</sup>Sr の測定法にはいくつかの方法が考えられるが、本章ではチェレンコフ光測定を利用した方法<sup>\*2</sup>を採用した。

本法は測定試料の調製が簡単なため、分析所要時間を短縮できる。分析目標値<sup>\*3</sup>は、測定時間を100分とし、バックグラウンド計数の計数誤差の3倍以上を有意とした場合、<sup>89</sup>Sr でおよそ70 mBq/試料<sup>\*4</sup>である。また、<sup>90</sup>Sr の分析目標値は、含まれる<sup>89</sup>Sr の放射能により変化するが、<sup>89</sup>Sr が含まれていない場合、およそ40mBq/試料<sup>\*4</sup>である。

### 1.1 海 水

海水中の放射性ストロンチウムは、イオン交換法またはシュウ酸塩法により分離し、チェレンコフ光測定により定量する。また、安定ストロンチウムは原子吸光法、又は塩素量から定量する。イオン交換法により海水<sup>2 l</sup><sup>\*5</sup> を処理したとき、100 分間測定ではおよそ 40mBq/l の

---

(\* 1) 放射性ストロンチウム分析法（科学技術庁、昭和58年3訂）参照。

(\* 2) 解説 I - 2 参照。

(\* 3) 本法の供試量の目安はおおよそ下記の通りで、それぞれの分析目的に応じて分析法及び供試量を選ぶ必要がある。

シュウ酸塩法の供試量は、海水では10 l、土壌類（陸土、海底土、河底土）では乾土100 g、農作物、海産生物、牛乳等の灰試料では灰10 gである。

イオン交換法では、イオン交換樹脂の交換能力を考慮すれば海水の供試量は2 lが限度である。その他については、シュウ酸塩法の供試量と同じである。

溶媒抽出法は牛乳などの灰試料に限り適用でき、供試量は灰10 gである。

(\* 4) 解説 4 参照。

(\* 5) シュウ酸塩法の供試量は海水10 lであるので、<sup>89</sup>Sr、<sup>90</sup>Sr の分析目標値は、それぞれ7mBq/l、4mBq/lとなる。

$^{89}\text{Sr}$  が分析できる。 $^{90}\text{Sr}$  は、 $^{89}\text{Sr}$  を含まない試料の場合およそ  $20\text{mBq}/\ell$  である。測定試料調製までに要する時間は、イオン交換法で約25時間、シュウ酸塩法で約30時間である。

## 1.1. A イオン交換法

### 1.1. A.1 試薬及び装置

#### 〔1〕試薬

##### (1)標準溶液及び担体溶液

ストロンチウム担体溶液 ( $10\text{mg Sr}^{2+}/\text{ml}$ )

イットリウム担体溶液 ( $1\text{mg Y}^{3+}/\text{ml}$ )

塩化鉄 (III) 溶液 ( $5\text{mg Fe}^{3+}/\text{ml}$ )

標準ストロンチウム溶液 ( $25\text{mg Sr}^{2+}/\ell$ )

標準ストロンチウム溶液 ( $50\text{mg Sr}^{2+}/\ell$ )

塩化物イオン標準溶液 ( $2\text{mg Cl}^{-}/\text{ml}$ )

0.1M硝酸銀標準溶液

##### (2)酸

塩酸 (1 + 2 3)、塩酸 (1 + 1 1)、塩酸 (1 + 3)、塩酸 (1 + 1)

シュウ酸

##### (3)塩基

水酸化ナトリウム

アンモニア水 (炭酸イオンを含まないもの)

アンモニア水 (1 + 1 0 0)、アンモニア水 (1 + 1)

##### (4)塩類

炭酸ナトリウム

塩化アンモニウム

炭酸ナトリウム溶液 (飽和)

炭酸アンモニウム溶液 (飽和)

シュウ酸アンモニウム溶液 (飽和)、シュウ酸アンモニウム溶液 (0.2w/v%)

溶離液 B : 酢酸アンモニウム溶液 (15.4 w/v%)

##### (5)混合溶液

溶離液 A : 酢酸アンモニウム溶液 (15.4 w/v%) とメチルアルコールを容積比 1 : 1 で混合する。

(6)陽イオン交換樹脂<sup>\*6</sup>

(7)指示薬

フルオレセインナトリウム溶液 (0.8w/v%)

デキストリン溶液 (8 w/v%)

(8)その他

BCG試験紙

## 〔2〕装置

原子吸光分光光度計

### 1.1. A. 2 分析操作

- (1) 海水試料 2 l にストロンチウム担体溶液を正確に 5 ml 加え、かき混ぜながら水酸化ナトリウム(顆粒状)を少しずつ加えて約 pH10 程度とする。<sup>\*7</sup>炭酸ナトリウム 20 g を加え、かき混ぜながら約 80°C で 1 時間加熱する。放冷し沈澱が、完全に沈降するまで静置する。<sup>\*8</sup>
- (2) 上澄み液の大部分を傾斜法で除き、残りを遠心分離する。
- (3) 沈澱を塩酸 (1 + 1) に溶解し、1 l ビーカーに移し、水を加えて約 700 ml とする。約 80°C に加熱し、シュウ酸 10 g を少量ずつ加え、アンモニア水 (1 + 1) で pH4.0~4.2 (BCG 試験紙、黄色→緑青色) に調整する。数時間加熱して沈澱を熟成し、放冷し沈澱が沈降するまで静置する。<sup>\*9</sup>
- (4) 沈澱をろ紙 (5 種 C) を用いて吸引ろ別し、シュウ酸アンモニウム溶液 (0.2W/V%) 50 ml で 3 回に分けて洗浄する。ろ紙ごとに沈澱を蒸発皿 (磁製、直径約 10 cm) に移し、乾燥したのち 600°C で 3 時間灰化する。

---

(\* 6) 樹脂は強酸性陽イオン交換法樹脂 Amberlite® CG-120 (または、これと同等のもの、例えば Dowex® 50w×8、Diaion® SK-1) 100~200 メッシュを用いる。コンディショニング (P. 10 参照) した陽イオン交換法樹脂を内径 2 cm のカラムに長さ 19 cm になるように、気泡が入らないよう注意しながら詰める。カラムに樹脂容積の 10 倍量の塩酸 (1 + 3) を通したのち水洗する。樹脂は H 型となり、これに試料溶液を通す。なお、分離操作が終わった樹脂カラムに、塩酸 (1 + 1) 500 ml、水 300 ml を順に通すと、樹脂は再生され、繰り返し使用できる。

(\* 7) 発熱するので十分に注意する。

(\* 8) 上澄み液に炭酸ナトリウム溶液 (飽和) を滴下し、炭酸塩沈澱の白色の濁りが生じないことを確認する。濁りを生じる場合は、炭酸ナトリウムが不足しているので追加して操作を繰り返す。

(\* 9) 上澄み液にシュウ酸アンモニウム溶液 (飽和) を滴下し、シュウ酸塩沈澱の白色の濁りが生じないことを確認する。濁りを生じる場合は、シュウ酸が不足しているため、追加して操作を繰り返す。

- (5) 灰を塩酸(1+3)に溶解し、ろ紙(5種B)を用いてろ過し、200 mlビーカーに受ける。温水でろ紙を洗浄する。ろ液・洗液を合わせ、ホットプレート上で蒸発乾固したのち、塩酸(1+23)100~150 mlを加えて再び溶解する。
- (6) 試料溶液をイオン交換樹脂カラムに毎分2~3 mlの流速で通す。次に水30 mlを通し、流出液を捨てる。
- (7) 溶離液A 250 mlを毎分2~3 mlの流速で通し、<sup>\*10</sup> 流出液を捨てる。
- (8) 溶離液B 200 mlを毎分2~3 mlの流速で通し、ストロンチウムを溶出する。
- (9) 溶出液を加熱し、約100 mlに蒸発濃縮する。アンモニア水を加えpH約9とし、次に炭酸アンモニウム溶液(飽和) 10 mlを加え加熱し、炭酸ストロンチウムの沈澱が出始めたなら数分間加熱熟成する。
- (10) 沈澱をガラスフィルター(NoG-4)を用いて吸引ろ別し、少量のアンモニア水(1+100)で洗浄する。沈澱を少量の塩酸(1+1)に溶解し、ガラスフィルター(NoG-4)を塩酸(1+23)で洗浄する。ろ液・洗液を合わせ、液量を約40 mlとする。
- (11) 塩化鉄(III)溶液5 ml及び塩化アンモニウム1 gを加え、加熱して炭酸ガスを追い出す。アンモニア水(炭酸イオンを含まないもの)を少しずつ加え、pH約8として水酸化鉄(III)を沈澱させる。さらに、約5分間加熱し、沈澱を熟成する。(このときの時刻を記録する、スカベンジング時刻)
- (12) ろ紙(5種A)を用いてすみやかにろ過し、沈澱をアンモニア水(1+100)で洗浄する。ろ液・洗液を100 mlビーカーに受け、沈澱を捨てる。
- (13) 加熱して、アンモニアを追い出す。塩酸5 mlを加え、100 mlメスフラスコに移し、水を標線まで加える。

このメスフラスコから正確に1 mlを分取し、I.1. A. 4〔1〕に従ってストロンチウムを定量し、計算の項に従ってストロンチウムの回収率を求める。

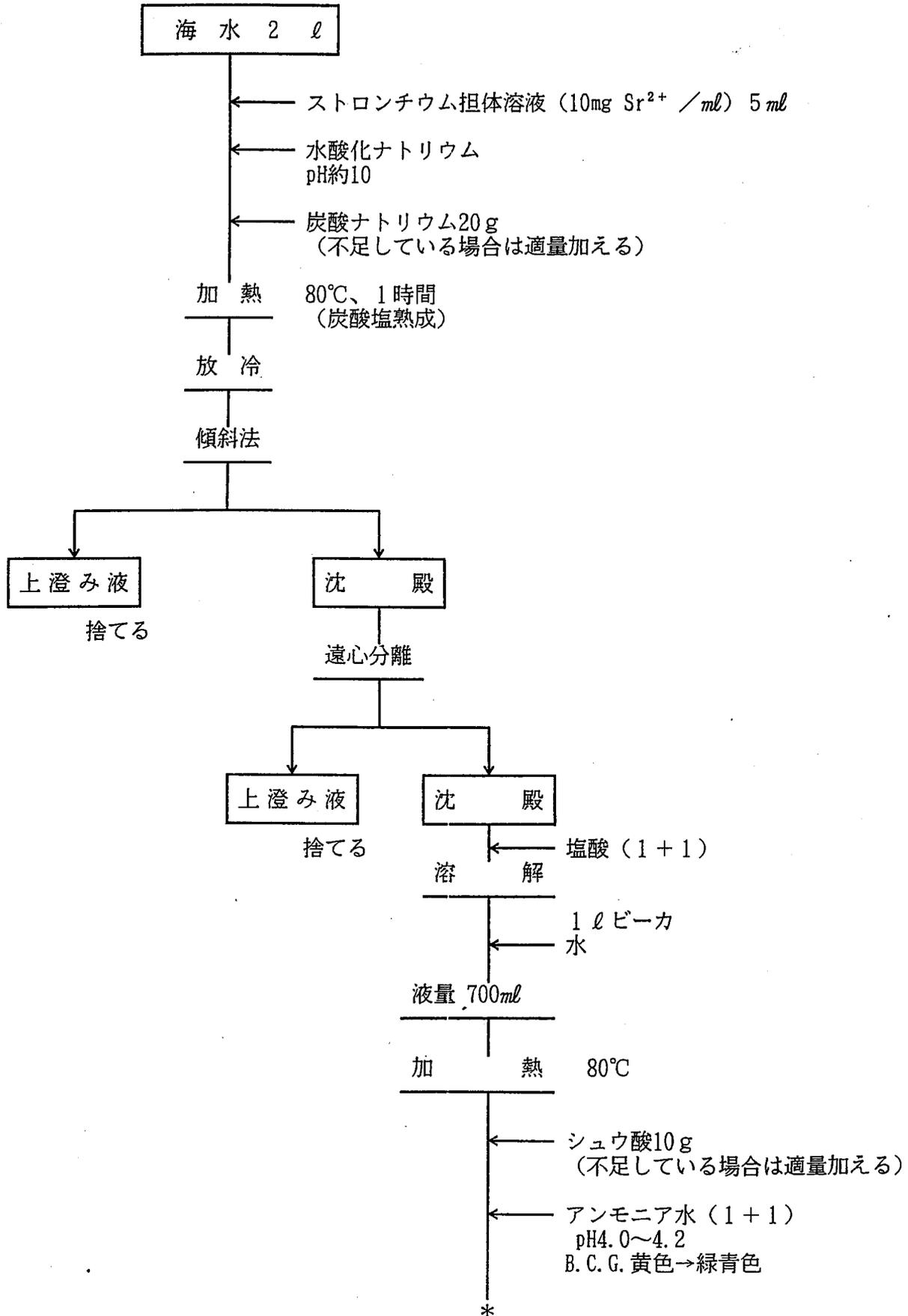
メスフラスコ内の全量をポリエチレン(あるいはテフロン)瓶(100 ml)<sup>\*11</sup>に移し、測定試料とする。

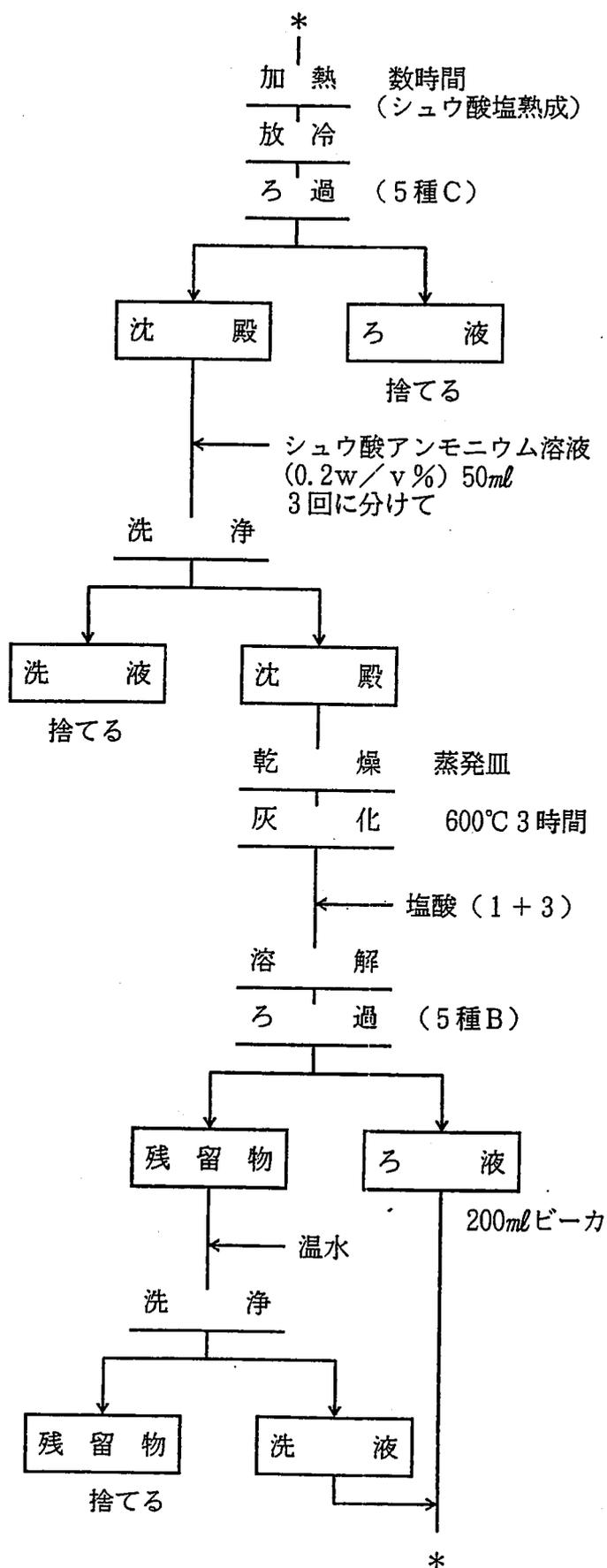
---

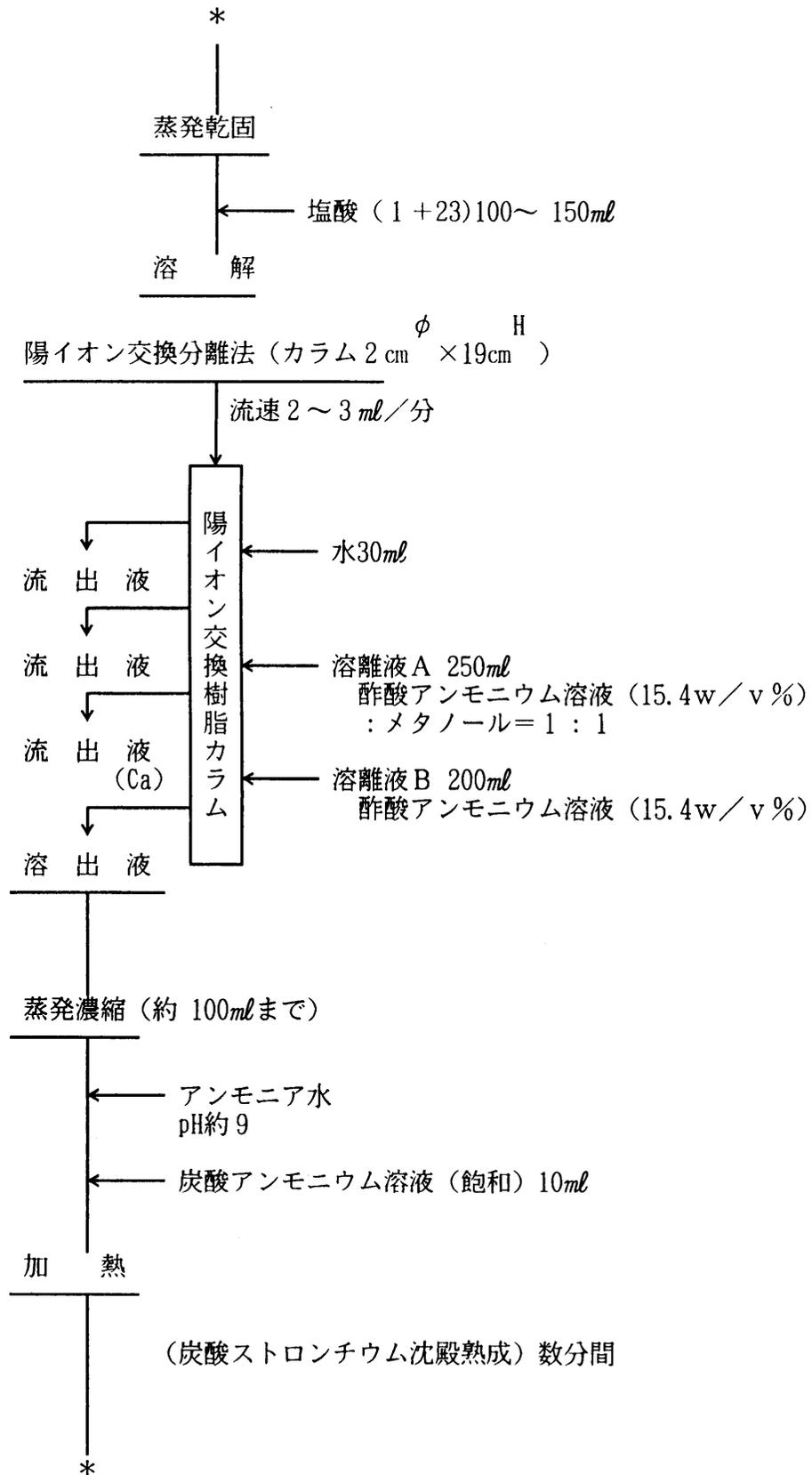
(\*10) カルシウムが溶出する。

(\*11) 使用する測定瓶については解説I-6参照。

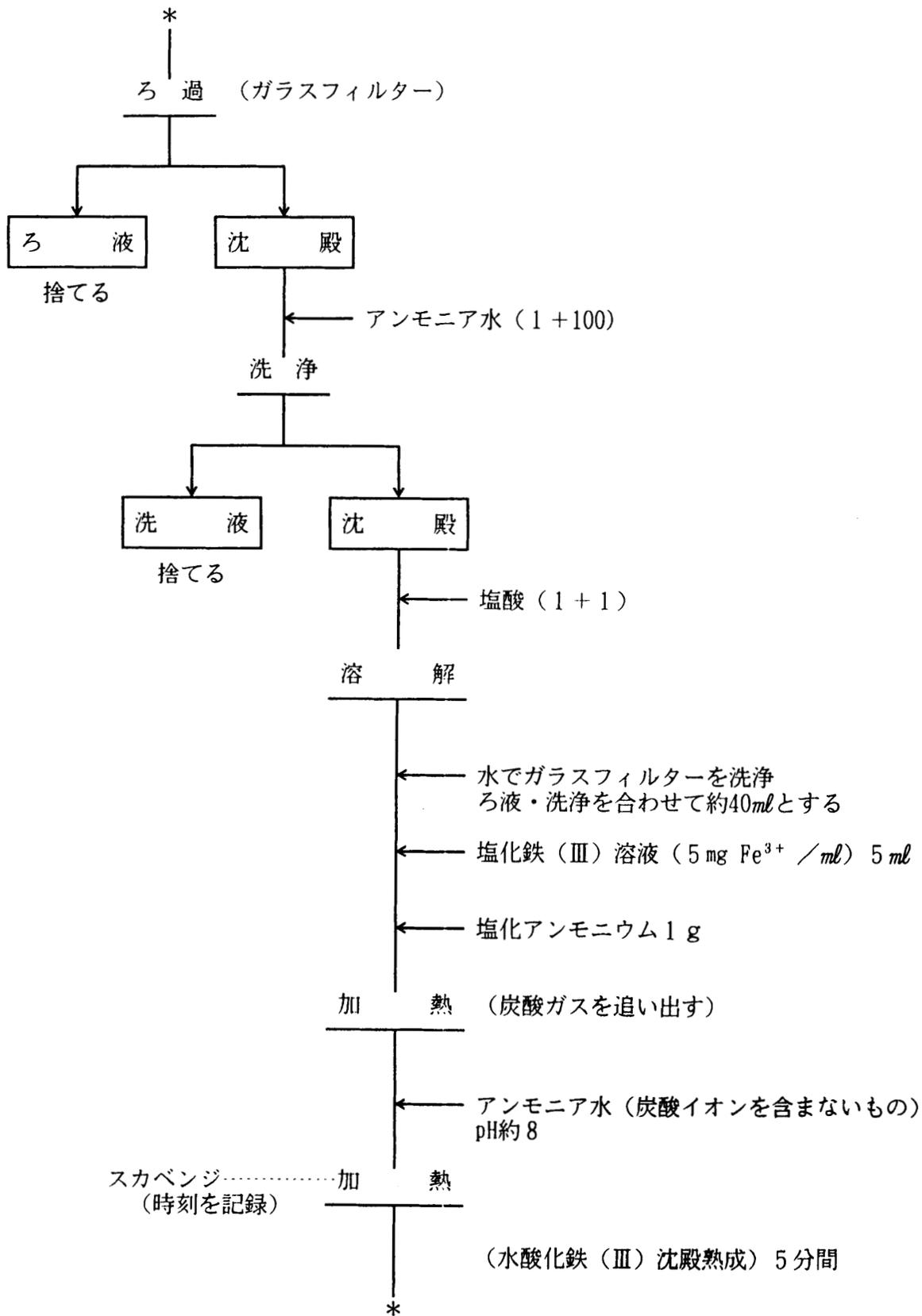
イオン交換法

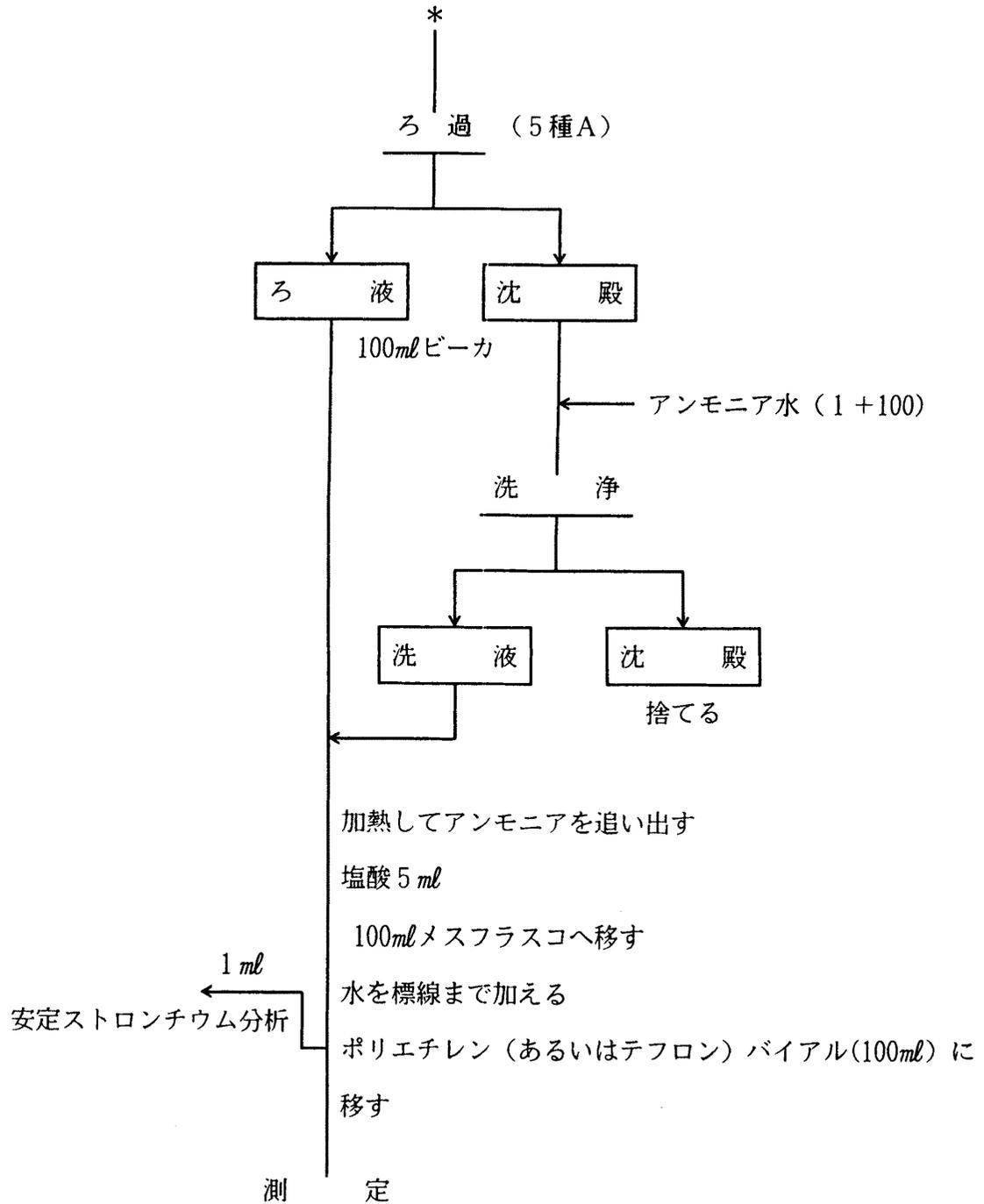






ストロンチウム (イオン交換法)  
-海水- 4/5





1.1. A.3 標準線源の作製<sup>\*12</sup> (3.3 参照)

〔1〕<sup>90</sup>Sr (<sup>90</sup>Y) 標準線源

- (1) ストロンチウム担体溶液 5 ml、イットリウム担体溶液 10 ml 及び塩化アンモニウム 10 g を 2~3 個<sup>\*13</sup> の 100 ml メスフラスコに取る。
- (2) <sup>90</sup>Sr 標準溶液 (2 週間以上放置したもの) から、およそ 10 Bq を正確に分取して上記メスフラスコに加え、塩酸 (1+11) で標線に合わせる。
- (3) 全量をポリエチレン (あるいはテフロン) 瓶 (100 ml) に移す。
- (4) (1)、(2)、(3) に準じバックグラウンド用試料<sup>\*14</sup> を作製する。

〔2〕<sup>89</sup>Sr 標準線源

- (1) ストロンチウム担体溶液 5 ml 及び塩化アンモニウム 10 g を 2~3 個<sup>\*13</sup> の 100 ml メスフラスコに取る。
- (2) <sup>89</sup>Sr 標準溶液から、およそ 10 Bq を正確に分取して上記メスフラスコに加え、塩酸 (1+11) で標線に合わせる。
- (3) 全量をポリエチレン (あるいはテフロン) 瓶 (100 ml) に移す。

〔3〕<sup>90</sup>Sr 標準線源

- (1) <sup>90</sup>Sr 標準溶液のおよそ 100 Bq を 2~3 個<sup>\*13</sup> の遠沈管 100 ml に取り、塩酸 (1+1) 2 ml、ストロンチウム担体溶液 5 ml、イットリウム担体溶液 10 ml を加え、水で液量を約 50 ml とする。
- (2) 塩化アンモニウム 10 g を加えよく攪はんする。
- (3) 加熱して炭酸ガスを追い出し、アンモニア水 (炭酸イオンを含まないもの) を少しずつ加え、pH を約 8 として水酸化イットリウムを沈澱させる。さらに約 5 分間加熱し、沈澱を熟成する。
- (4) 5 分間遠心分離する (3000 rpm 程度)。
- (5) 上澄み液をポリエチレン (あるいはテフロン) 瓶 (100 ml) に移し、塩酸 (1+11) を加え 100 ml とする。

---

(\*12) 解説 I - 3、解説 I - 4 参照。

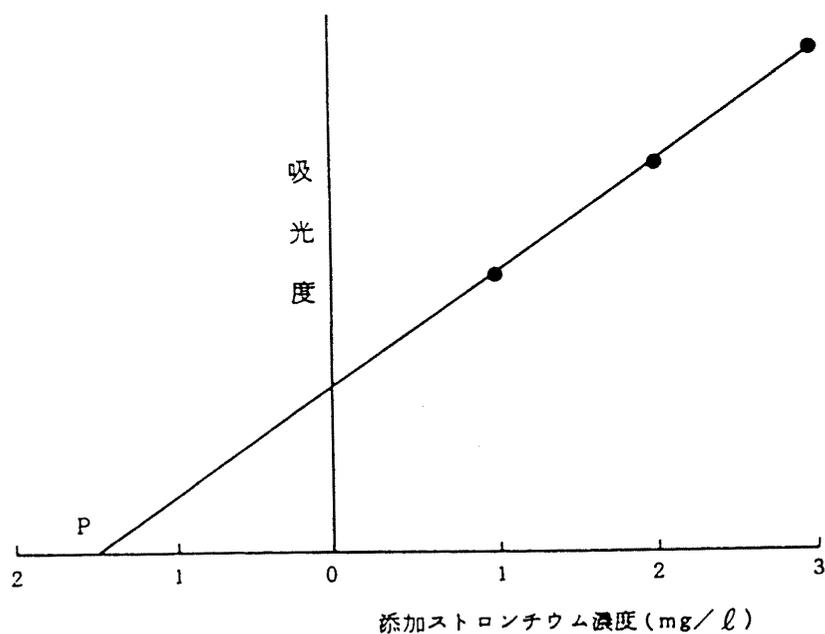
(\*13) 計数効率は数個の平均値を用いる。

(\*14) 〔2〕、〔3〕のバックグラウンド用試料として兼用する。

#### 1.1. A.4 安定ストロンチウムの定量

##### [1] 回収されたストロンチウムの定量 (標準添加法<sup>\*15</sup>)

- (1) 回収率測定用に分取した  $1\text{ ml}$  を  $50\text{ ml}$  メスフラスコに入れ、水を標線まで加える。
- (2) この溶液を  $25\text{ ml}$  メスフラスコ  $4$  個に正確に  $5\text{ ml}$  ずつ分取し、標準ストロンチウム溶液 ( $25\text{ mg Sr}^{2+}/\ell$ ) をそれぞれ正確に  $0, 1, 2, 3\text{ ml}$  ずつ加え、水を標線まで加える。
- (3) 原子吸光分光光度計を用い、波長  $460.7\text{ nm}$  の吸光度を測定する。
- (4) 図-1 のように、添加ストロンチウム濃度に対して吸光度をプロットする。測定値 ( $4$  点) を結び、直線<sup>\*17</sup>がえられることを確かめたのち、外挿して濃度軸の延長との交点を読み、ストロンチウム濃度、 $P$  ( $\text{mg}/\ell$ ) を求める。
- (5) 希釈倍率より、回収されたストロンチウムの量、 $W_2$  ( $\text{mg}$ ) を求める。<sup>\*18</sup>



ストロンチウム濃度の求め方

図-1

- 
- (\*15) 検量線法でもよい。
  - (\*16) ストロンチウム濃度が約  $1.5\text{ mg}/\ell$  になるように希釈するのが望ましい。ここに示す分取量は一例であるので注意する。
  - (\*17) ストロンチウム濃度  $5\text{ mg}/\ell$  程度まで直線性がある。
  - (\*18) 例えば、この希釈倍率(\*16)では  $W_2 = P \times 25 \times (50/5) \times 10^2 \times (1/10^3)$  ( $\text{mg}$ ) となる。

〔2〕 海水中の安定ストロンチウムの定量

A法（原子吸光度法）

- (1) 海水試料<sup>\*19</sup> を50 mlメスフラスコ4個に正確に10 mlずつ分取<sup>\*20</sup> し、次に標準ストロンチウム溶液（50mg Sr<sup>2+</sup>/ℓ）をそれぞれ正確に0, 1, 2, 3 mlずつ加え、水を標線まで加える。
- (2) 1.1. A.4〔1〕に準じ、吸光度を測定してストロンチウム濃度、P (mg/ℓ)を求め、希釈倍率より海水試料中のストロンチウム量、W<sub>3</sub>(mg/ℓ)を求め<sup>\*21</sup>る。

B法（塩素量による方法）

- (1) 塩化物イオン標準溶液（2mg Cl<sup>-</sup>/ml）を正確に20mlとり、フルオレセインナトリウム溶液1滴及びデキストリン溶液5 mlを加え、静かにかき混ぜながら0.1M硝酸銀標準溶液で滴定する。黄緑色のけい光が消失して、わずかに赤みを呈する点を終点とする。要した0.1 M硝酸銀標準溶液の量、a(ml) から、0.1 M硝酸銀標準溶液のファクター、Fを次式により計算する。

$$F = \frac{10}{a}$$

- (2) 100 mlメスフラスコに海水試料<sup>\*22</sup>を正確に25 mlとり、水を標線まで加える。この希釈試料水を正確に10 mlとり、水を加えて約20 mlとし、操作(1)と同様に滴定する。要した0.1 M硝酸銀標準溶液の量、x(ml) から、海水試料の塩素量、Cl (%)を次式により計算<sup>\*23</sup>する。

$$Cl = 4 \times x \times F \times \frac{100}{25} \times \frac{1}{10}$$

- (\*19) 浮遊物などがあるときは、ろ紙（5種A）を用いてろ過し、そのろ液を用いる。その際、海水試料を水で薄めてはいけない。
- (\*20) ストロンチウム濃度が約1.5mg/ℓになるように希釈するのが望ましい。ここに示す分取量は一例であるので注意する。
- (\*21) 例えば、ここの希釈倍率ではW<sub>3</sub> = P × 50 × (1/10) (mg/ℓ)となる。
- (\*22) 海水試料には通常酸が加えられているが、ここでは酸を加えた海水試料を使用してはいけない。
- (\*23) ここで求めるのは厳密には塩素度（海水1ℓ中のハロゲンの量）であって、これを20℃の海水の密度で除したものが塩素量である。

(3) 海水試料中のストロンチウム量、 $W_3$  (mg/ℓ) を次式により計算する。<sup>\*24</sup>

$$W_3 = \frac{8 \times C_1}{19}$$

ここで 8 : 塩素量19.00 %の海水中のストロンチウムの量 (mg/ℓ)

19 : 塩素量19.00 %の海水中の塩素量 (g/kg)

$C_1$  : 海水試料中の塩素量 (%)

#### 1.1. A.5 放射能測定 (3.5 参照)

シングルチャンネルによる2回測定で<sup>89</sup>Srと生長した<sup>90</sup>Yのチェレンコフ光を測定、定量する。<sup>90</sup>Srの計数効率は非常に小さいが<sup>89</sup>Srとして誤計数される恐れがあるので弁別する。LLDは<sup>90</sup>Sr標準線源を用いて計数効率が、1%以下となるよう設定する。<sup>\*25</sup>

- (1) 使用機器の型式、名称、試料名などを記録する。
- (2) 適当な標準線源を用いて計数装置の動作が正常なことを確認する。
- (3) 測定試料を<sup>90</sup>Yスカベンジ後できるだけ早い時期に100分間測定する(主に<sup>89</sup>Srを測定)。測定開始時刻を記録する。
- (4) バックグラウンド用試料を100分間測定する。
- (5) 数日後(2週間以上が望ましい)に再度(3)と同じ条件で100分間測定する(<sup>89</sup>Sr及び<sup>90</sup>Yを測定)。測定開始時刻を記録する。
- (6) バックグラウンド用試料を100分間測定する。
- (7) 試料の計数率からバックグラウンド計数率を差し引き、正味の計数率及び標準偏差を求める。

---

(\*24) 海洋調査等では、海水中のSr量は一般に海水の塩素量から算出する。海水の塩素量は採取場所によって異なるが、塩素量19.00%の海水中の塩化物イオンは18.980 g/kg、 $Sr^{2+}$ は0.008g/ℓである。従って $Sr^{2+}$ の塩素量に対する比は $8/(19 \times 10^3)$ となる。

ただし、海水試料のうち沿岸水は河川水等の流入もあり、塩素量は10~19%の幅がある。従って、塩素量と溶存 $Sr^{2+}$ 量との比例関係は必ずしも一定であるとは限らないので注意する。

(\*25) <sup>201</sup>Tl (最大β線エネルギー763 keV)の計数効率が1%程度となるようにLLDを設定する方法でも良い。

### 1.1. A.6 計算

#### (1) $^{89}\text{Sr}$ 及び $^{90}\text{Sr}$ の定量

スカベンジ時刻における $^{89}\text{Sr}$ の計数率を $n_{89}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ と平衡状態にあると仮定した場合の $^{90}\text{Y}$ の計数率を $n_{90}$ すると、それぞれの計数率及び誤差 $\sigma_{89}$ 、 $\sigma_{90}$ は次式で求められる。

また式を簡略にするため

$$\exp(-\lambda_{89} \cdot t_1) = f_1$$

$$\exp(-\lambda_{89} \cdot t_2) = f_2$$

$$1 - \exp(-\lambda_{90} \cdot t_1) = g_1$$

$$1 - \exp(-\lambda_{90} \cdot t_2) = g_2$$

$$f_1 \cdot g_2 - f_2 \cdot g_1 = h \text{とおくと、}$$

$$n_{89} \pm \sigma_{89} = \frac{(n_1 \cdot g_2 - n_2 \cdot g_1) \pm \left[ (\sigma_1 \cdot g_2)^2 + (\sigma_2 \cdot g_1)^2 \right]^{1/2}}{h}$$

$$n_{90} \pm \sigma_{90} = \frac{(n_2 \cdot f_1 - n_1 \cdot f_2) \pm \left[ (\sigma_2 \cdot f_1)^2 + (\sigma_1 \cdot f_2)^2 \right]^{1/2}}{h}$$

ここで

$t_1$  :  $^{90}\text{Y}$ スカベンジから第1回目の測定開始までの時間 (単位: 日)

$t_2$  :  $^{90}\text{Y}$ スカベンジから第2回目の測定開始までの時間 (単位: 日)

$n_1, n_2$  :  $t_1, t_2$  における正味計数率<sup>\*26</sup> (cpm)

$\sigma_1, \sigma_2$  : 同上誤差<sup>\*26</sup>

$\lambda_{89}, \lambda_{90}$  :  $^{89}\text{Sr}, ^{90}\text{Y}$ の壊変定数 (日<sup>-1</sup>)

$$(\lambda_{89} = 0.0137, \lambda_{90} = 0.260)$$

したがって、スカベンジ時刻において供試量中に含まれる $^{89}\text{Sr}$ 、 $A_{89} \pm \Delta_{89}(\text{Bq})$ および $^{90}\text{Sr}$ 、 $A_{90} \pm \Delta_{90}(\text{Bq})$ は次式で求まる。

(\*26) 正味計数率 $n$ 及びその誤差 $\sigma$ は次式に従って求める。

$$n \pm \sigma = \left( \frac{N_s}{T_s} - \frac{N_b}{T_b} \right) \pm \left( \frac{N_s}{T_s^2} + \frac{N_b}{T_b^2} \right)^{1/2}$$

$N_s$  : 試料の全計数値

$N_b$  : バックグラウンドの計数値

$T_s$  : 試料の測定時間 (単位: 分)

$T_b$  : バックグラウンドの測定時間 (単位: 分)

$$A_{89}^{\circ} \pm \Delta_{89}^{\circ} = \frac{n_{89} \pm \sigma_{89}}{60 \cdot \varepsilon_{89} \cdot Y} \times \frac{10^6}{99} \quad *27$$

$$A_{90}^{\circ} \pm \Delta_{90}^{\circ} = \frac{n_{90} \pm \sigma_{90}}{60 \cdot \varepsilon_{90} \cdot Y} \times \frac{10^6}{99} \quad *27$$

ここで  $\varepsilon_{89}, \varepsilon_{90}$  :  $^{89}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Y}$ の計数効率<sup>\*28</sup> (%)

$Y$  : ストロンチウムの回収率 (%)

(2) ストロンチウムの回収率を次式により計算する。

$$Y = \frac{W_2}{W_1 + W_3 \times V} \times 100$$

ここで  $Y$  : ストロンチウムの回収率 (%)

$W_1$  : 加えた担体ストロンチウムの量 (mg)

$W_2$  : 回収されたストロンチウムの量 (mg)

$W_3$  : 海水試料中のストロンチウム量 (mg/ℓ)

$V$  : 供試量 (ℓ)

(3) 海水 1 ℓ 当りの $^{90}\text{Sr}$ を次式により計算する。

$$A_{90} \pm \Delta_{90} = (A_{90}^{\circ} \pm \Delta_{90}^{\circ}) \times \frac{1}{V}$$

ここで  $A_{90}$  : 1 ℓ 当りの $^{90}\text{Sr}$  (Bq/ℓ)

$\Delta_{90}$  : 同上誤差

$V$  : 供試量 (ℓ)

$A_{90}^{\circ}$  : 供試量中に含まれる $^{90}\text{Sr}$  (Bq)

$\Delta_{90}^{\circ}$  : 同上誤差

(\*27) ストロンチウムの回収率補正による試料の減量を補正する。

(\*28) 計数効率は数個の平均値を用いる。

〔4〕 海水 1 ℓあたりの<sup>89</sup>Srを次式により計算する。

$$A_{89} \pm \Delta_{89} = (A_{89}^0 \pm \Delta_{89}^0) \times \frac{1}{V}$$

ここで $A_{89}$  : 1 ℓ当りの<sup>89</sup>Sr(Bq/ℓ)

$\Delta_{89}$  : 同上誤差

V : 供試量 (ℓ)

$A_{89}^0$  : 供試量中に含まれる<sup>89</sup>Sr(Bq)

$\Delta_{89}^0$  : 同上誤差

〔5〕 減衰補正

<sup>89</sup>Srの半減期は、50.5日と比較的短かいので試料採取から分析開始まで長期間経過している場合には減衰補正が必要である。

$$A_{89} \pm \Delta_{89} = \frac{A_{89} \pm \Delta_{89}}{\exp(-0.0137 \cdot t^{\circ})}$$

$A_{89}$  : 試料採取日に補正した<sup>89</sup>Sr (Bq / ℓ)

$\Delta_{89}$  : 同上誤差

$t^{\circ}$  : 試料採取時からスカベンジまでの時間 (単位 : 日)

## 1.1. B シュウ酸塩法

### 1.1. B.1 試薬及び装置

#### 〔1〕 試 薬

##### (1)標準溶液及び担体溶液

ストロンチウム担体溶液 (10mg Sr<sup>2+</sup>/ml)

イットリウム担体溶液 (1mg Y<sup>3+</sup>/ml)

水酸化バリウム溶液 (10mg Ba<sup>2+</sup>/ml)

塩化鉄(Ⅲ)溶液 (5mg Fe<sup>3+</sup>/ml)

標準ストロンチウム溶液 (25mg Sr<sup>2+</sup>/ℓ)

標準ストロンチウム溶液 (50mg Sr<sup>2+</sup>/ℓ)

塩化物イオン標準溶液 (2mg Cl<sup>-</sup>/ml)

0.1M硝酸銀標準溶液

(2)酸

塩酸 (1 + 3)、塩酸 (1 + 1)

シュウ酸

酢酸 (7 + 13)

(3)塩基

水酸化ナトリウム

アンモニア水 (炭酸イオンを含まないもの)

アンモニア水 (1 + 1 0 0)、アンモニア水 (1 + 1)

(4)塩類

炭酸ナトリウム

塩化アンモニウム

炭酸アンモニウム

炭酸ナトリウム溶液 (飽和)

シュウ酸アンモニウム溶液 (飽和)、シュウ酸アンモニウム溶液 (0.2w/v%)

クロム酸カリウム溶液 (30w/v%)

酢酸アンモニウム溶液 (46w/v%)、酢酸アンモニウム溶液 (0.6w/v%)

(5)指示薬

B C G試験紙

フルオレセインナトリウム溶液 (0.8w/v%)

デキストリン溶液 (8 w/v%)

〔2〕装置

1.1. A. 1〔2〕に同じ。

1.1. B.2 分析操作

- (1) 海水試料10ℓにかき混ぜながら水酸化ナトリウム (顆粒状) を少しずつ加えてpH10以上とする。<sup>\*29</sup>炭酸ナトリウム100gを加え、かき混ぜながら約80℃で1時間加熱する。放冷し沈澱が完全に沈降するまで静置する。<sup>\*30</sup>

---

(\*29) 発熱するので十分に注意する。

(\*30) 上澄み液に炭酸ナトリウム溶液 (飽和) を滴下し、炭酸塩沈澱の白色の濁りが生じないことを確認する。濁りを生じる場合は、炭酸ナトリウムが不足しているので、追加して操作を繰り返す。

- (2) 上澄み液の大部分を傾斜法で除き、残りを遠心分離する。<sup>\*31</sup>
- (3) 沈澱を塩酸に溶解し、2 ℓ ビーカーに移し、水を加えて約1.5 ℓ とする。約80℃に加熱しシュウ酸30 gを少量ずつ加え、アンモニア水(1+1)でpH4.0~4.2(BCG試験紙、黄色→緑青色)に調整する。数時間加熱して沈澱を熟成し、放冷し沈澱が沈降するまで静置する。<sup>\*32</sup>
- (4) 沈澱をろ紙(5種C)を用いて吸収ろ過し、シュウ酸アンモニウム溶液50mlで3回に分けて洗浄する。ろ紙ごと沈澱を蒸発皿(磁製、直径約10cm)に移し、乾燥したのち600℃で3時間灰化する。
- (5) 灰を塩酸(1+3)に溶解し、ろ紙(5種B)を用いてろ過し、200 mlビーカーに受ける。温水でろ紙を洗浄する。ろ液・洗液を合わせ、液量を約150mlとする。
- (6) 塩化鉄(III)溶液2 mlを加え、加熱して炭酸ガスを追い出す。アンモニア水(炭酸イオンを含まないもの)を少しずつ加え、pH約8として水酸化鉄(III)を沈澱させる。さらに、約5分間加熱し、沈澱を熟成する。
- (7) ろ紙(5種A)を用いてすみやかにろ過し、沈澱をアンモニア水(1+100)で洗浄する。ろ液・洗液を200 mlビーカーに受け、沈澱は捨てる。
- (8) 溶液を加熱し、約150mlに蒸発濃縮する。水酸化バリウム溶液2 ml及び酢酸アンモニウム溶液(46w/v%) 2 mlを加え、次にアンモニア水(1+1)及び酢酸(7+13)を用いてpH 5.0~5.5に調製する。
- (9) 約90℃に加熱し、クロム酸カリウム溶液2 mlを加え、さらに加熱を続けて沈澱を熟成したのち、約1時間室温で放置する。<sup>\*33</sup>
- (10) 黄色のクロム酸バリウムの沈澱(ラジウムを含む)をろ紙(5種C)を用いてろ別し、沈澱を酢酸アンモニウム溶液(0.6 w/v%)で洗浄する。ろ液・洗液を1 ℓ ビーカーに受け、沈澱は捨てる。水を加えて液量を約800 mlとする。
- (11) アンモニア水を加え、pH約9とし<sup>\*34</sup>、次に炭酸アンモニウム40 gを加えて4、5分間加熱し、白色の炭酸塩を沈澱させる。

---

(\*31) 上澄み液は放射性セシウムの分析に使用できる。

(\*32) 上澄み液にシュウ酸アンモニウム溶液(飽和)を滴下し、シュウ酸塩沈澱の白色の濁りが生じないことを確認する。濁りを生じる場合は、シュウ酸が不足しているため、追加して、この操作を繰り返す。

(\*33) 沈澱が生じない時は、ガラス棒でビーカー内壁をこするとよい。

(\*34) 溶液の色が橙色から黄色になればよい。

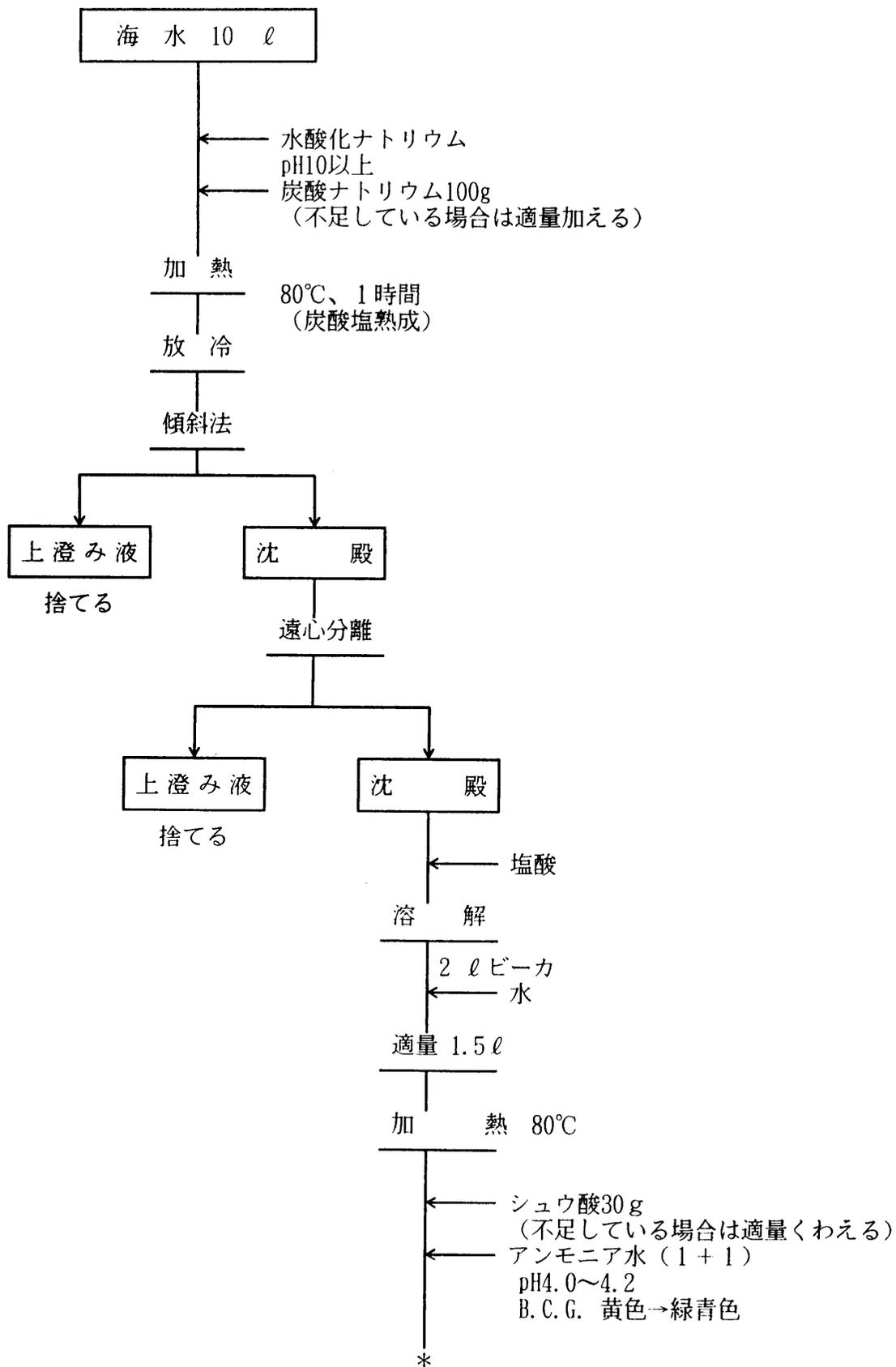
- (12) 沈澱をガラスフィルター(NoG-4)を用いて吸収ろ別し、アンモニア水(1+100)で洗浄する。沈澱をできるだけ少量の塩酸(1+1)<sup>\*35</sup>に溶解し、ガラスフィルター(NoG-4)を水で洗浄する。ろ液・洗液を200mlビーカーに受ける。
- (13) 塩化鉄(Ⅲ)溶液5ml及び塩化アンモニウム2gを加え、加熱して炭酸ガスを追い出す。アンモニア水(炭酸イオンを含まないもの)を少しずつ加え、pH約8として水酸化鉄(Ⅲ)を沈澱させる。さらに、約5分間加熱し、沈澱を熟成させる。
- (このとき時刻を記録する、スカベンジング時刻)
- (14) ろ紙(5種A)を用いてすみやかにろ過し、沈澱をアンモニア水(1+100)で洗浄する。ろ液・洗液を200mlビーカーに受け、沈澱は捨てる。
- (15) 加熱して約70mlまで濃縮する。<sup>\*35</sup>塩酸5mlを加え、100mlメスフラスコに移し、水を標線まで加える。
- このメスフラスコから正確に1mlを分取し、次項に従って安定ストロンチウムを定量し、計算の項に従ってストロンチウムの回収率を求める。
- メスフラスコ内の全量をポリエチレン(あるいはテフロン)瓶(100ml)に移す。

---

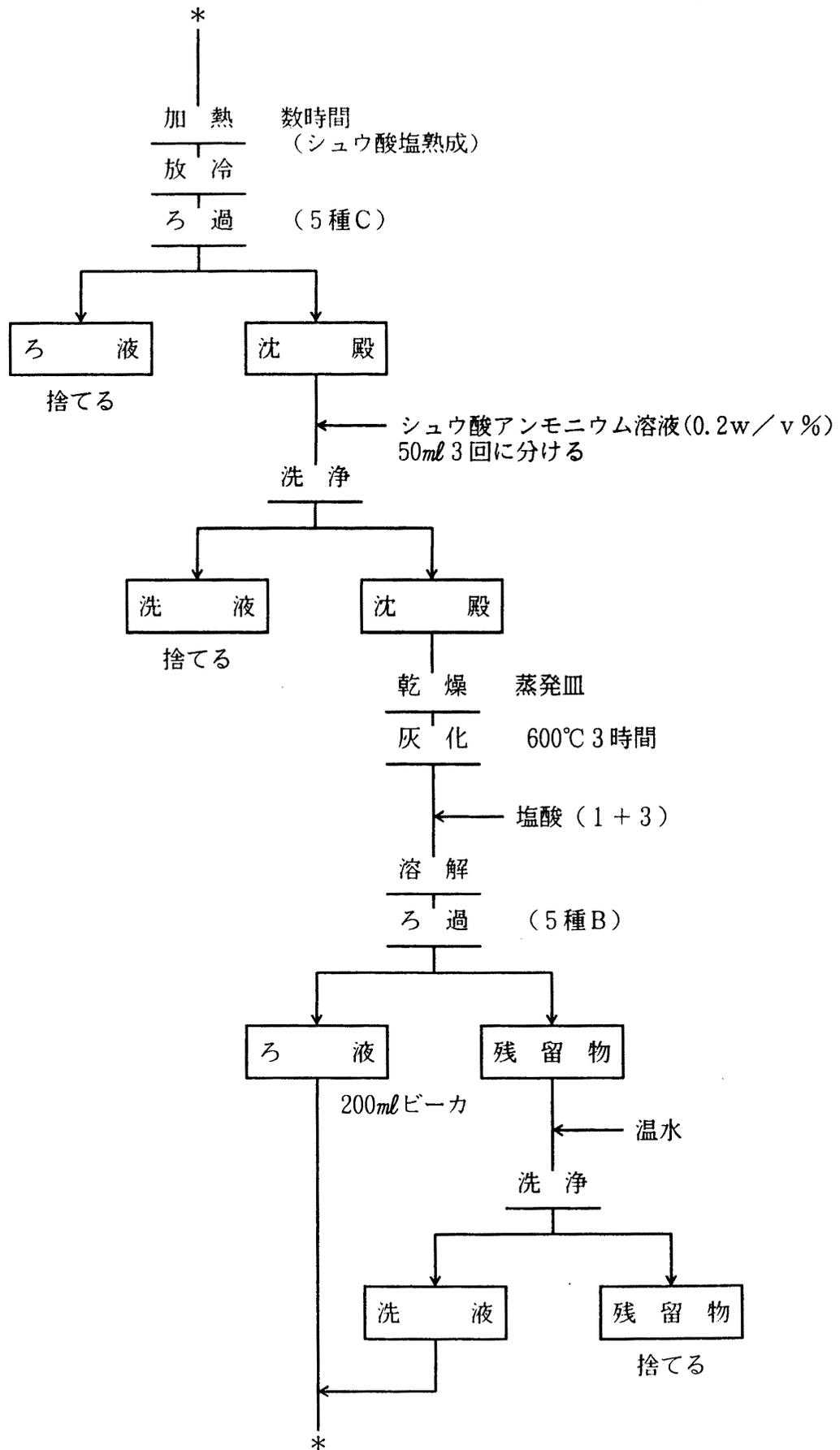
(\*35) 塩酸量が過剰になると(15)で塩化アンモニウムが析出する。塩化アンモニウムが析出した場合はろ過する。

放射性ストロンチウムの分析 (海水)  
シュウ酸塩法

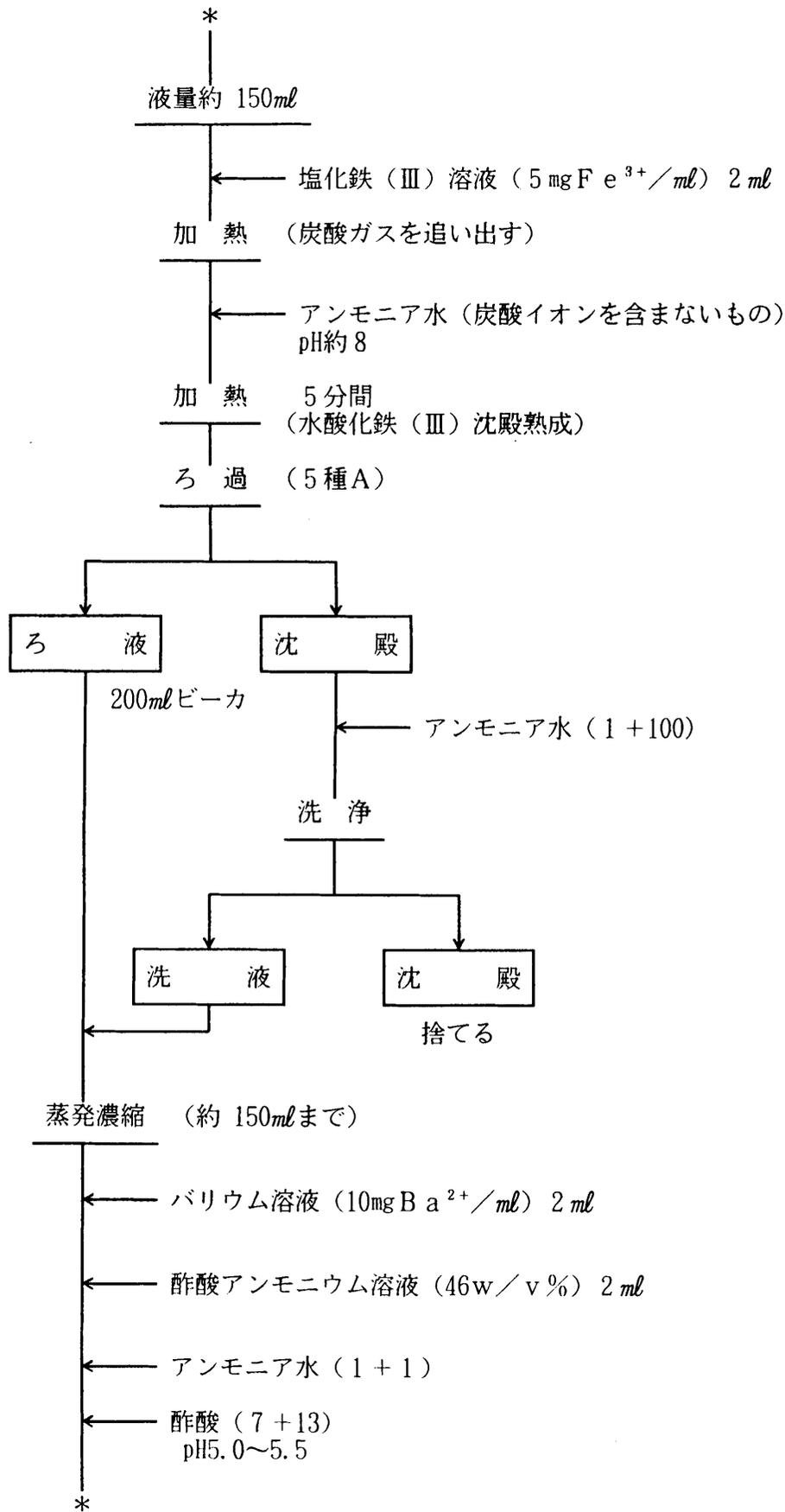
ストロンチウム (シュウ酸塩法)  
-海水- 1/5



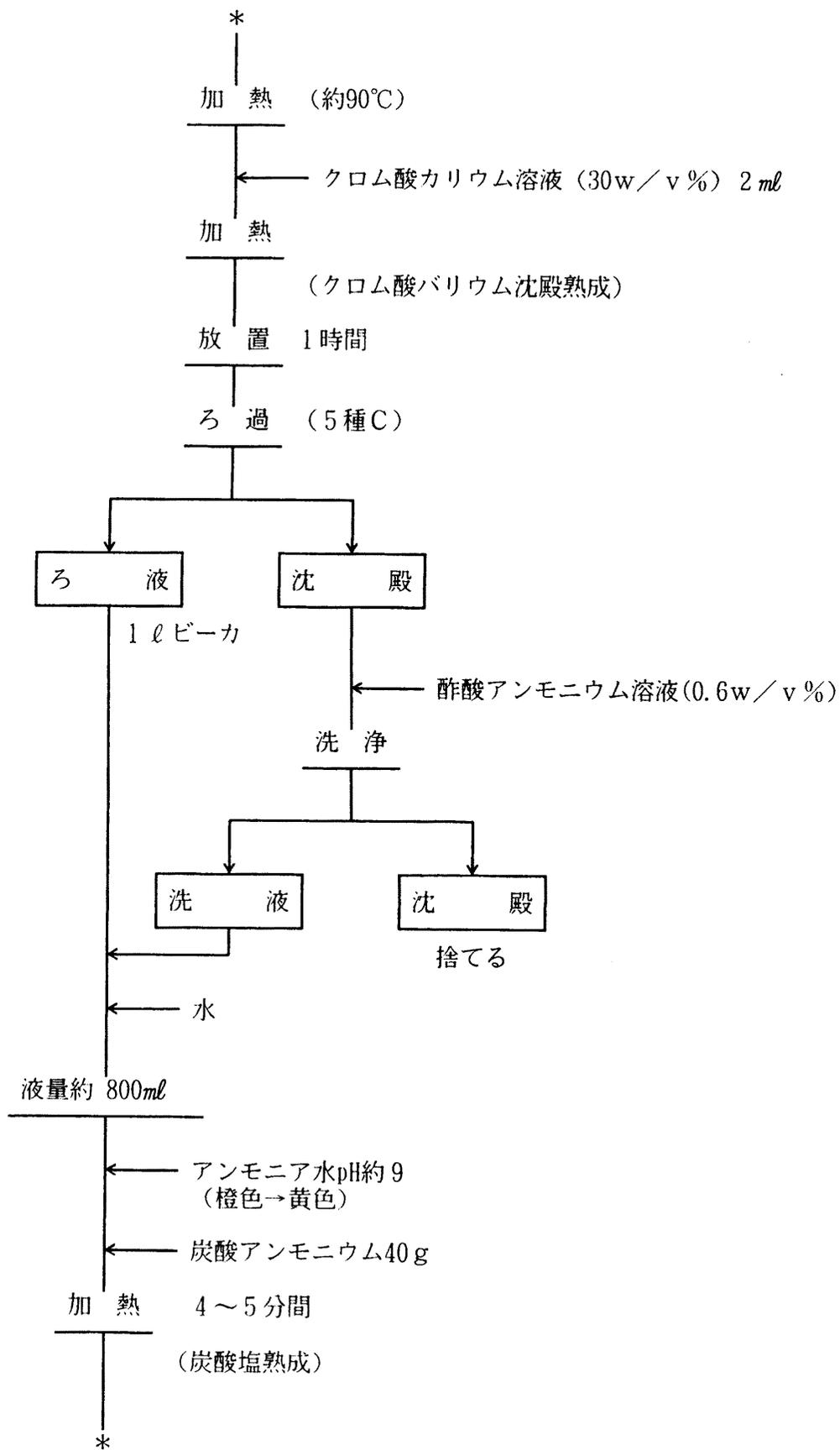
ストロンチウム (シュウ酸塩法)  
 -海水- 2/5



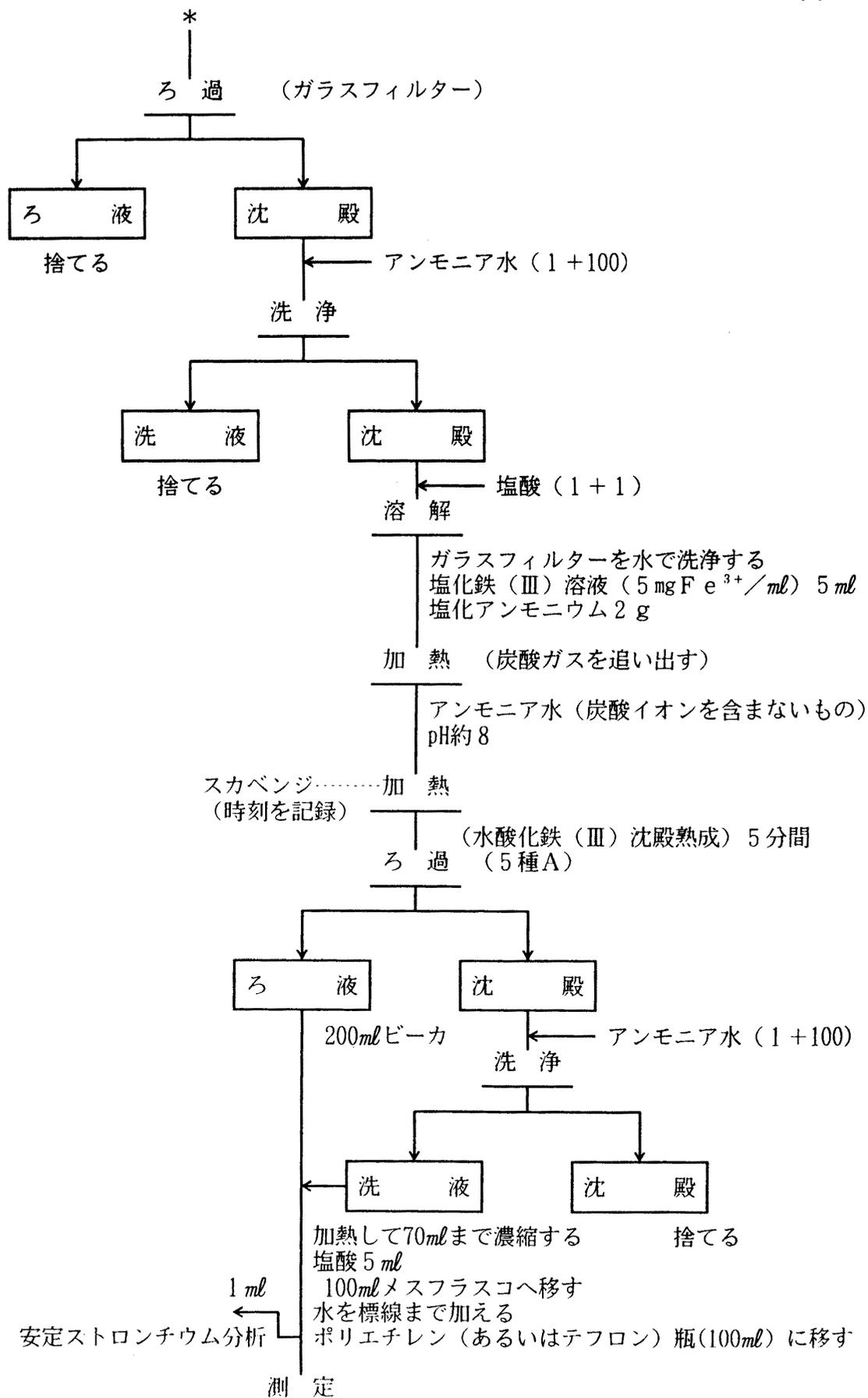
ストロンチウム (シュウ酸塩法)  
—海水— 3/5



ストロンチウム (シュウ酸塩法)  
-海水- 4/5



ストロンチウム (シュウ酸塩法)  
-海水- 5/5



1.1. B.3 標準線源の作製<sup>\*12</sup> ( 3.3 参照 )

1.1. A. 3 と同じ。

1.1. B.4 安定ストロンチウムの定量

〔1〕 回収されたストロンチウムの定量

1.1. A. 4 〔1〕に同じ。

〔2〕 海水中の安定ストロンチウムの定量

A法 (原子吸光光度法)

1.1. A. 4 〔2〕に同じ。

B法 (塩素量による方法)

1.1. A. 4 〔2〕に同じ。

1.1. B.5 放射能測定 (3.5 参照)

1.1. A. 5 に同じ。

1.1. B.6 計算

〔1〕  $^{89}\text{Sr}$  及び  $^{90}\text{Sr}$  の定量

1.1. A. 6 〔1〕に同じ。

〔2〕 ストロンチウムの回収率を次式により計算する。

$$Y = \frac{W_2}{W_3 \times V} \times 100$$

ここで Y : ストロンチウムの回収率 (%)

$W_2$  : 回収されたストロンチウムの量 (mg)

$W_3$  : 海水試料中のストロンチウム濃度 (mg/ℓ)

V : 供試量 (ℓ)

〔3〕 海水 1 ℓ 当りの  $^{90}\text{Sr}$  を 1.1. A. 6 〔3〕により計算する。

〔4〕 海水 1 ℓ 当りの  $^{89}\text{Sr}$  を 1.1. A. 6 〔4〕により計算する。

〔5〕 減衰補正

1.1. A. 6 〔5〕に同じ。

## 1.2 海産生物、穀類、野菜類、牛乳、ドライミルク

海産生物、穀類、野菜類、牛乳、ドライミルクなどの灰を塩酸に溶解して、イオン交換法及びシュウ酸塩法により放射性ストロンチウムを分離し、チェレンコフ光測定により定量する。

ただし、牛乳、ドライミルクなどの灰に対してはHDEHPを用いる溶媒抽出法も適用できる。また安定ストロンチウムは原子吸光法で定量する。この方法により、灰試料10gを処理したとき、100分間測定でおよそ7mBq/g灰の<sup>89</sup>Srが分析できる。<sup>90</sup>Srは、<sup>89</sup>Srを含まない試料の場合およそ4mBq/g灰である。測定試料調製までに要する時間は、イオン交換法で約25時間、シュウ酸塩法で約30時間、溶媒抽出法で約15時間である。

### 1.2.A イオン交換法

#### 1.2.A.1 試薬及び装置

##### (1) 試薬

1.1.A.1(1)に同じ。(ただし、Cl<sup>-</sup>用の試薬を除く)

##### (2) 装置

1.1.A.1(2)に同じ。

#### 1.2.A.2 分析操作<sup>\*36</sup>

(1) 灰試料10gを300mlビーカーにとり、水で湿したのちストロンチウム担体溶液を正確に5ml加え、塩酸(1+1)50mlを加えてホットプレート上で1時間加熱する。ろ紙(5種B)を用いてろ過し、残留物を温水で十分洗浄する。

(2) 灰化が十分でない時は、ろ紙ごと残留物を再び500℃で灰化し、塩酸抽出を繰り返す。

(3) 操作(1)及び(2)のろ液・洗液を合わせ、水を加えて約700mlとする。<sup>\*37</sup>

(4) かき混ぜながら水酸化ナトリウム(顆粒状)を少しずつ加え、pH10以上とする。<sup>\*38</sup>

炭酸ナトリウム20gを加え、かき混ぜながら約80℃で1時間加熱する。放冷し沈澱が完全に沈降するまで静置する。<sup>\*39</sup>

(5) 1.1.A.2 分析操作(2)~(3)に同じ。

---

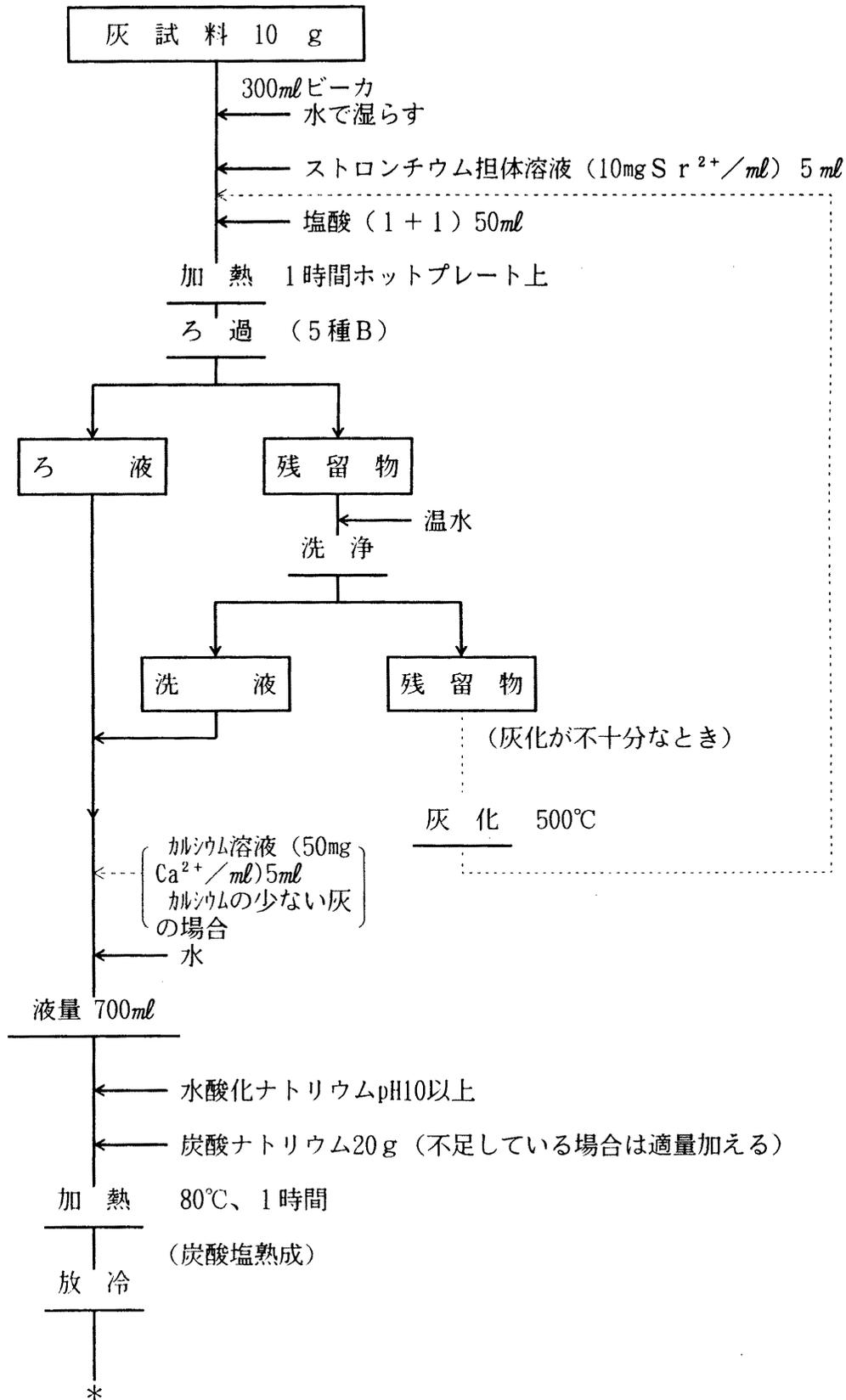
(\*36) ここに示す方法は、カルシウム含量が1g以下の試料を対象としている。それ以上の試料(例えば、小骨を含む魚類試料など)では、樹脂カラムの直径、長さを増加する必要がある。その際は必ずストロンチウムとカルシウムについて溶出曲線を作成する。なお、ここに示す方法についても、分析前に溶出曲線を作成するのが望ましい。

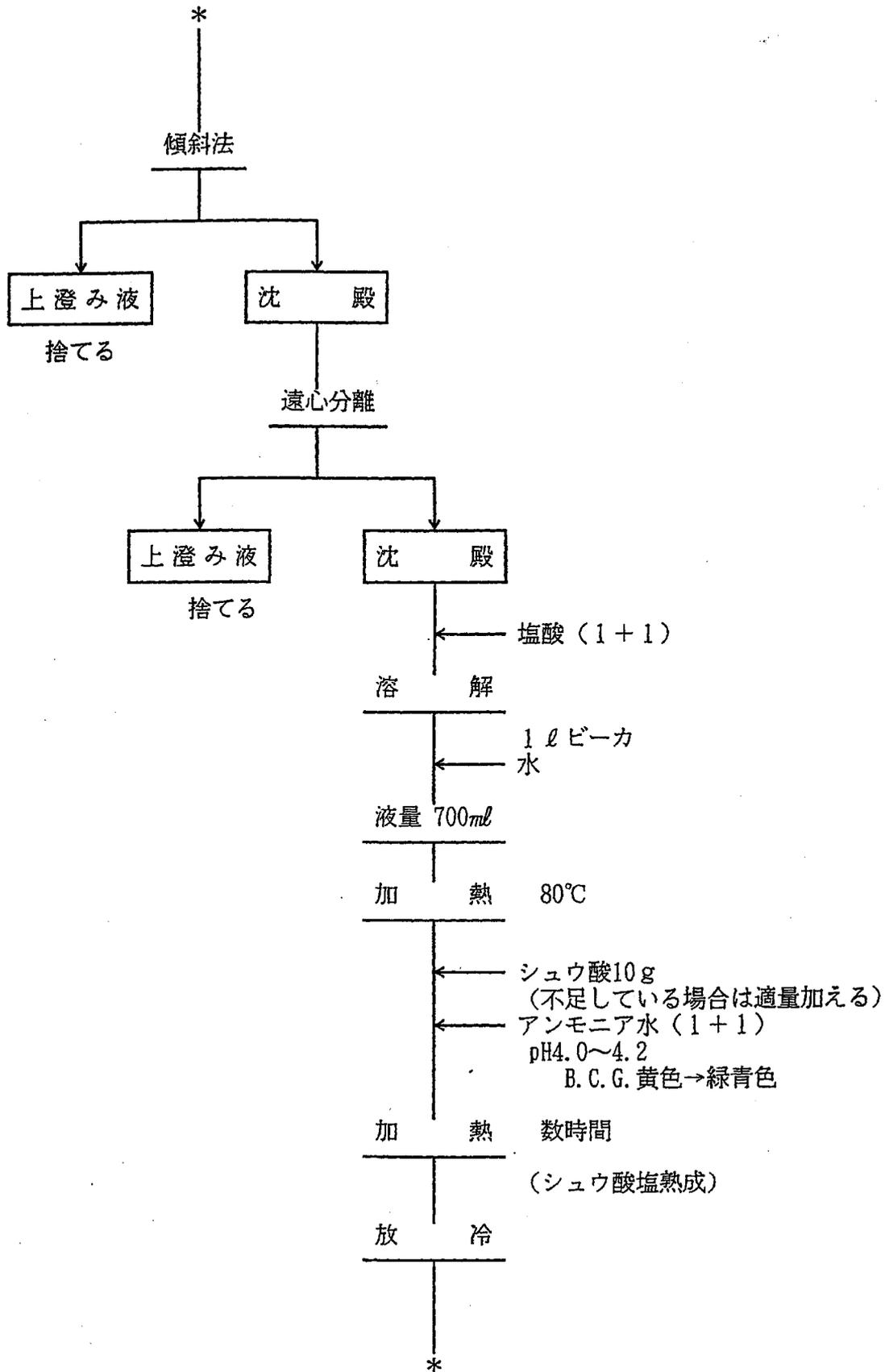
(\*37) 精米、茶葉などには、カルシウム溶液(50mg Ca<sup>2+</sup>/ml)5mlを加えた方がよい。

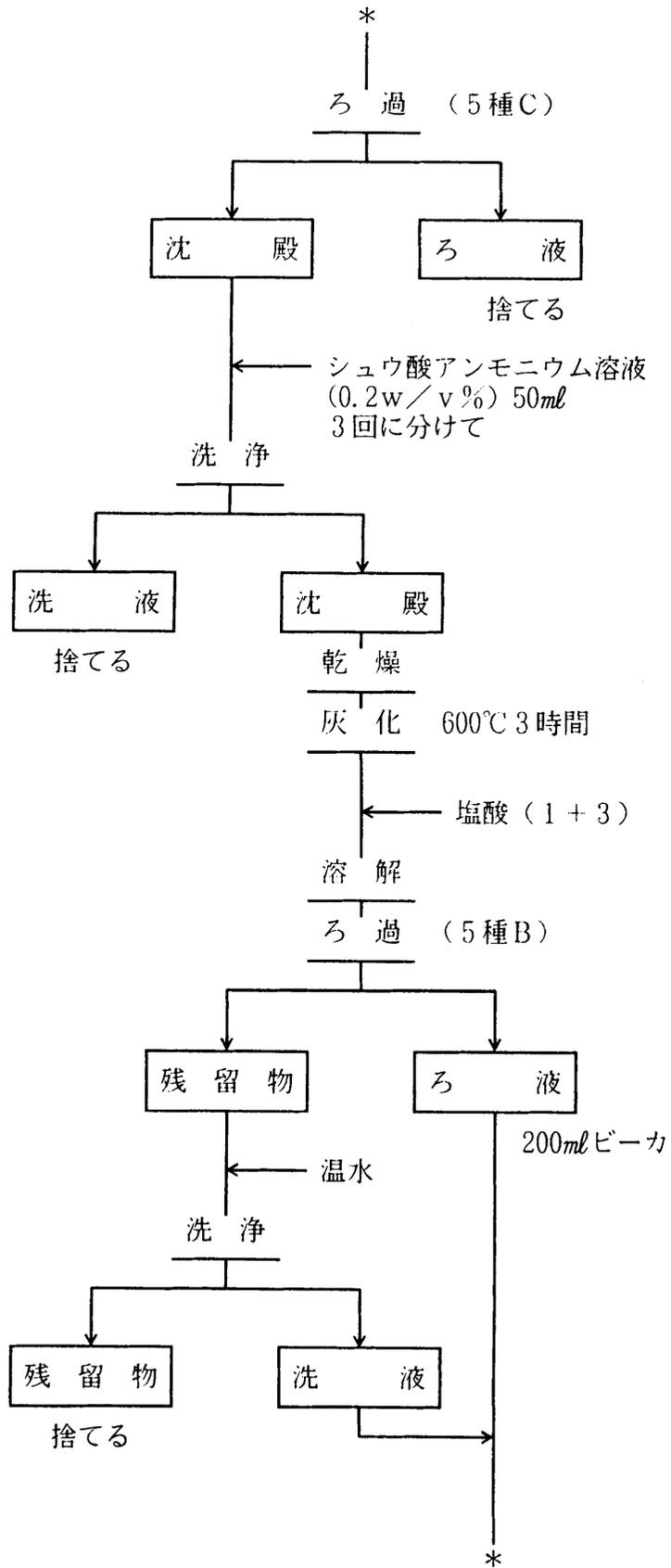
(\*38) 発熱するので十分に注意する。

(\*39) 上澄み液に炭酸ナトリウム溶液(飽和)を滴下し、炭酸塩沈澱の白色の濁りが生じないことを確認する。濁りを生じる場合は、炭酸ナトリウムが不足しているので、追加して操作を繰り返す。

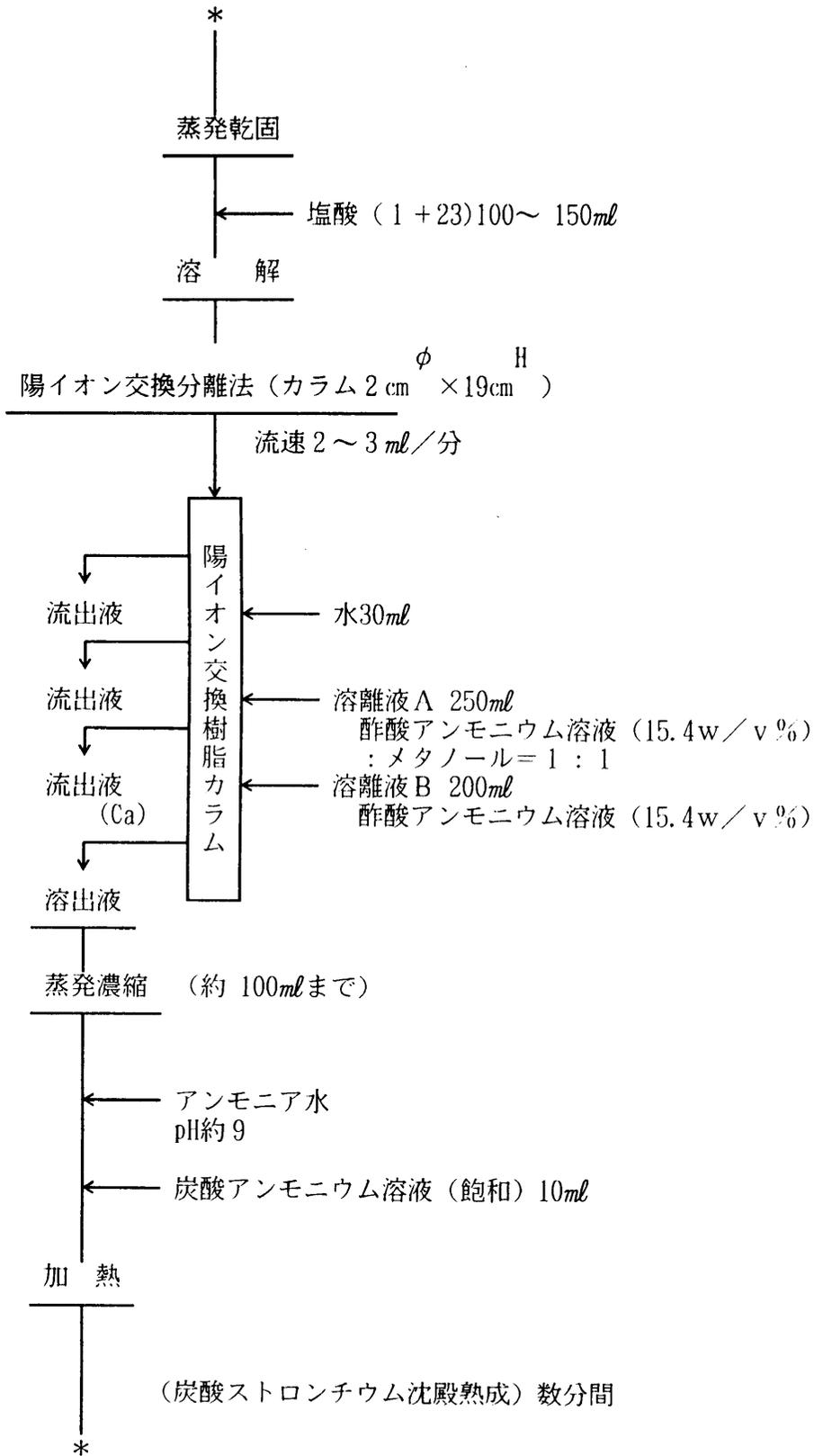
放射性ストロンチウムの分析 (海産生物、穀類、野菜類、牛乳、ドライミルク)  
イオン交換法

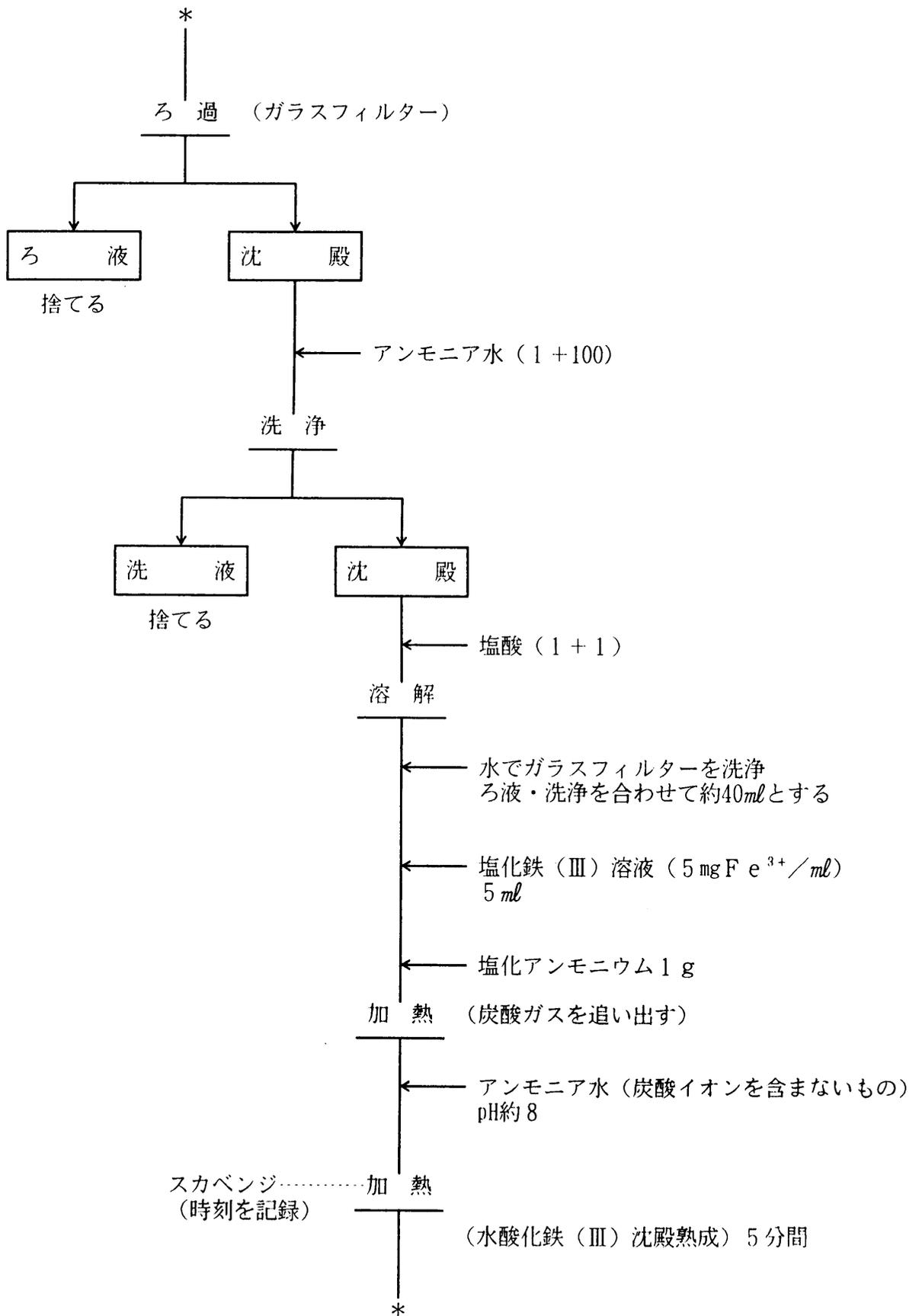


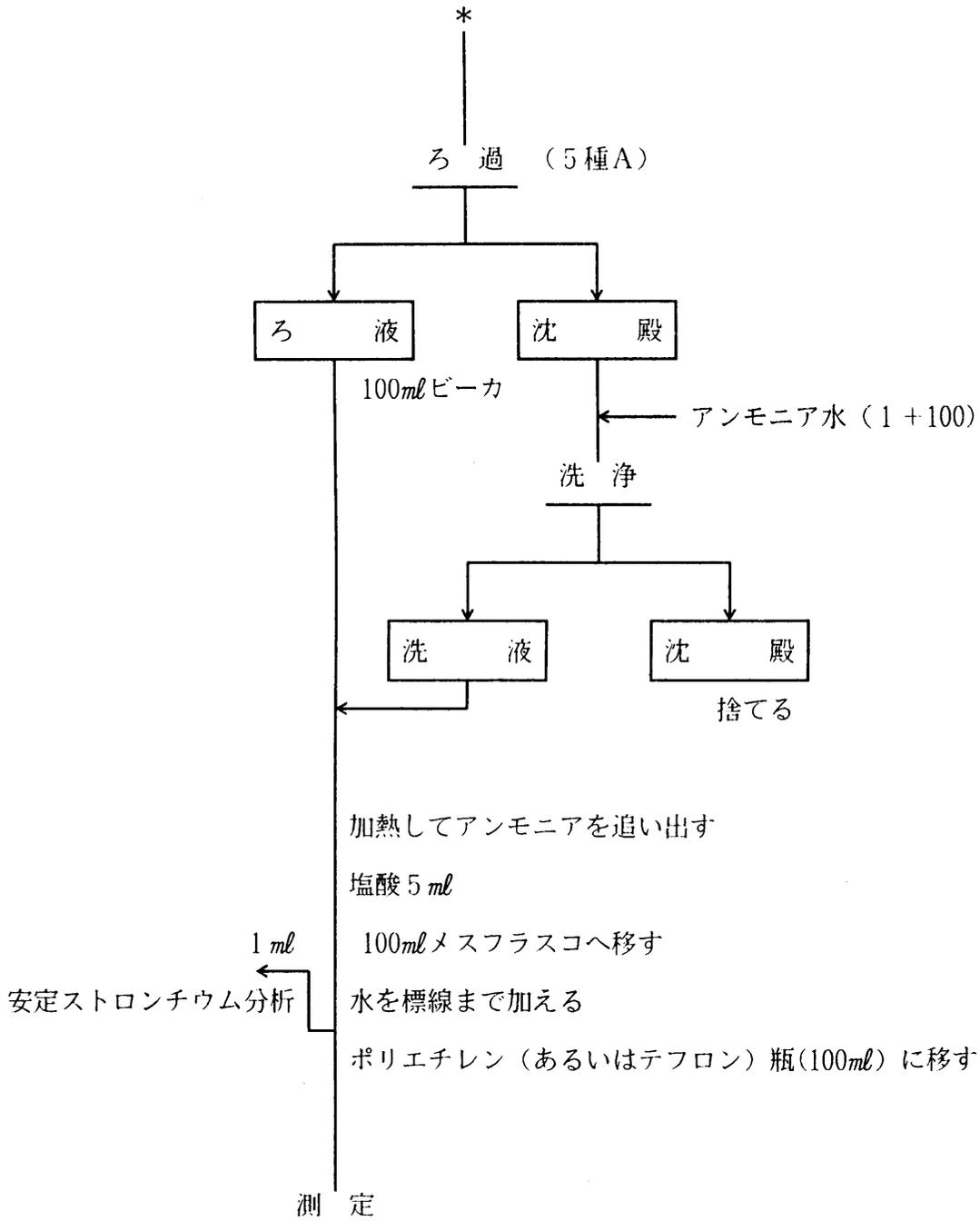




ストロンチウム (イオン交換法)  
- 灰 - 4 / 6







1.2. A.3 標準線源の作製<sup>\*12</sup> ( 3.3 参照 )

1.1. A.3に同じ。

1.2. A.4 安定ストロンチウムの定量

{1} 回収されたストロンチウムの定量

1.1. A.4 {1} に同じ。

{2} 灰試料中の安定ストロンチウムの定量 (原子吸光法)<sup>\*10</sup>

- (1) 灰試料を正確に1~3 g、200 mlビーカーにとり、水で湿したのち塩酸(1+1) 20 mlを加えてホットプレート上で1時間加熱する。ろ紙(5種B)を用いてろ過し、残留物を温水で十分洗浄する。
- (2) 灰化が十分でない時は、ろ紙ごと残留物を再び500℃で灰化し、塩酸抽出を繰り返す。
- (3) 操作(1)及び(2)のろ液・洗液を合わせ、200 mlビーカーに移す。約80℃に加熱しシュウ酸5 gを加え、アンモニア水(1+1)でpH 4.0~4.2(BCG試験紙、黄色→緑青色)に調整する。数時間加熱して沈澱を熟成し、放冷する。
- (4) 沈澱をガラスフィルター(NoG-4)を用いて吸引ろ別し、少量のシュウ酸アンモニウム溶液(0.2w/v%)で洗浄する。
- (5) 沈澱をできるだけ少量の塩酸(1+1)に溶解し、50 mlメスフラスコ内に吸引ろ過する。ガラスフィルター(NoG-4)を水で洗浄し、同じく吸引ろ過する。水を標線まで加える。
- (6) この溶液を25 mlメスフラスコ4個に正確に5 mlずつ分取し、次に標準ストロンチウム溶液(25mg Sr<sup>2+</sup>/ℓ)<sup>\*41</sup>をそれぞれ正確に0、1、2、3 mlずつ加え、水を標線まで加える。

---

(\*40) 精米、牛乳などは含量が非常に少なく、定量する必要はない。

(\*41) ストロンチウム濃度が約1.5mg/ℓになるように希釈するのが望ましい。ここに示す分取量は一例であるので注意する。

(7) 1.1. A.4〔1〕に準じ、吸光度を測定してストロンチウム濃度、 $P(\text{mg}/\ell)$  を求め、  
希釈倍率より灰中のストロンチウム量、 $W_3$ (灰中%) を求める。<sup>\*42</sup>

1.2. A.5 放射能測定 (3.5 参照)

1.1. A.5に同じ。

1.2. A.6 計算

〔1〕  $^{89}\text{Sr}$  及び  $^{90}\text{Sr}$  の定量

1.1. A.6〔1〕に同じ。

〔2〕 ストロンチウムの回収率を次式により計算する。

$$Y = \frac{W_2}{W_1 + W_3 \times M \times 10} \times 100$$

ここで  $Y$  : ストロンチウムの回収率 (%)

$W_1$  : 加えた担体ストロンチウムの量 (mg)

$W_2$  : 回収されたストロンチウムの量 (mg)

$W_3$  : 灰中のストロンチウム濃度 (灰中%)

$M$  : 供試量 (g)

〔3〕 生重量 1 kg 当たりの  $^{90}\text{Sr}$  を次式により計算する。<sup>\*43</sup>

$$A_{90} \pm \Delta_{90} = (A_{90}^{\circ} \pm \Delta_{90}^{\circ}) \times \frac{K \times 10}{M}$$

ここで  $A_{90}$  : 1 kg 当りの  $^{90}\text{Sr}$  (Bq/kg)

$\Delta_{90}$  : 同上誤差

$K$  : 灰分 (%)

$M$  : 供試量 (g)

$A_{90}^{\circ}$  : 供試量中に含まれる  $^{90}\text{Sr}$  (Bq)

$\Delta_{90}^{\circ}$  : 同上誤差

〔4〕 牛乳 1  $\ell$  当たりの  $^{90}\text{Sr}$  を次式により計算する。

$$A_{90} \pm \Delta_{90} = (A_{90}^{\circ} \pm \Delta_{90}^{\circ}) \times \frac{K}{M}$$

ここで  $A_{90}$  : 1  $\ell$  当りの  $^{90}\text{Sr}$  (Bq/ $\ell$ )

$\Delta_{90}$  : 同上誤差

---

(\*42) 例えば、この希釈では、供試量を 2 g として、 $W_3 = P \times 25(50/5) \times (1/10^3) \times (1/2) \times (1/10)$  (灰中%) となる。

(\*43) 牛乳については、それぞれ〔4〕及び〔6〕に従う。

K : 1 ℓ 分の灰の量 (g/ℓ)

M : 供試量 (g)

$A_{90}^{\circ}$  : 供試量中に含まれる<sup>90</sup>Sr (Bq)

$\Delta_{90}$  : 同上誤差

〔5〕 生重量 1 kg 当たりの<sup>89</sup>Sr を次式により計算する。

$$A_{89} \pm \Delta_{89} = (A_{89}^{\circ} \pm \Delta_{89}^{\circ}) \times \frac{K \times 10}{M}$$

ここで  $A_{89}$  : 1 kg 当たりの<sup>89</sup>Sr (Bq/kg)

$\Delta_{89}$  : 同上誤差

K : 灰分 (%)

M : 供試量 (g)

$A_{89}^{\circ}$  : 供試量中に含まれる<sup>89</sup>Sr (Bq)

$\Delta_{89}^{\circ}$  : 同上誤差

〔6〕 牛乳 1 ℓ 当たりの<sup>89</sup>Sr を次式により計算する。

$$A_{89} \pm \Delta_{89} = (A_{89}^{\circ} \pm \Delta_{89}^{\circ}) \times \frac{K}{M}$$

ここで  $A_{89}$  : 1 ℓ 当りの<sup>89</sup>Sr (Bq/ℓ)

$\Delta_{89}$  : 同上誤差

K : 1 ℓ 分の灰の量 (g/ℓ)

M : 供試量 (g)

$A_{89}^{\circ}$  : 供試量中に含まれる<sup>89</sup>Sr (Bq)

$\Delta_{89}^{\circ}$  : 同上誤差

〔7〕 減衰補正

1.1.A.6 〔5〕 に同じ。

## 1.2. B シュウ酸塩法

### 1.2. B.1 試薬及び装置

#### 〔1〕 試薬

1.1. B.1 〔1〕に同じ。(ただし、 $\text{Cl}^-$ 用試薬を除く)

#### 〔1〕 装置

1.1. A.1 〔2〕に同じ。

### 1.2. B.2 分析操作

(1) 1.2. A.2 (1)~(4)に同じ。

(2) 1.1. B.2 (2)~(5)に同じ。

### 1.2. B.3 標準線源の作製<sup>\*12</sup> (3.3 参照)

1.1. A.3に同じ。

### 1.2. B.4 安定ストロンチウムの定量

#### 〔1〕 回収されたストロンチウムの定量

1.1. A.4〔1〕に同じ。

#### 〔2〕 灰試料中の安定ストロンチウムの定量

1.2. A.4〔2〕に同じ。

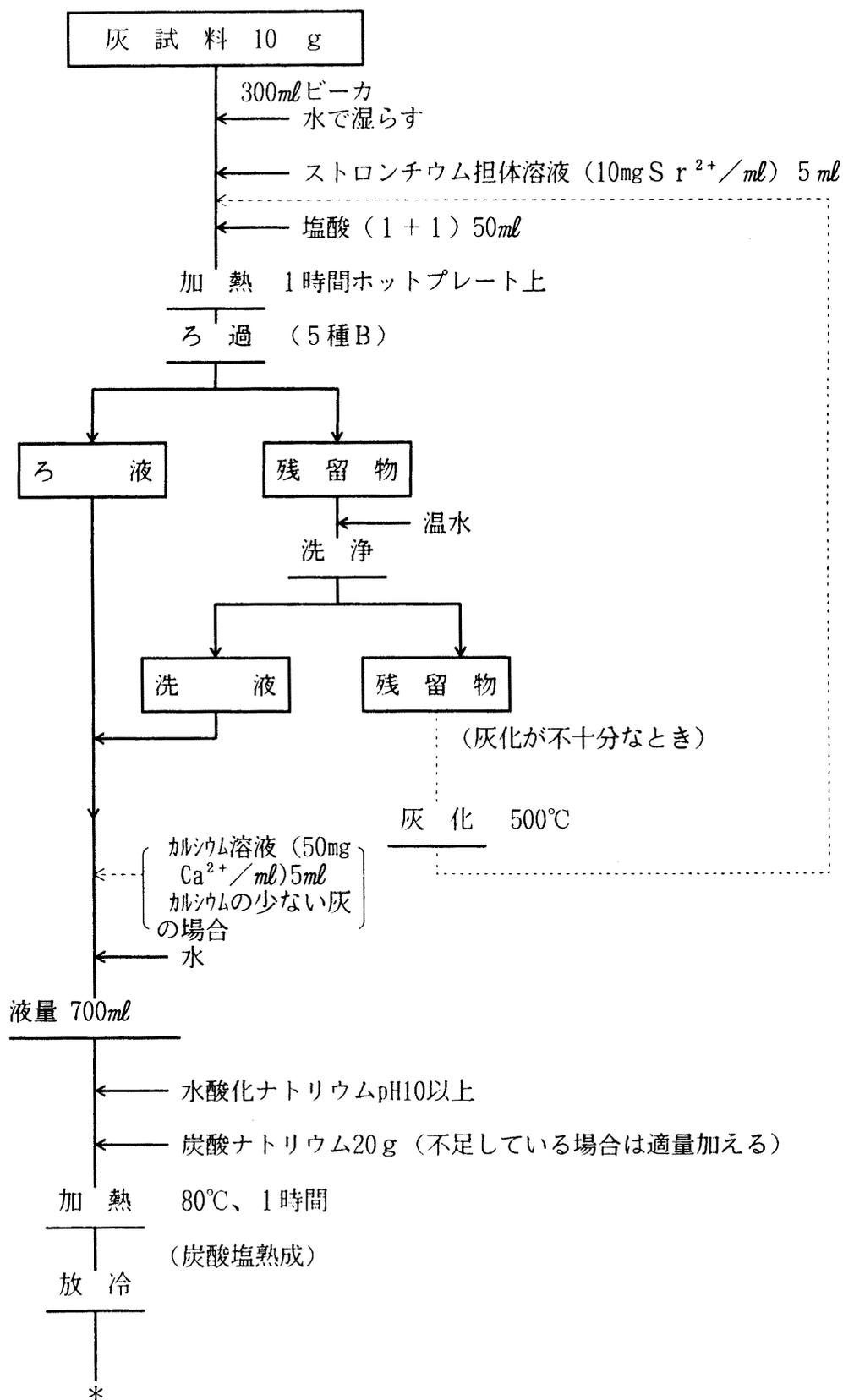
### 1.2. B.5 放射能測定 (3.5 参照)

1.1. A.5に同じ。

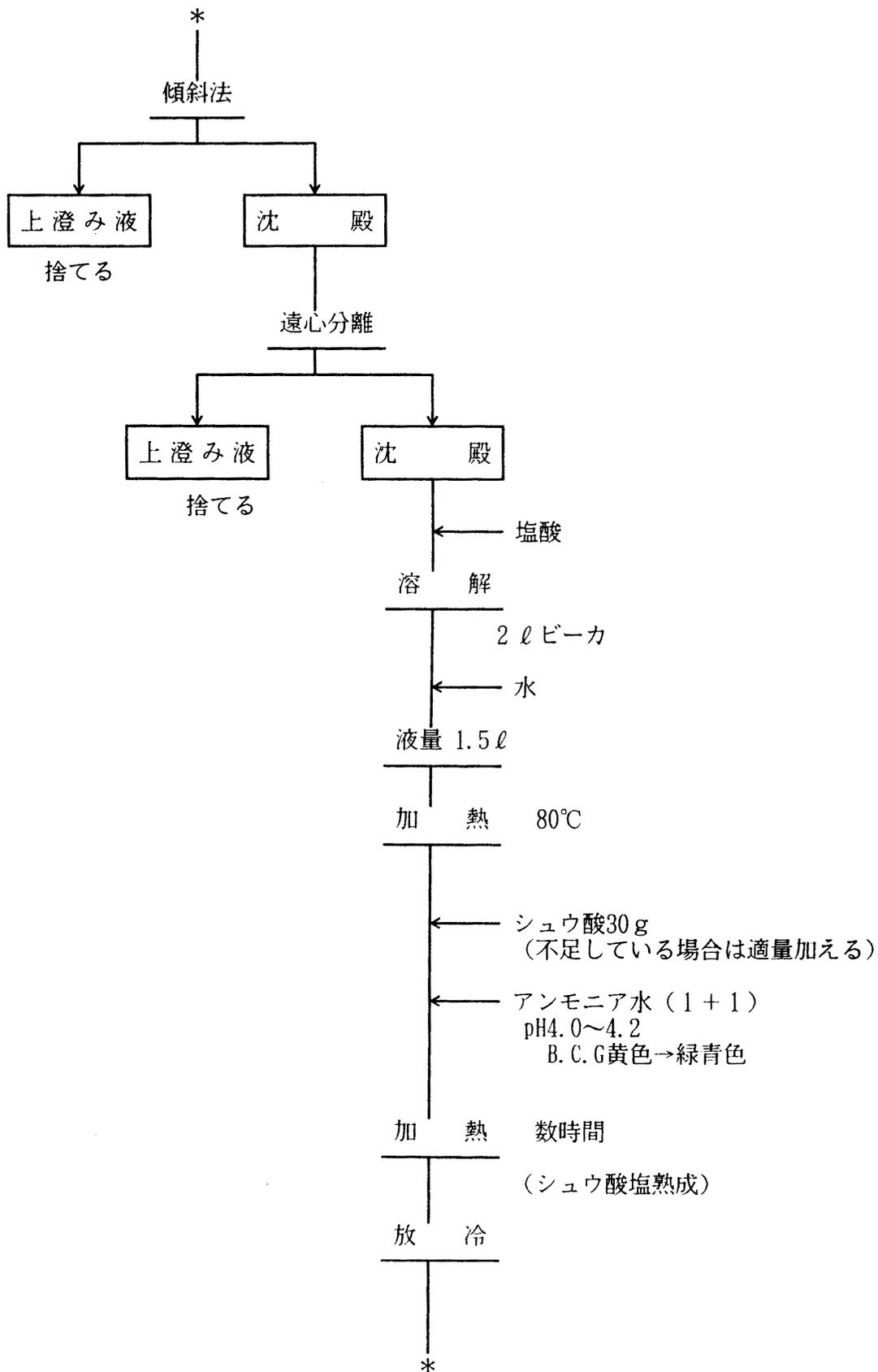
### 1.2. B.6 計算

1.2. A.6に同じ。

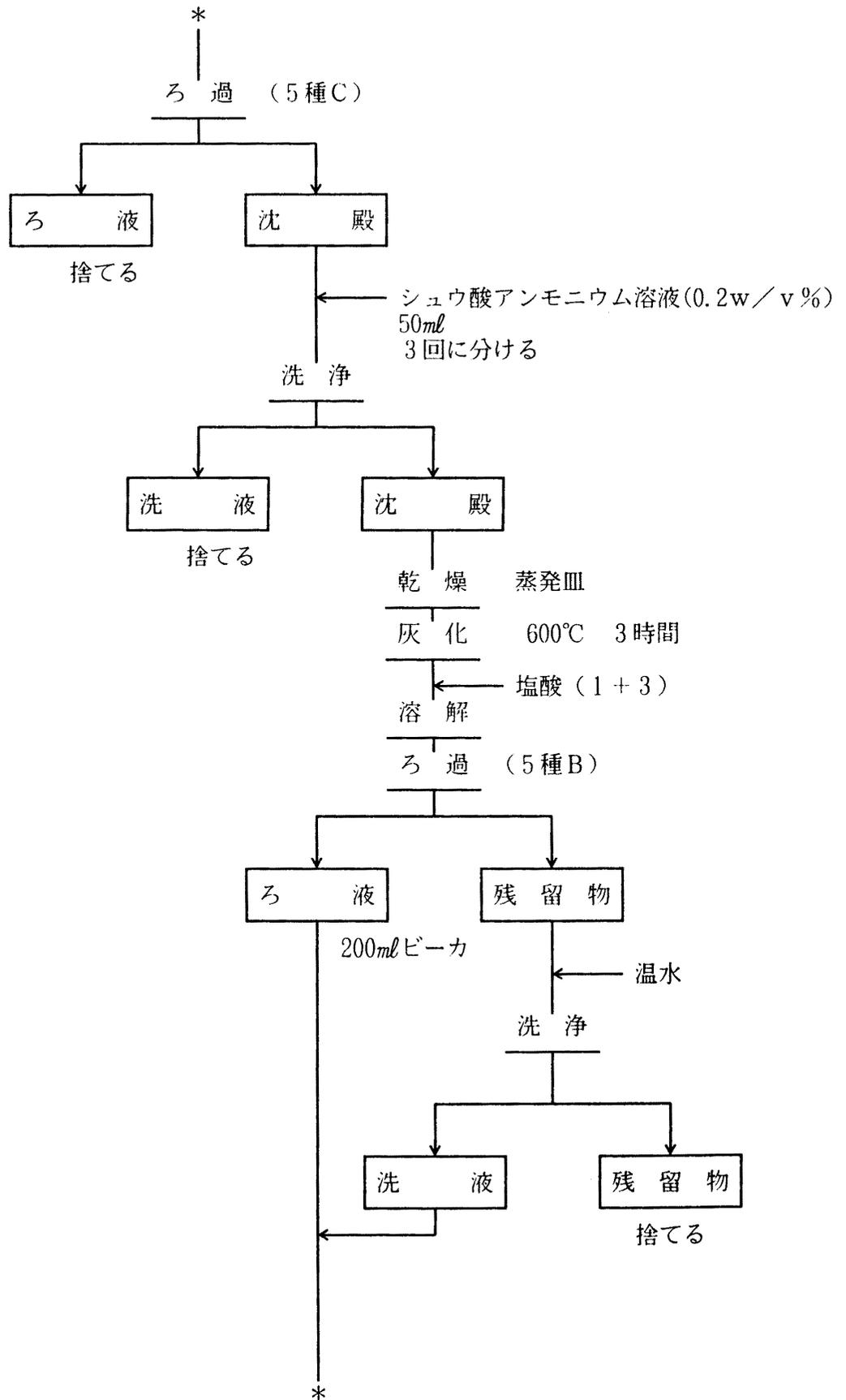
放射性ストロンチウムの分析 (海産生物、穀類、野菜類、牛乳、ドライミルク)  
シュウ酸塩法



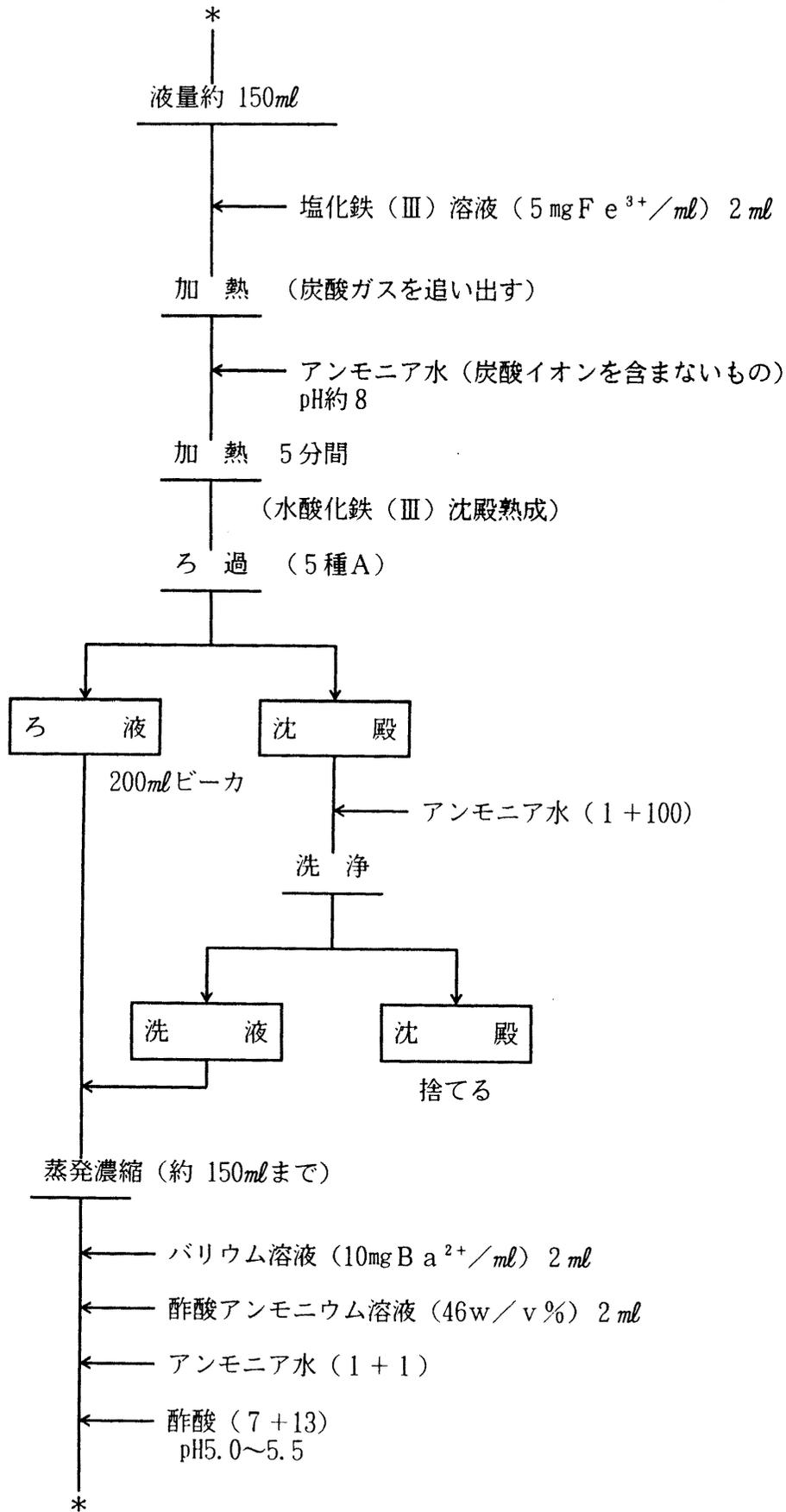
ストロンチウム (シュウ酸塩法)  
-灰- 2/6



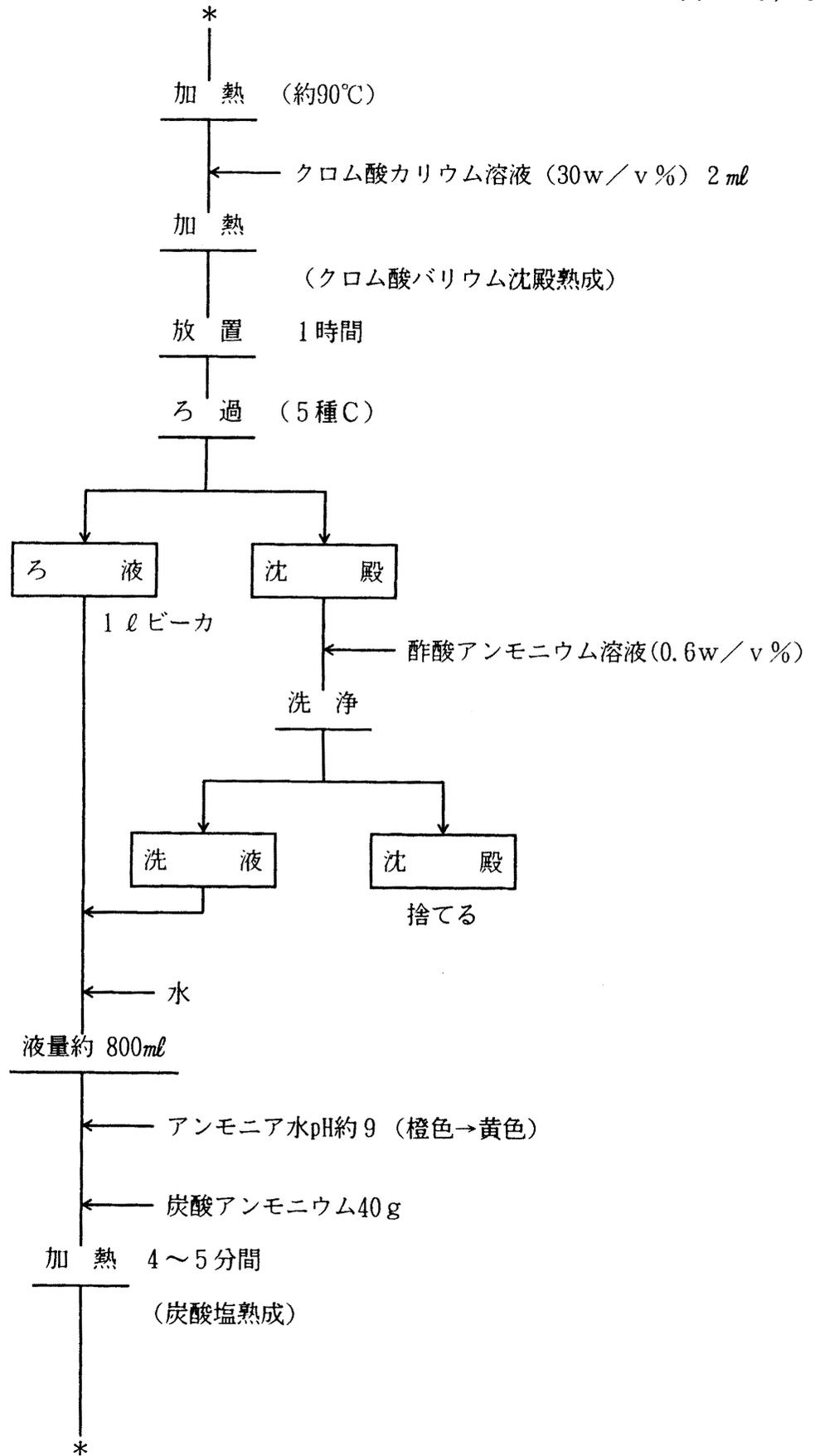
ストロンチウム (シュウ酸塩法)  
 -灰- 3/6



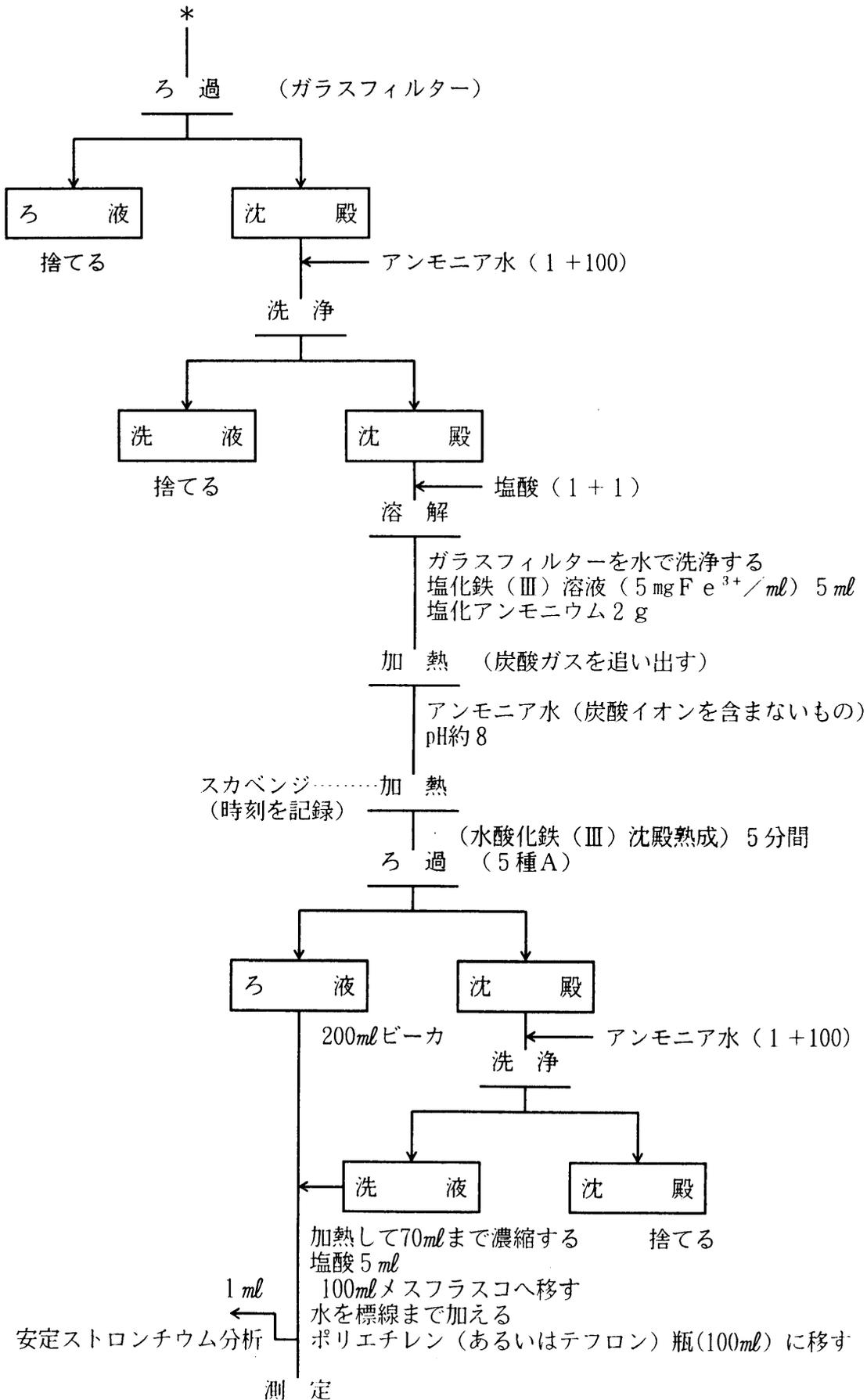
ストロンチウム (シュウ酸塩法)  
-灰- 4/6



ストロンチウム (シュウ酸塩法)  
-灰- 5/6



ストロンチウム (シュウ酸塩法)  
 - 土壌 - 6 / 6



## 1.2. C 溶媒抽出法

牛乳、ドライミルクなどの灰試料中の $^{90}\text{Sr}$ の分析に適用する。この方法により、灰試料10gを処理したとき、100分間測定でおよそ4mBq / gの $^{90}\text{Sr}$ が分析できる。

### 1.2. C.1 試薬

#### (1) 標準溶液及び担体溶液

ストロンチウム担体溶液 (10mg  $\text{Sr}^{2+}$  / ml)

イットリウム担体溶液 (1 mg  $\text{Y}^{3+}$  / ml)

#### (2) 酸

シュウ酸

王水

塩酸 (1 + 1 1)、塩酸 (1 + 1)、塩酸 (2 + 1)

硝酸 (1 + 1)

#### (3) 塩基

アンモニア水 (1 + 1 0 0)、アンモニア水 (1 + 1)

#### (4) 塩類

シュウ酸アンモニウム溶液 (0.2w/v%)

#### (5) 有機溶媒

トルエン

HDEHP-トルエン溶液 (2 : 1 容積比)

### 1.2. C.2 分析操作

- (1) 灰試料10gを300mlビーカーにとり、水で湿したのちイットリウム担体溶液を正確に10ml及びストロンチウム担体溶液1mlを加える。<sup>\*44</sup> 王水40mlを加え、時計皿でおおい、ホットプレート上で蒸発乾固する。塩酸 (1 + 1) 25mlを加え、短時間加熱して溶解する。ろ紙 (5種B) を用いてろ過し、残留物を塩酸 (1 + 1) 10mlと水で洗浄する。ろ液・洗液を合わせ、水を加えて200 mlとする。

---

(\*44)  $^{137}\text{Cs}$  を同時に分析する場合はセシウムの担体も加える。

- (2) 300 ml分液漏斗に、HDEHP-トルエン溶液40mlと塩酸(1+11) 200 mlを取り1分間振り混ぜた後、10分間静置して水層を除く(予備平衡)。これに調製した試料溶液を加えて1分間振り混ぜる。10分間静置したのち、水層を除く。<sup>\*45</sup> <sup>\*46</sup>(このときの時刻を記録する。ミルクング時刻)
- (3) 新たに塩酸(1+11) 20ml(保持担体Sr<sup>2+</sup> 5mgを含む)を加えて1分間振り混ぜる。10分間静置したのち、水層を除く。分液漏斗の壁面にそって、塩酸(1+11) 10mlを加え、しばらく放置したのち水層を除く。
- (4) 塩酸(2+1) 20mlを加えて1分間振り混ぜ、静置する。
- (5) 水層を100ml分液漏斗に移す。
- (6) 残った有機層に対して、操作(4)を繰り返す。
- (7) 水層を操作(5)の水層に合わせ、トルエン20mlを加えて1分間振り混ぜ、静置する。
- (8) 水層をビーカに移し、アンモニア水(1+1)でpH約8として水酸化イットリウムを沈澱させる。ろ紙(5種A)を用いてろ過し、沈澱をアンモニア水(1+100)で洗浄する。
- (9) 沈澱を少量の硝酸(1+1)に溶解し、ろ紙を温水50mlで洗浄する。
- (10) ろ液・洗液を合わせ、ホットプレート上で加温しシュウ酸2gを加える。アンモニア水(1+1)を加えてpH 1.0~1.5に調整し、シュウ酸イットリウムを沈澱させ、さらにホットプレート上で約10分間加温したのち、室温で約20分間放置する。
- (11) 沈澱を分離型フィルターとろ紙(5種C)を用いてろ別する。沈澱をシュウ酸アンモニウム溶液で洗浄する。
- (12) 沈澱を塩酸(1+1) 10mlに溶解し、ポリエチレン(あるいはテフロン)瓶<sup>\*47</sup>(100ml)に吸引ろ過する。ろ紙を水で洗浄し、同じく吸引ろ過する。
- (13) ポリエチレン(あるいはテフロン)瓶(100ml)に、全量100mlになるまで水を加えて測定試料とする。<sup>\*47</sup>

---

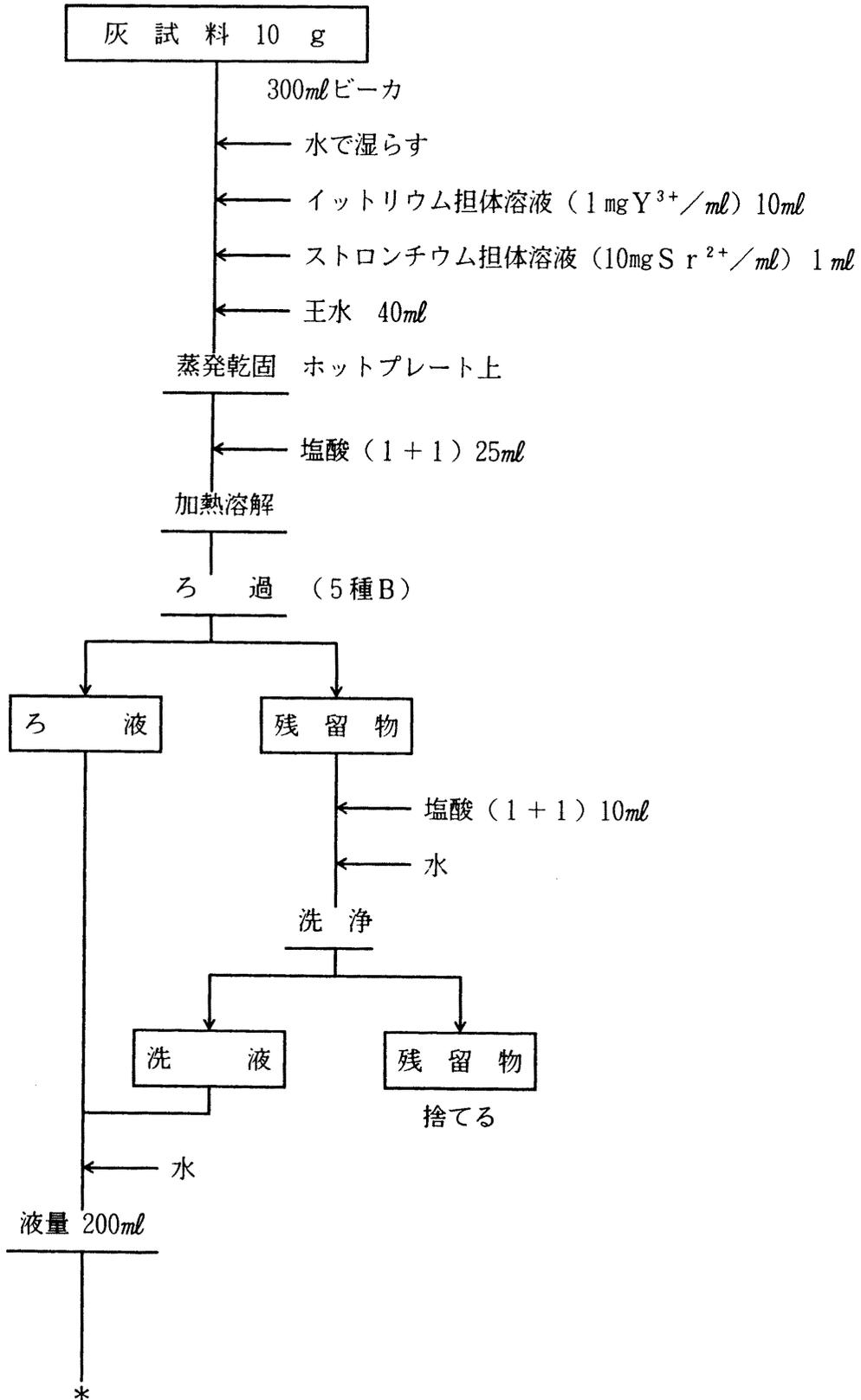
(\*45) 水層は放射性セシウムの分析に使用できる。

(\*46) これよりのちの操作(3)~(13)は、すみやかに行わなければならない。

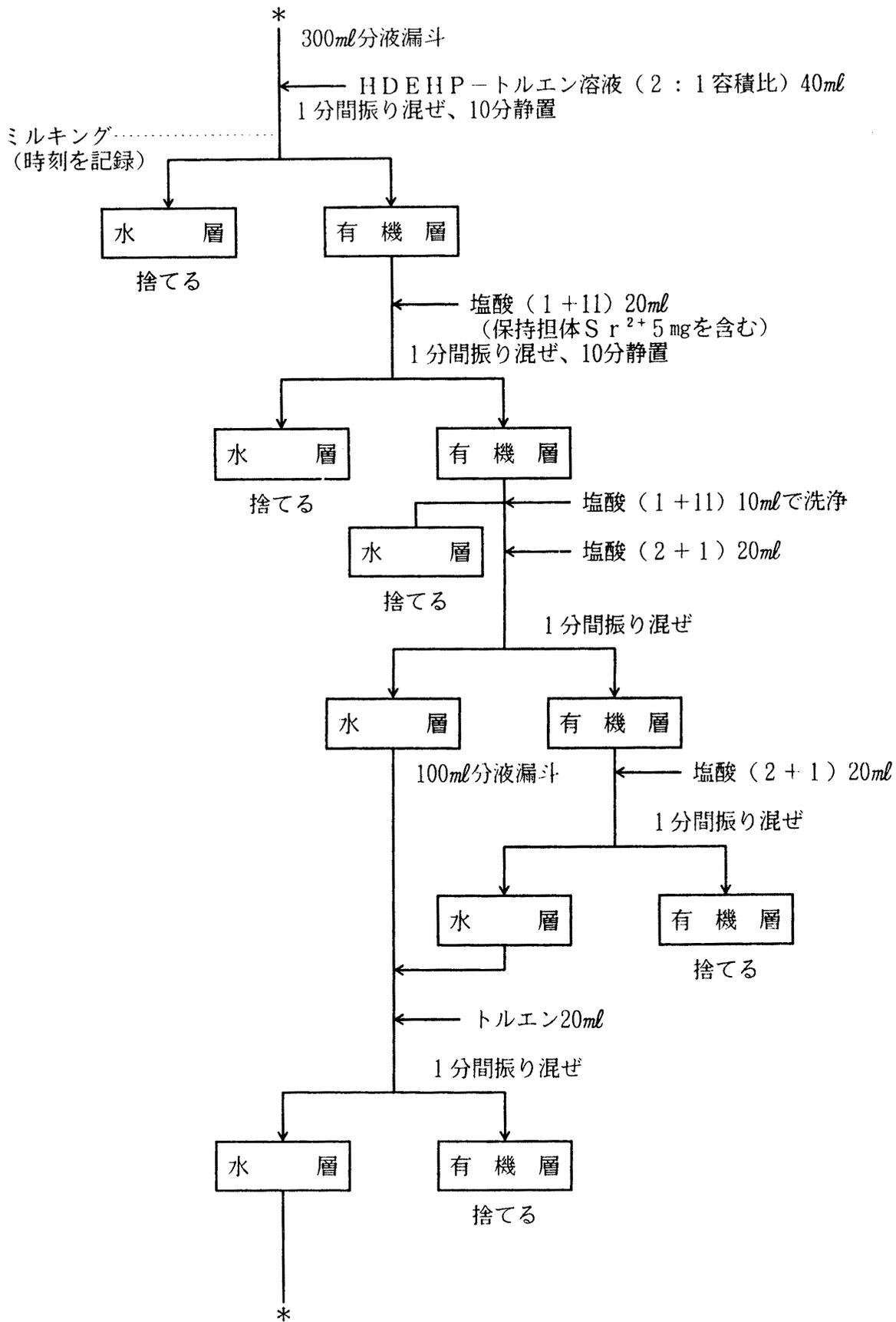
(\*47) あらかじめ測定瓶の風袋を測っておき、測定試料を100g(≒100ml)にする。

放射性ストロンチウムの分析 (牛乳、ドライミルク)

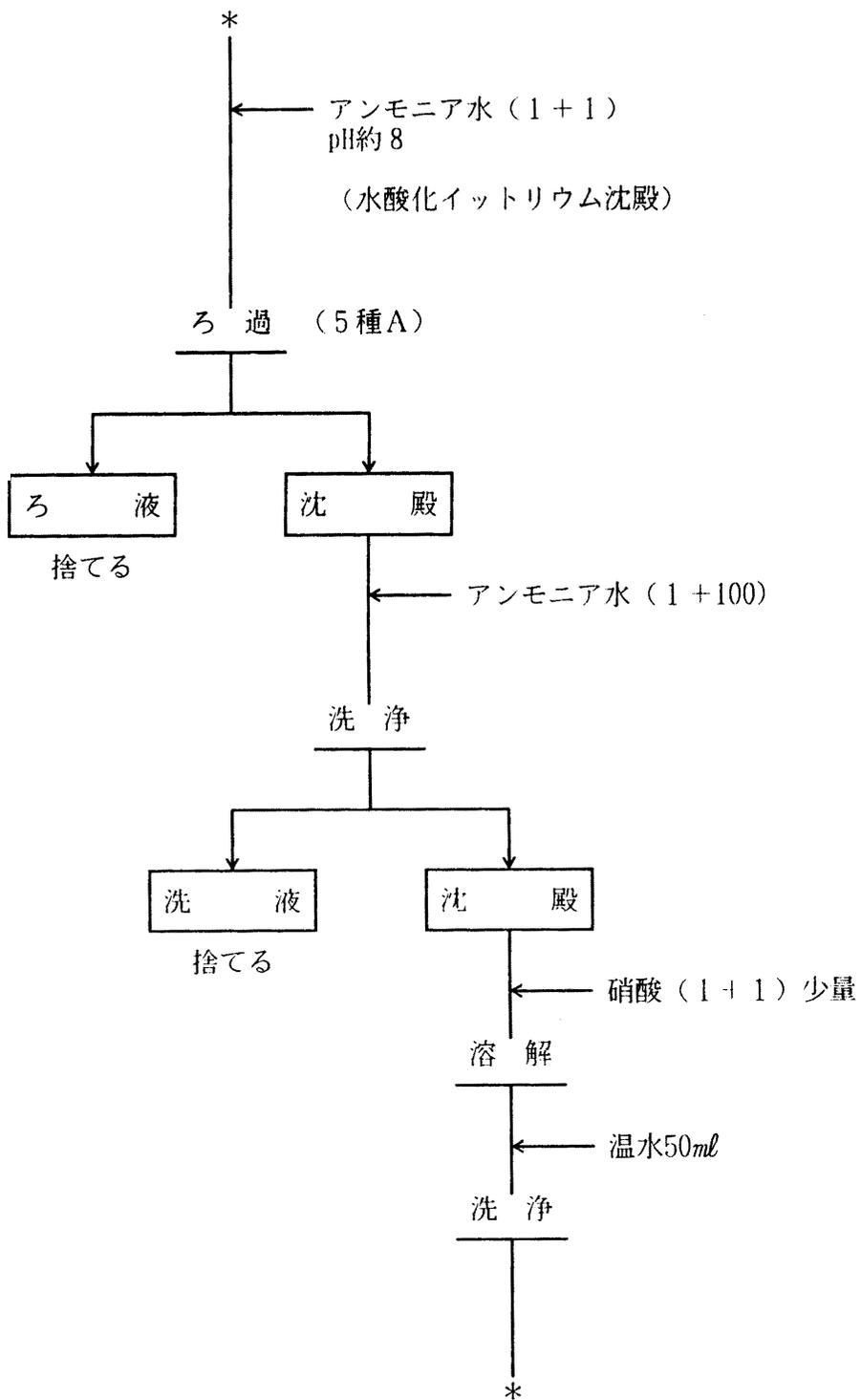
溶媒抽出法



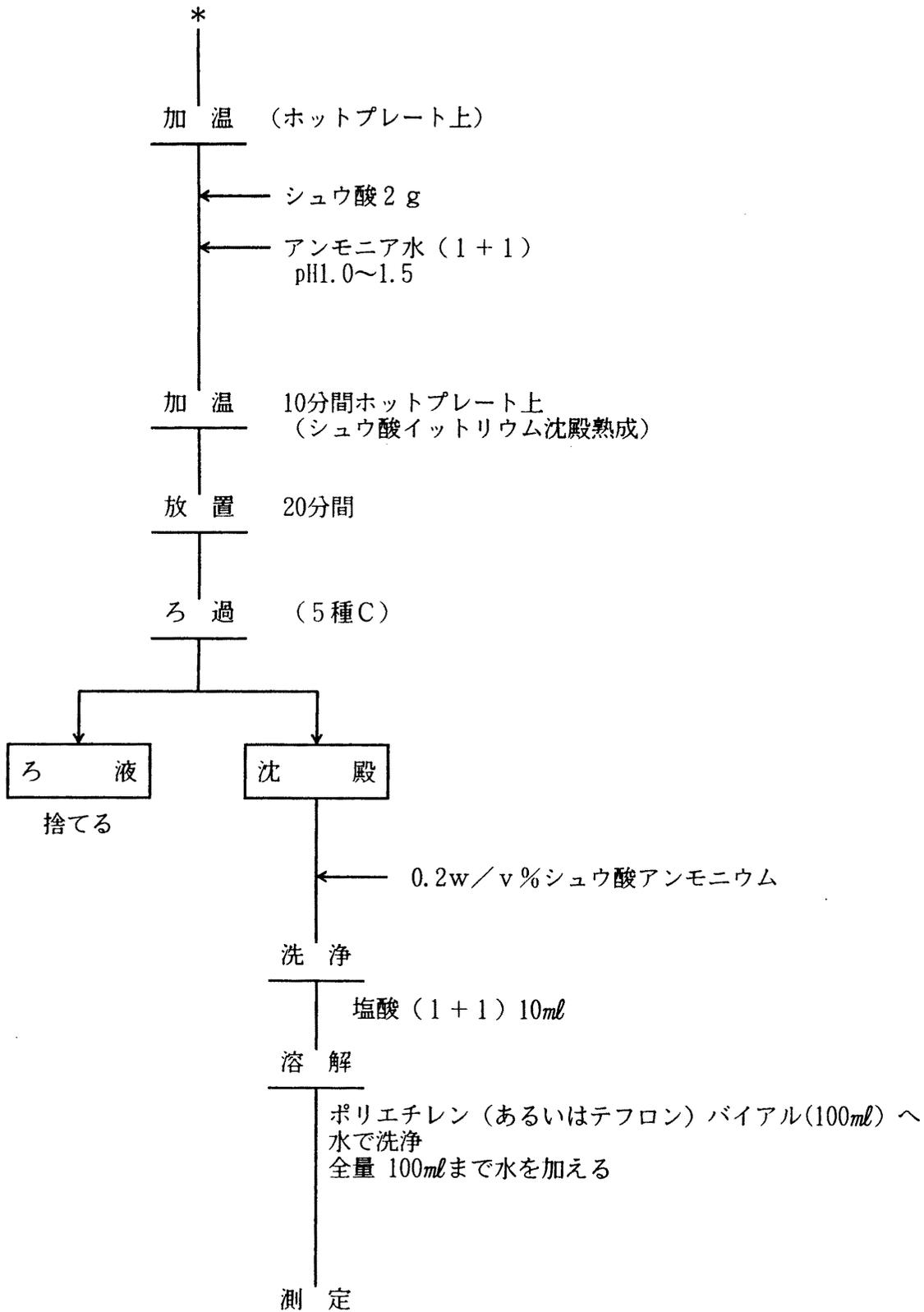
ストロンチウム (溶媒抽出法)  
 -灰- 2/4



ストロンチウム (溶媒抽出法)  
-灰- 3/4



ストロンチウム (溶媒抽出法)  
- 灰 - 4 / 4



### 1.2. C.3 標準線源の作製<sup>\*12</sup> (3.3 参照)

1.1. A.3 に同じ。

### 1.2. C.4 回収されたイットリウム定量

- (1) 放射能測定後の試料全量を 200ml ビーカに移す。
- (2) ホットプレート上で加温し、シュウ酸 1 g を加える。アンモニア水 (1+1) を加えて pH 1.0~1.5 に調整し、シュウ酸イットリウムを沈澱させ、さらにホットプレート上で約10分間加温したのち、室温で約20分間放置する。
- (3) 沈澱を分離型フィルターとろ紙 (5種C) を用いてろ別する。沈澱を水とエタノールで洗浄する。
- (4) ろ紙上の沈澱を乾燥後、ろ紙ごと磁製るつぼに入れて 800 °C で約30分間強熱し、酸化イットリウム (Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) として秤量し、イットリウム担体の回収率を求め<sup>\*48</sup>る。

### 1.2. C.5 放射能測定 (3.5 参照)

1.1. A.5 に同じ。

### 1.2. C.6 計算

#### (1) <sup>90</sup>Sr の定量

<sup>90</sup>Y をミルクキングした t<sub>1</sub> 時間後の正味計数率<sup>\*49</sup> を n<sub>1</sub> ± σ<sub>1</sub> (cpm) とすると、ミルクキング時の <sup>90</sup>Y の正味計数率 n<sub>90</sub> ± σ<sub>90</sub> (cpm) は次式で求められる。

$$n_{90} \pm \sigma_{90} = (n_1 \pm \sigma_1) \times \exp(0.0108 \cdot t_1)$$

t<sub>1</sub> : ミルクキング時刻から測定開始時刻までの時間 (単位: 時)

したがって供試量中に含まれる <sup>90</sup>Sr、A<sub>90</sub> ± Δ<sub>90</sub> (Bq) は、次式で求まる。

$$A_{90} \pm \Delta_{90} = (n_{90} \pm \sigma_{90}) \times \frac{1}{60 \times \epsilon_{90} \times Y} \times 10^4$$

ここで ε<sub>90</sub> : <sup>90</sup>Y の計数効率 (%)

Y : イットリウムの回収率 (%)

---

(\*48) イットリウムの重量/酸化イットリウムの重量=0.787。

(\*49) 正味計数率 n 及びその誤差 σ は次式に従って求める。

$$n \pm \sigma = \left( \frac{N_s}{T_s} - \frac{N_b}{T_b} \right) \pm \left( \frac{N_s}{T_s^2} + \frac{N_b}{T_b^2} \right)^{1/2}$$

N<sub>s</sub> : 試料の全計数値

T<sub>s</sub> : 試料の測定時間 (単位: 分)

N<sub>b</sub> : バックグラウンドの計数値

T<sub>b</sub> : バックグラウンドの測定時間 (単位: 分)

〔2〕 牛乳1ℓ当りの $^{90}\text{Sr}$ を次式により計算する。

$$A_{90} \pm \Delta_{90} = (A_{90}^{\circ} \pm \Delta_{90}^{\circ}) \times \frac{K}{M}$$

ここで $A_{90}$  : 1ℓ当りの $^{90}\text{Sr}$  (Bq/ℓ)

$\Delta_{90}$  : 同上誤差

K : 1ℓ分の灰の量 (g/ℓ)

M : 供試量 (g)

$A_{90}^{\circ}$  : 供試量中に含まれる $^{90}\text{Sr}$  (Bq)

$\Delta_{90}^{\circ}$  : 同上誤差

〔3〕 生重量1kg当たりの $^{90}\text{Sr}$ を次式により計算する。

$$A_{90} \pm \Delta_{90} = (A_{90}^{\circ} \pm \Delta_{90}^{\circ}) \times \frac{K \times 10}{M}$$

ここで $A_{90}$  : 1kg当たりの $^{90}\text{Sr}$  (Bq/kg)

$\Delta_{90}$  : 同上誤差

K : 灰分 (%)

M : 供試量 (g)

$A_{90}^{\circ}$  : 供試量中に含まれる $^{90}\text{Sr}$  (Bq)

$\Delta_{90}^{\circ}$  : 同上誤差

〔4〕 減衰補正

長時間測定する場合は、測定時間中の $^{90}\text{Y}$ の放射能減衰が無視できないので、計数率 $n_{90}$ に次式で与えられる補正定数 $f$ をかけた値を真の計数率とする。

$$f = \frac{0.0108 \cdot t}{1 - \exp(-0.0108 \cdot t)}$$

ここで $t$  : 測定時間 (単位 : 時)

### 1.3 <sup>\*50</sup> 土壌

土壌は、500 °Cで加熱したのち放射性ストロンチウムを酸抽出して、イオン交換法またはシュウ酸塩法により分離し、チェレンコフ光測定により定量する。また安定ストロンチウムは原子吸光法で定量する。この方法により乾燥細土100 gを処理したとき、100 分間測定でおよそ0.7Bq /kg乾土の<sup>89</sup>Srが分析できる。<sup>90</sup>Srは、<sup>89</sup>Srを含まない試料の場合およそ 0.3Bq /kg乾土である。測定試料調製までに要する時間は、イオン交換法で約25時間、シュウ酸塩法で約30時間である。

#### 1.3.A イオン交換法

##### 1.3.A.1 試薬及び装置

###### 〔1〕 試薬

###### (1) 標準溶液及び担体溶液

カルシウム溶液 (50mg Ca<sup>2+</sup> / ml)

###### (2) 酸

硝酸

他は1.1.A.1〔1〕に同じ。(ただし、Cl<sup>-</sup>用試薬を除く)

###### 〔2〕 装置

1.1.A.1〔2〕に同じ。

##### 1.3.A.2 <sup>\*51</sup> 分析操作

(1) 乾燥細土<sup>\*52</sup>100 gを蒸発皿(磁製、直径約10cm)にとり、電気炉に入れ、500 °Cで約3時間以上加熱し、有機物を十分分解する。

(2) 放冷後、2 l ビーカまたは1 l コニカルビーカに移し、ストロンチウム担体溶液を正確に5 ml<sup>\*53</sup>加え、よくかき混ぜる。

---

(\*50) 海底土、河底土などにも適用できる。

(\*51) ここに示す方法は、カルシウム含量が1 g以下の試料を対象としている。それ以上の試料では、樹脂カラムの直径、長さを増加する必要がある。その際は必ずストロンチウムとカルシウムについて溶出曲線を作成する。なお、ここに示す方法についても、分析前に溶出曲線を作成するのが望ましい。

(\*52) 保存の際、試料の吸湿には十分注意する。

(\*53) <sup>137</sup>Cs を同時に分析する場合はセシウムの担体も加える。

- 硝酸または塩酸 500mlを泡立ちに注意しながら少しずつ加え、時計皿でおおい、ホットプレート上で静かに沸騰する程度で3時間加熱する。<sup>\*54</sup>
- (3) ガラス繊維ろ紙 (GA-100) を用いて、温かいうちに吸引ろ過し、残留物は温水 1 ℓ で3回に分けて洗浄する。ろ液・洗液を合わせ、液量を水を加えて約2.5 ℓ とする。
- (4) カルシウム溶液 5 mlを加え、かき混ぜながら水酸化ナトリウム (顆粒状) を少しずつ加えてpH10以上とする。<sup>\*55</sup> 炭酸ナトリウム 50 gを加え、かき混ぜながら約80℃で1時間加熱する。放冷し沈澱が完全に沈降するまで静置する。<sup>\*57</sup>
- (5) 上澄み液の大部分を傾斜法で除き、残りを遠心分離する。<sup>\*58</sup>
- (6) 沈澱を塩酸に溶解し、2 ℓ ビーカーに移し、水を加えて約1.5 ℓ とする。約80℃に加熱しシュウ酸 50 gを加え、アンモニア水でpH 4.0~4.2 (BCG試験紙、黄色→緑青色) に調整する。数時間加熱して沈澱を熟成し、放冷し沈澱が完全に沈降するまで静置する。<sup>\*59 \*60</sup>
- (7) 1.1. A. 2 (4)~(13)に同じ。

---

(\*54) カルシウム含量の多い試料では泡立ちが激しい。なお、n-オクチルアルコールを数滴加えると、ある程度発泡は抑えられる。

(\*55) 一般に海底土には加える必要はない。

(\*56) 発熱するので、十分注意する。

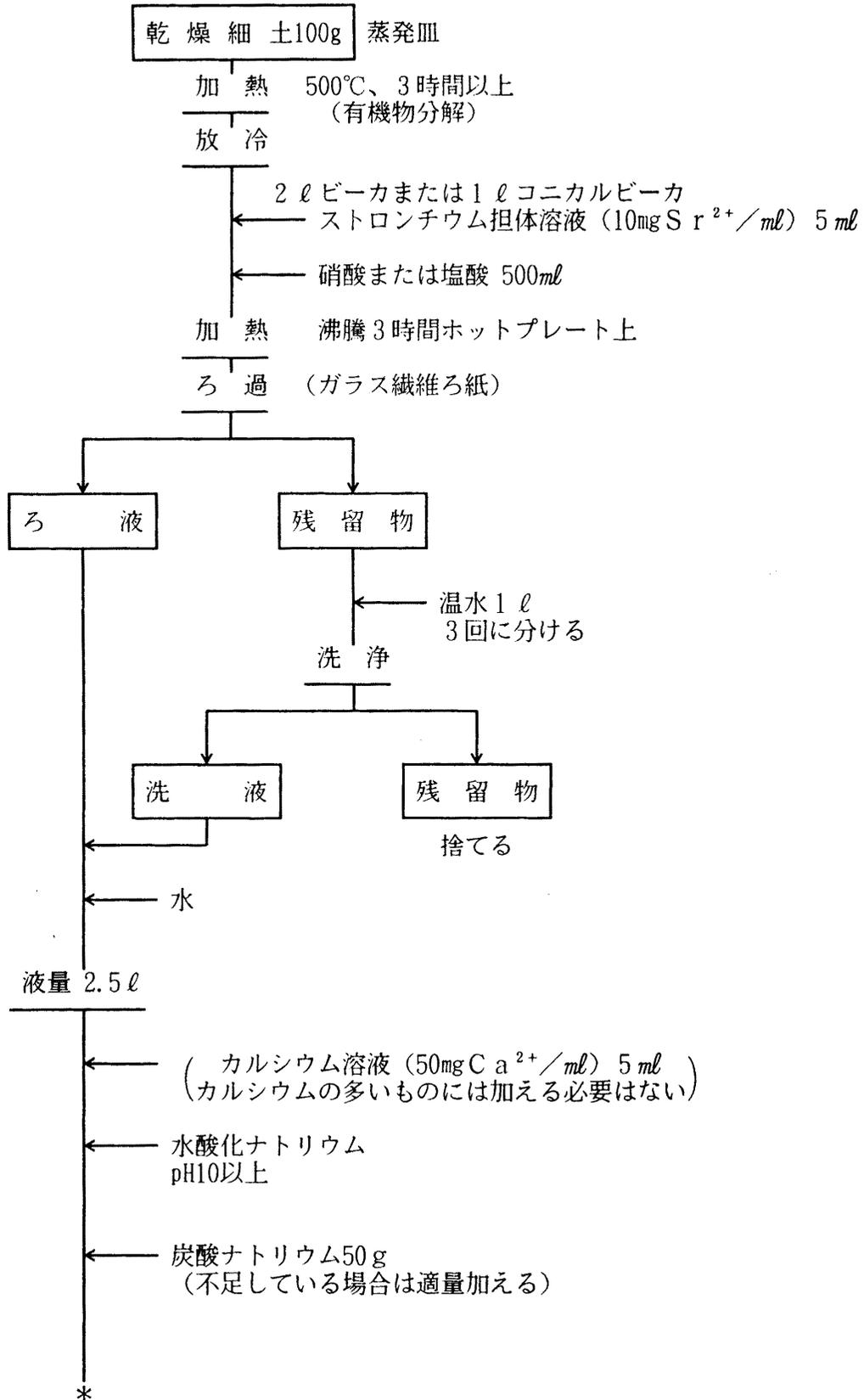
(\*57) 上澄み液に炭酸ナトリウム溶液 (飽和) を滴下し、炭酸塩沈澱の白色の濁りが生じないことを確認する。濁りを生じる場合は、炭酸ナトリウムが不足しているので、追加して操作を繰り返す。

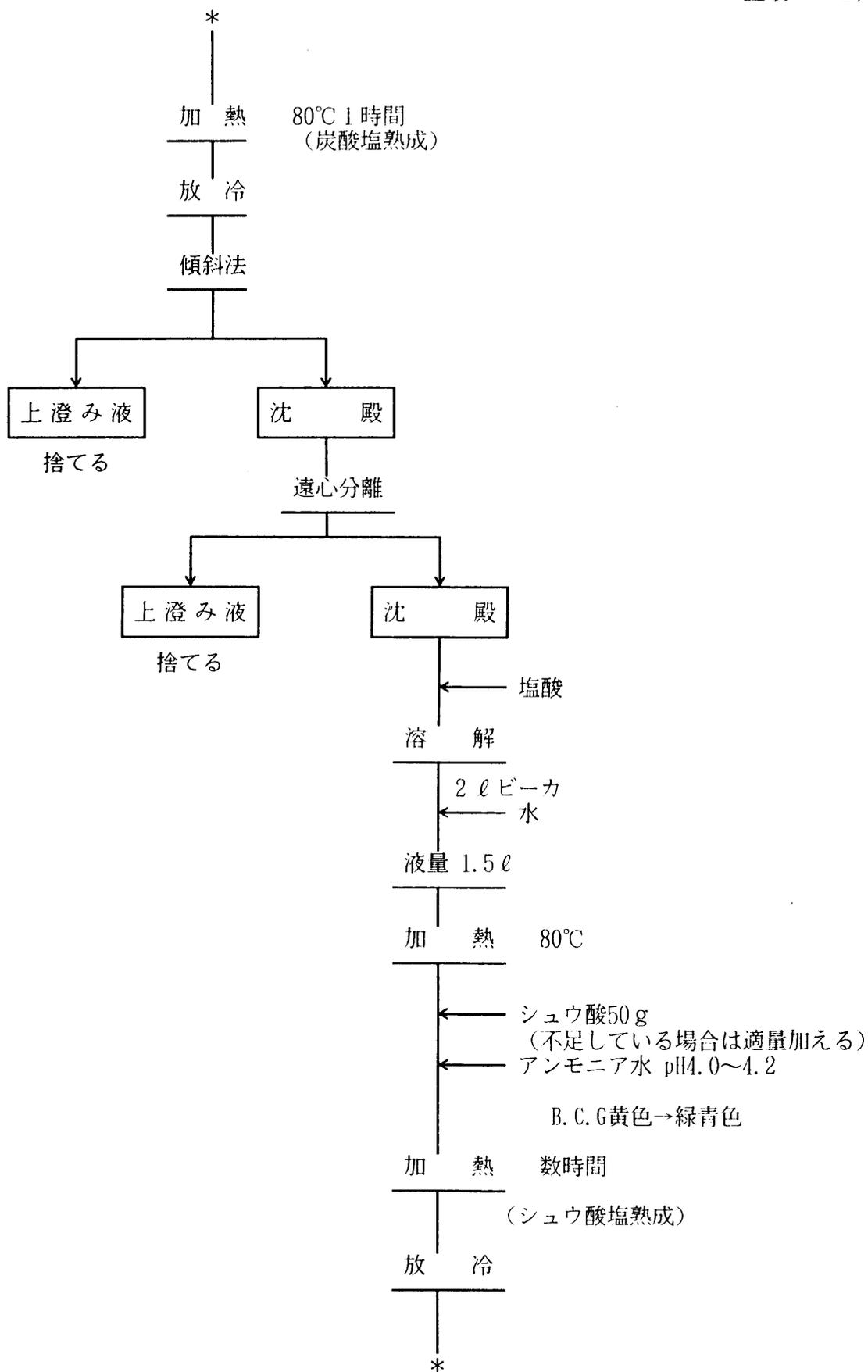
(\*58) 上澄み液は放射性セシウムの分析に使用できる。

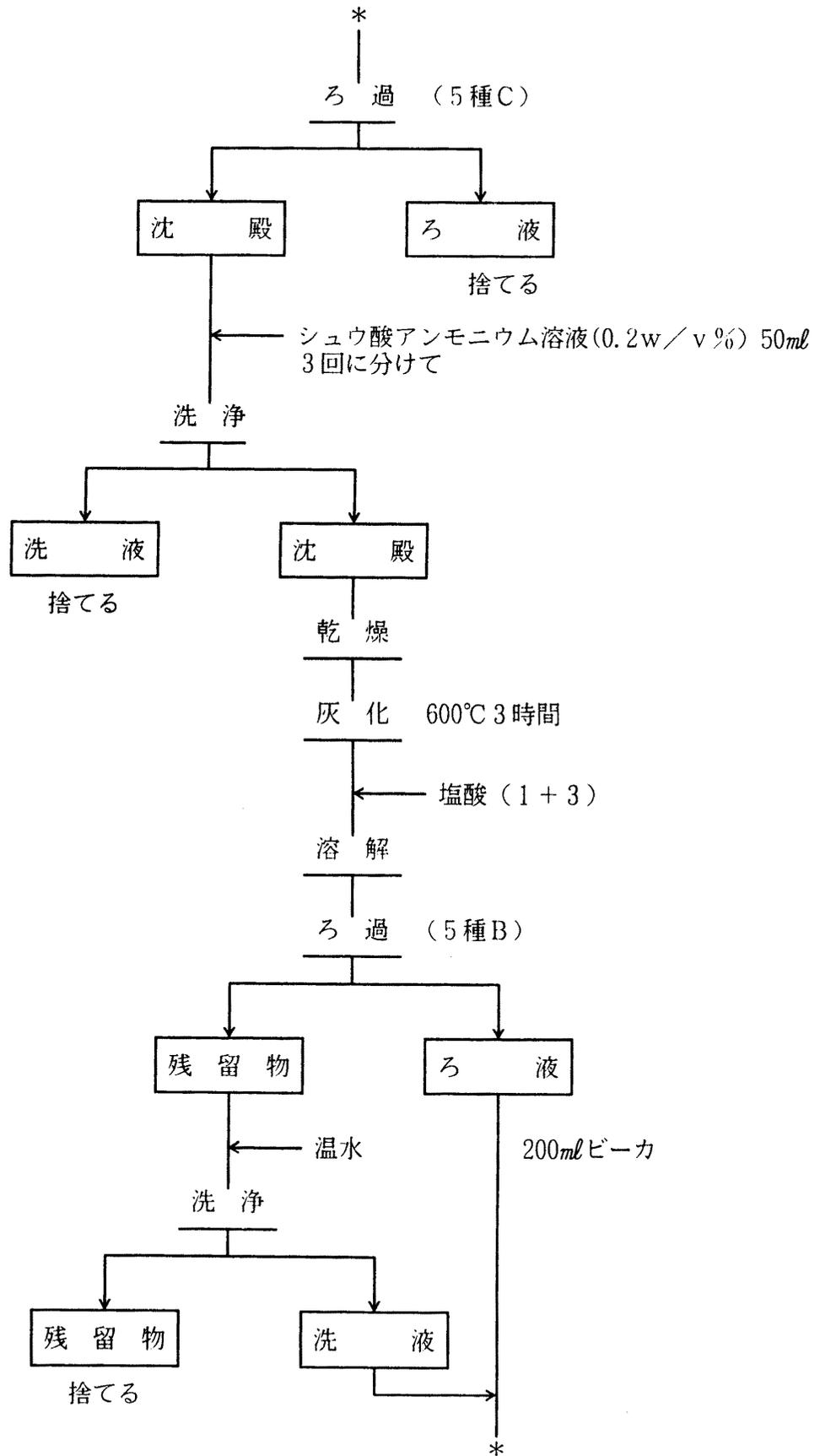
(\*59) 上澄み液にシュウ酸アンモニウム溶液 (飽和) を滴下し、シュウ酸塩沈澱の白色の濁りが生じないことを確認する。濁りを生じる場合は、シュウ酸が不足しているので、追加して操作を繰り返す。

(\*60) シュウ酸塩沈澱 (白色) が著しく着色 (茶色) しているときは、傾斜法で上澄み液の大部分を除いたのち、沈澱を硝酸に溶解し水を加えて約600 mlとし、シュウ酸 10 gを加えて再沈澱を行うのが望ましい。

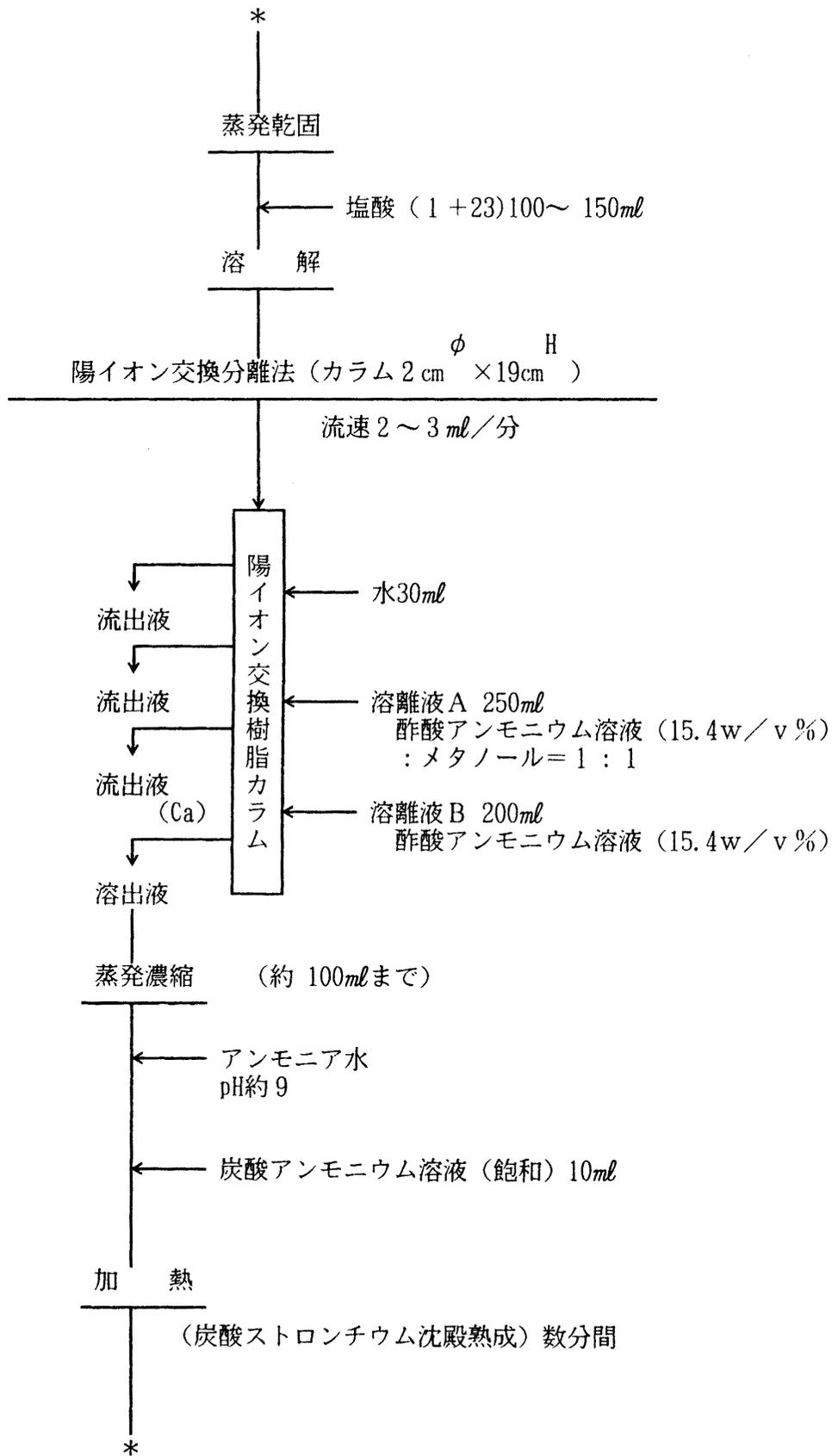
放射性ストロンチウムの分析 (土壌)  
イオン交換法

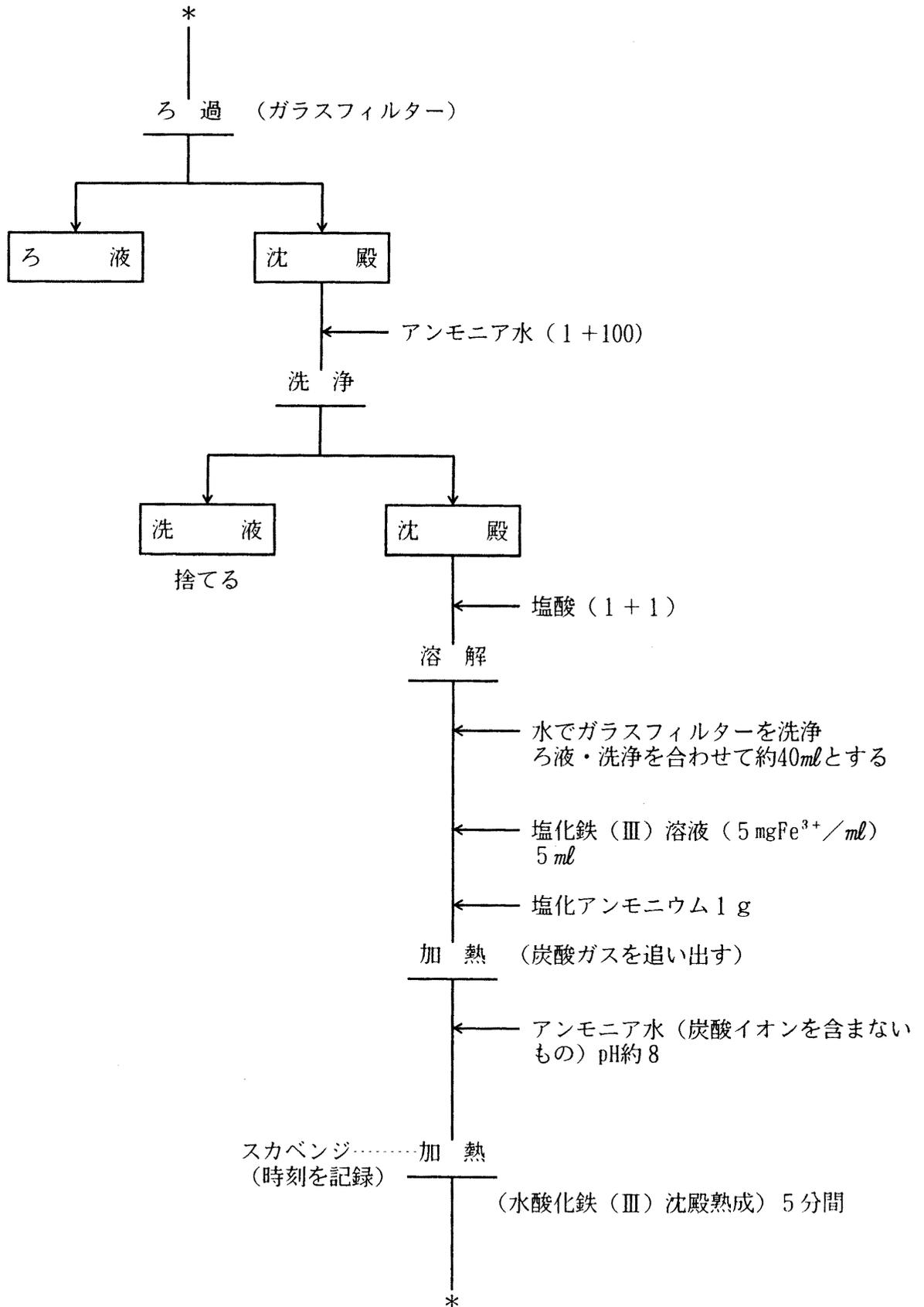


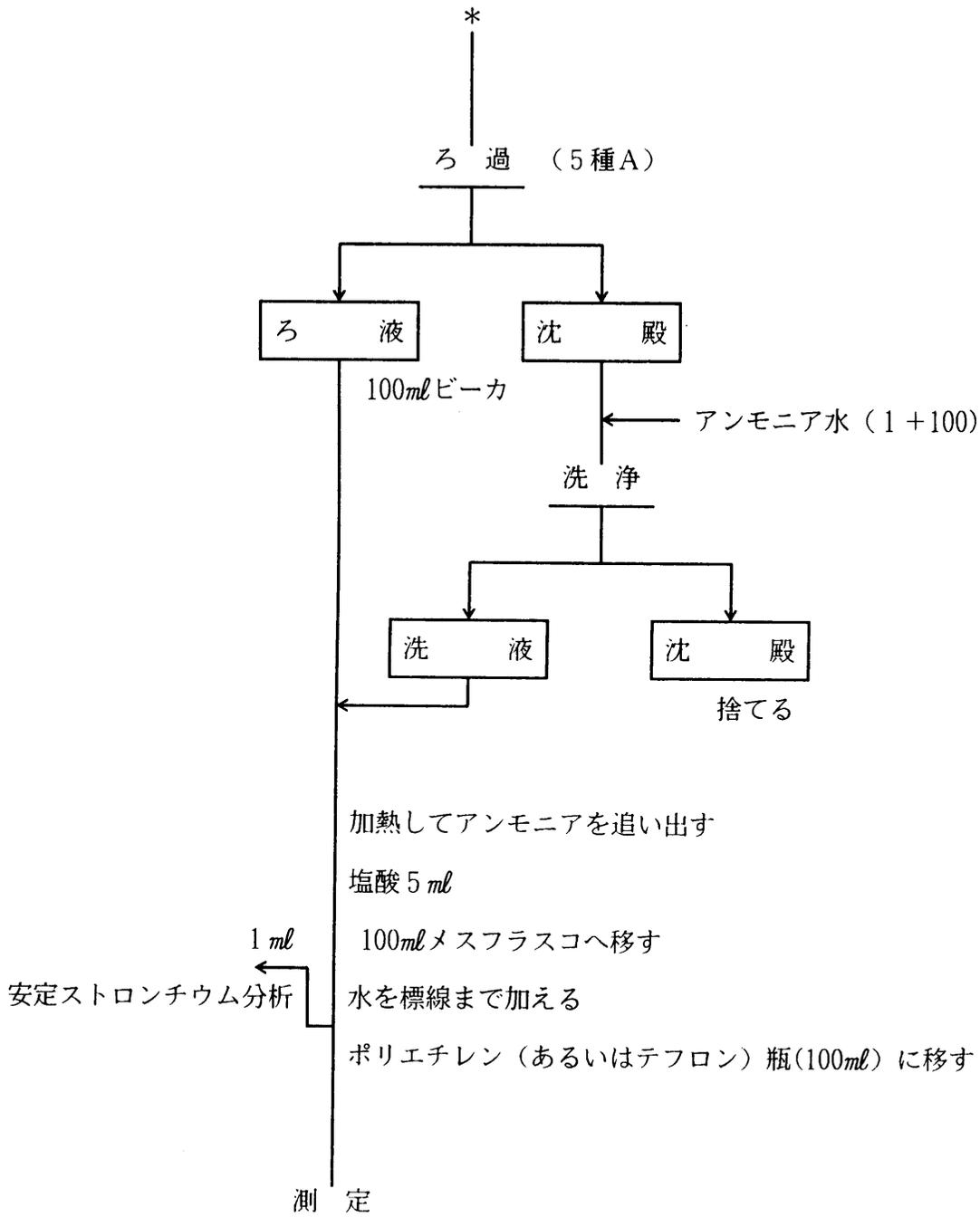




ストロンチウム (イオン交換法)  
- 土壌 - 4 / 6







1.3.A.3 標準線源の作製<sup>\*12</sup> (3.3 参照)

1.1.A.3に同じ。

1.3.A.4 安定ストロンチウムの定量

〔1〕回収されたストロンチウムの定量

1.1.A.4〔1〕に同じ。

〔2〕土壌中の安定ストロンチウムの定量（原子吸光光度法）

- (1) 乾燥細土を正確に10 gとり、蒸発皿（磁製、直径約5 cm）に受け、電気炉に入れ、500 °Cで3時間以上加熱し、有機物を十分分解する。
- (2) 放冷後、300 mlビーカーに移し、硝酸または塩酸50mlを少しずつ加える。時計皿でおおい、ホットプレート上で静かに沸騰する程度で3時間加熱する。
- (3) ガラス繊維ろ紙(GA-100)を用いて温かいうちに吸引ろ過し、残留物を温水 200mlで3回に分けて洗浄する。ろ液・洗液を合わせ、水を加えて約 600mlとする。
- (4) カルシウム溶液 1～2 mlを加え、<sup>\*61</sup> 約80°Cに加熱しシュウ酸10 gを加え、アンモニア水でpH 4.0～4.2(B C G試験紙、黄色→緑青色)に調整する。数時間加熱して沈澱を熟成し、放冷する。
- (5) 沈澱をガラスフィルター(NoG-4)を用いて吸引ろ別し、少量のシュウ酸アンモニウム溶液で洗浄する。
- (6) 沈澱をできるだけ少量の塩酸(1+1)に溶解し、50mlメスフラスコ内に吸引ろ過する。ガラスフィルター(NoG-4)を水で洗浄し、同じく吸引ろ過する。水を標線まで加える。
- (7) この溶液を25mlメスフラスコ4個に正確に5 mlずつ分取し、<sup>\*62</sup> 次に標準ストロンチウム溶液(25mg Sr<sup>2+</sup> / ℓ)をそれぞれ正確に0、1、2、3 mlずつ加え、水を標線まで加える。
- (8) 1.1.A.4に準じ、吸光度を測定してストロンチウム濃度、P (mg/ℓ)を求め、<sup>\*63</sup> 希釈倍率より乾燥細土中のストロンチウム量、W<sub>3</sub>(mg/g)を求める。

(\*61) 試薬に不純物としてストロンチウムが含まれていることがあるので、その場合試薬ブランクをはかり差し引くか、または、試薬を精製した方がよい。

なお、カルシウム含量の多い試料には加える必要はない。

(\*62) ストロンチウム濃度が約 1.5mg/ℓになるように希釈するのが望ましい。ここに示す分取量は一例であるので注意する。

(\*63) 例えば、ここの希釈倍率[\*62]では  
 $W_3 = P \times 25 \times (50/5) \times (1/10) \times (1/10^3)$  (mg/g) となる。

### 1.3.A.5 放射能測定 (3.5 参照)

1.1.A.5に同じ。

### 1.3.A.6 計算

#### 〔1〕 $^{89}\text{Sr}$ 及び $^{90}\text{Sr}$ の定量

1.1.A.6 〔1〕に同じ。

〔2〕 ストロンチウムの回収率を次式により計算する。

$$Y = \frac{W_2}{W_1 + W_3 \times M} \times 100$$

ここで Y : ストロンチウムの回収率 (%)

$W_1$  : 加えた担体ストロンチウムの量 (mg)

$W_2$  : 回収されたストロンチウムの量 (mg)

$W_3$  : 乾燥細土中のストロンチウム量 (mg/g)

M : 供試量 (g)

〔3〕 乾燥細土 1 kg 当りの  $^{90}\text{Sr}$  を次式により計算する。

$$A_{90} \pm \Delta_{90} = (A_{90}^{\circ} \pm \Delta_{90}^{\circ}) \times \frac{10^3}{M}$$

ここで  $A_{90}$  : 1 kg 当りの  $^{90}\text{Sr}$  (Bq/kg)

$\Delta_{90}$  : 同上誤差

M : 供試量 (g)

$A_{90}^{\circ}$  : 供試量中に含まれる  $^{90}\text{Sr}$  (Bq)

$\Delta_{90}^{\circ}$  : 同上誤差

〔4〕 乾燥細土 1 kg 当りの  $^{89}\text{Sr}$  を次式により計算する。

$$A_{89} \pm \Delta_{89} = (A_{89}^{\circ} \pm \Delta_{89}^{\circ}) \times \frac{10^3}{M}$$

ここで  $A_{89}$  : 1 kg 当りの  $^{89}\text{Sr}$  (Bq/kg)

$\Delta_{89}$  : 同上誤差

M : 供試量 (g)

$A_{89}^{\circ}$  : 供試量中に含まれる  $^{89}\text{Sr}$  (Bq)

$\Delta_{89}^{\circ}$  : 同上誤差

〔5〕減衰補正

1.1. A.6〔5〕に同じ。

1.3. B シュウ酸塩法

1.3. B.1 試薬及び装置

〔1〕試薬

(1) 担体溶液

カルシウム溶液 (50mg  $\text{Ca}^{2+}$  / ml)

(2) 酸

硝酸

他は1.1. B.1〔1〕に同じ。(ただし、 $\text{Cl}^-$ 用試薬をのぞく)

〔2〕装置

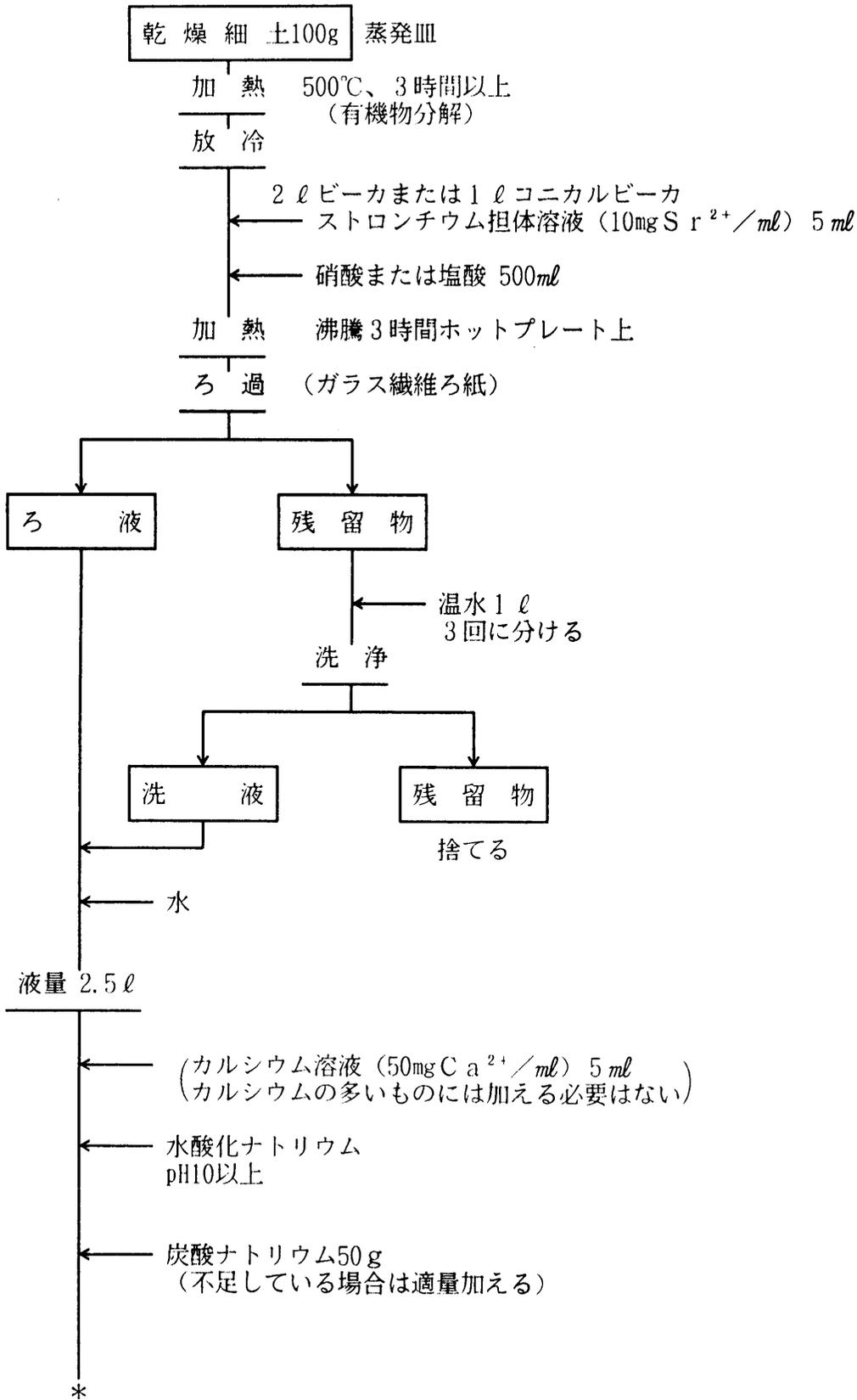
1.1. A.1〔2〕に同じ。

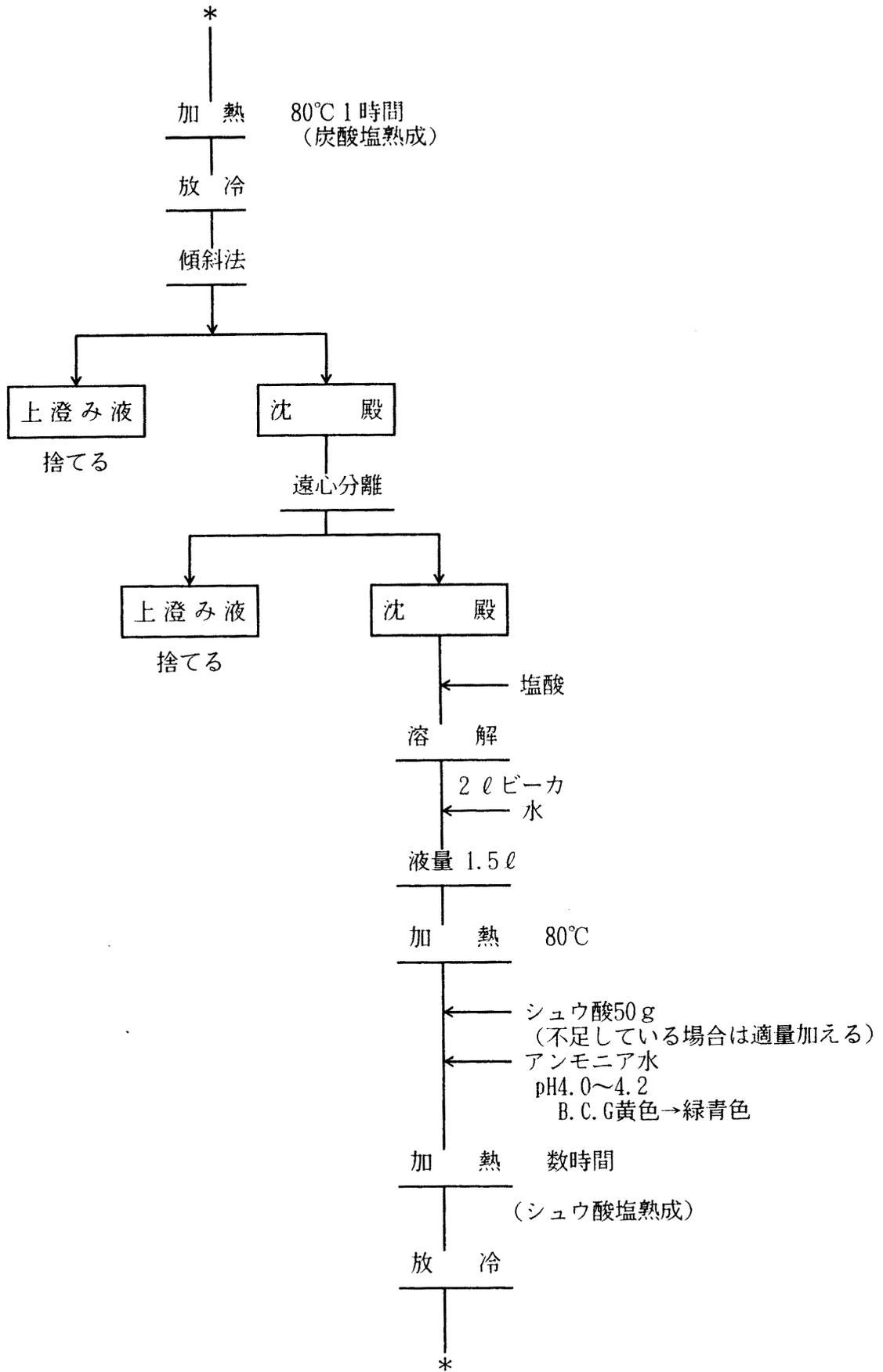
1.3. B.2 分析操作

(1) 1.3. A.2 (1)~(6)に同じ。

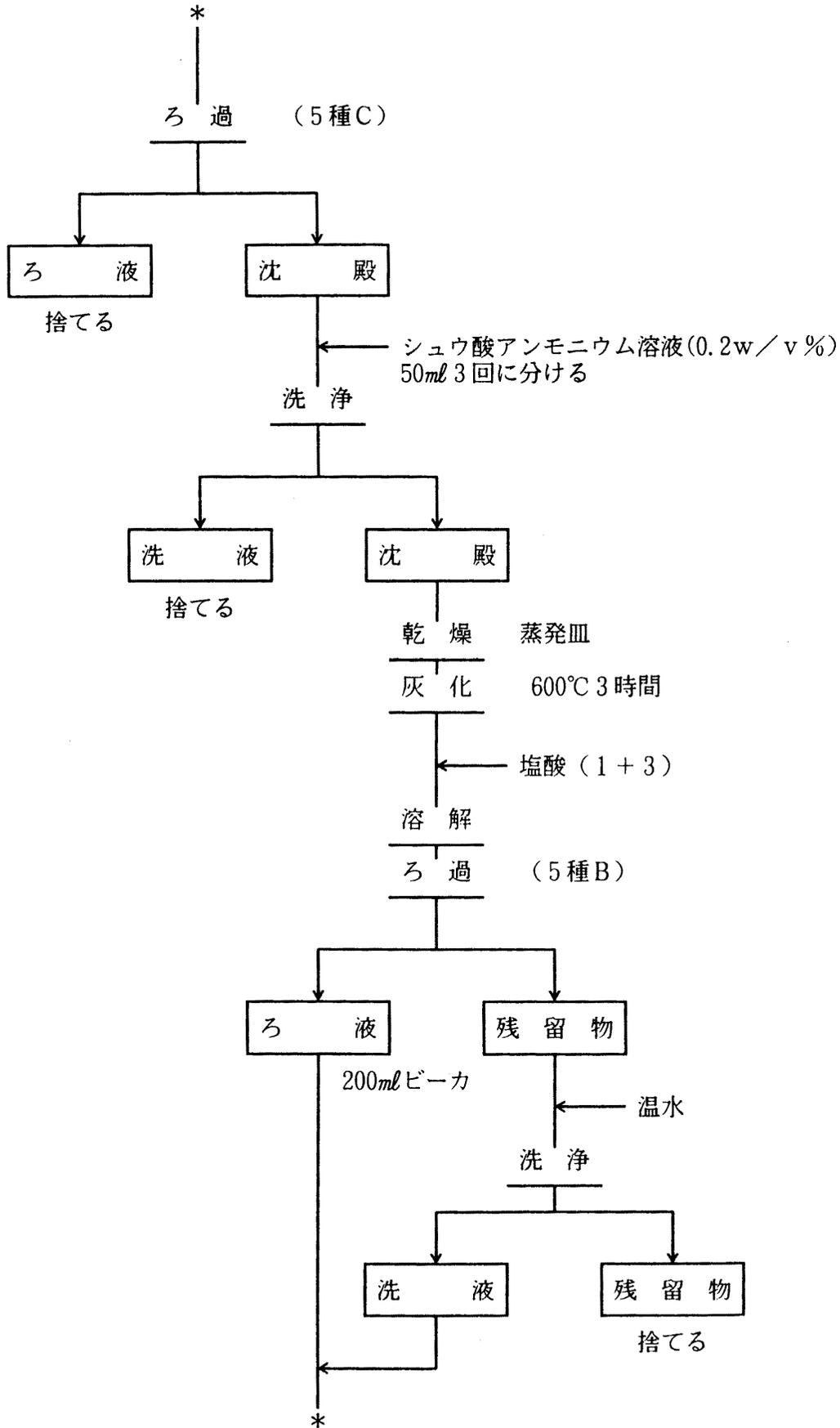
(2) 1.1. B.2 (4)~(15)に同じ。

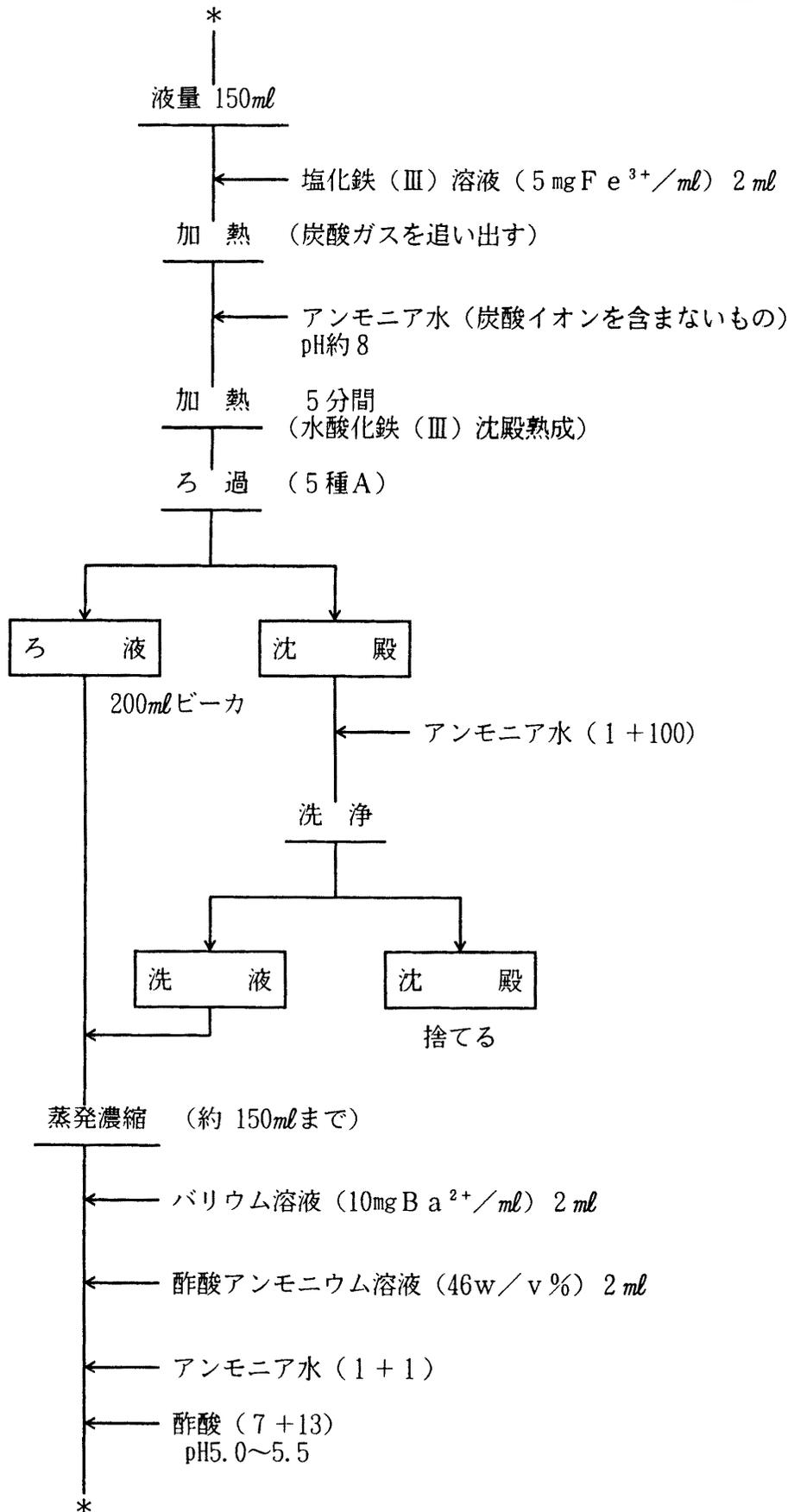
放射性ストロンチウムの分析 (土壌)  
シュウ酸塩法

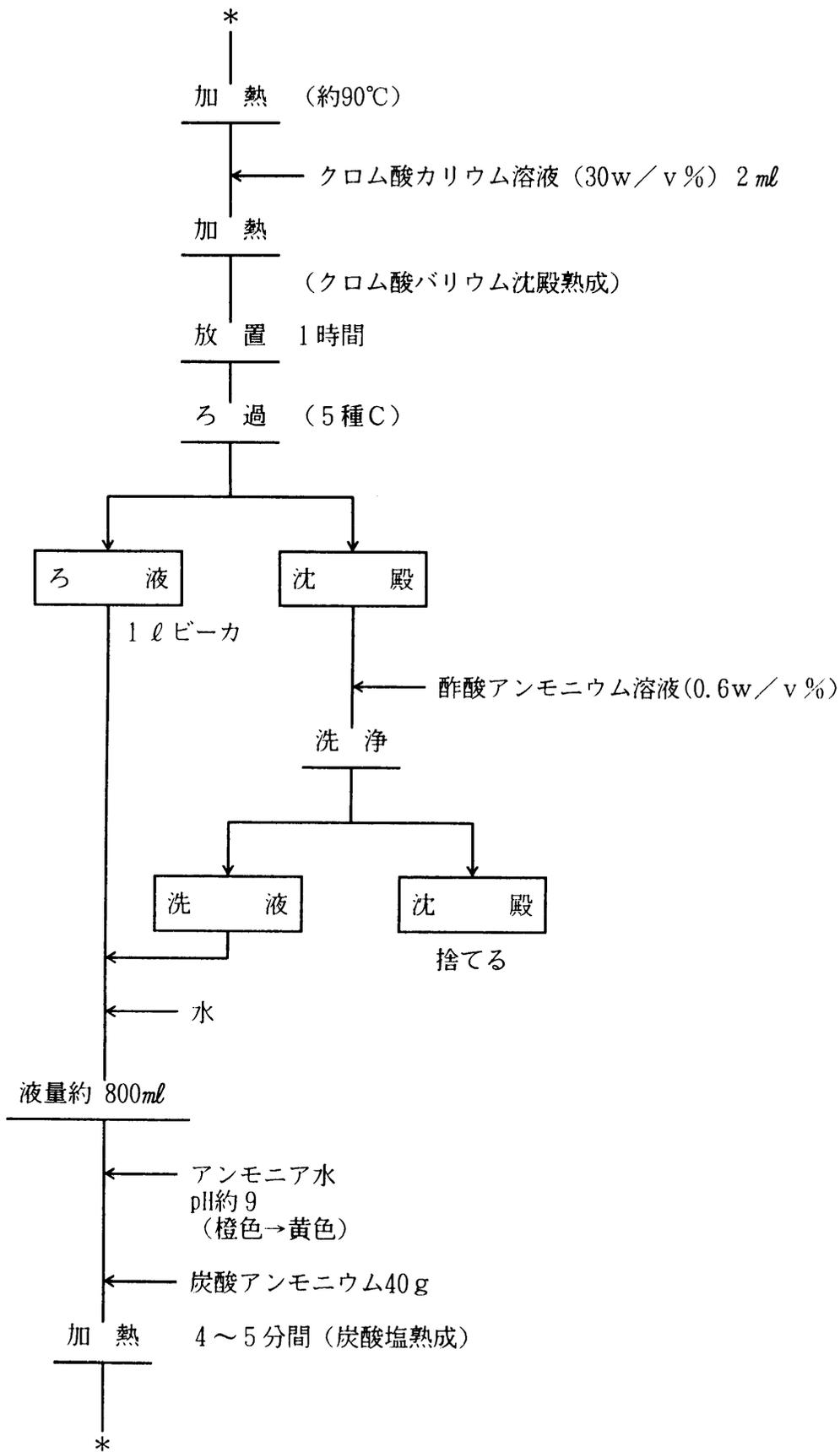




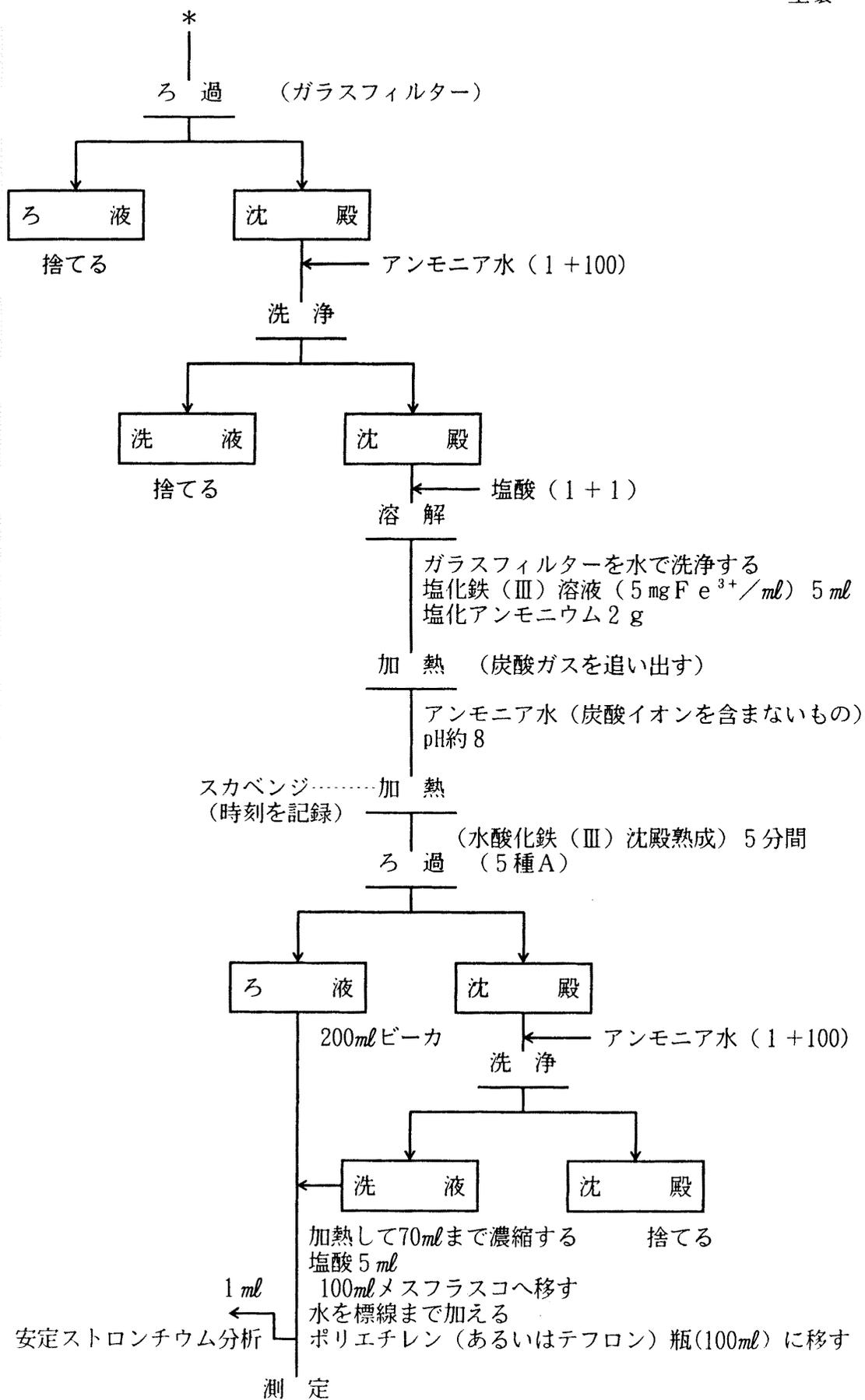
ストロンチウム (シュウ酸塩法)  
 - 土壌 - 3/6







ストロンチウム (シュウ酸塩法)  
 - 土壌 - 6/6



1.3. B.3 標準線源の作製<sup>\*12</sup> (3.3 参照)

1.1. A.3に同じ。

1.3. B.4 安定ストロンチウムの定量

〔1〕回収された安定ストロンチウムの定量

1.1. A.4 〔1〕に同じ。

〔2〕土壌試料中の安定ストロンチウムの定量

1.3. A.4 〔2〕に同じ。

1.3. B.5 放射能測定 (3.4 参照)

1.1. A.5に同じ。

1.3. B.6 計算

1.3. A.6に同じ。

## 第2章 放射性セリウムの分析

分析対象試料は海水、海産生物（灰）及び海底堆積物である。セリウムをシュウ酸塩として多くの妨害元素から分離し、さらに溶媒抽出法によりセリウムを分離しチェレンコフ光測定する。<sup>\*1</sup>

分析目標値は測定時間を100分とし、バックグラウンド計数の計数誤差の3倍以上を有意とした場合およそ30mBq/試料である。本法では環境試料中の放射性セリウムのうち、 $^{144}\text{Ce}$ だけを対象とする。なお試料中の $^{141}\text{Ce}$ と $^{144}\text{Ce}$ は化学操作で分離できないので放射能測定で弁別する。

### 2.1 海水

海水中の放射性セリウムを鉄、ランタン、セリウムにより共沈濃縮したのち硝酸に溶解する。この溶液からセリウム、ランタンなどをシュウ酸塩として沈澱させ大部分の他元素から分離し、さちに沈澱を硝酸に溶解した後、溶媒抽出法によりセリウムを分離する。分離したセリウムを液体シンチレーション測定装置により定量する。この方法により海水20ℓを処理し、100分間測定したときおよそ2mBq/ℓの $^{144}\text{Ce}$ が分析できる。分析操作に要する時間は測定試料調製まで約12時間である。

#### 2.1.1 試薬

##### (1) 担体溶液

セリウム担体溶液 (1mg  $\text{Ce}^{3+}/\text{ml}$ )

ランタン溶液 (10mg  $\text{La}^{3+}/\text{ml}$ )

塩化鉄(Ⅲ)溶液 (10mg  $\text{Fe}^{3+}/\text{ml}$ )、塩化鉄(Ⅲ)溶液 (50mg  $\text{Fe}^{3+}/\text{ml}$ )

##### (2) 酸

硝酸 (7+5)、硝酸 (5+2)

塩酸 (1+99)、塩酸 (1+50)、塩酸 (1+1)

過塩素酸

シュウ酸

過酸化水素水 (30%)

##### (3) 塩基

水酸化ナトリウム溶液 (5w/v%)、水酸化ナトリウム溶液 (10w/v%)

---

(\*1) 本分析法による除染係数は解説 I-5。

(4) 塩類

臭素酸ナトリウム溶液 (30 w/v%)

シュウ酸アンモニウム溶液 (0.1w/v%)

(5) 有機試薬

HDEHP-nヘプタン溶液 (25 w/v%)

エタノール

ジエチルエーテル

2.1.2 分析操作

- (1) 試料は採水時に海水 1 l につき硝酸<sup>\*2</sup>10mlを加える。
- (2) 海水20 l を大型ホーロータンク、またはポリエチレン製タンクにとり、セリウム担体溶液10ml、ランタン溶液 3 ml及び塩化鉄(III)溶液(50mg Fe<sup>3+</sup>/ml) 4 mlを加えてよくかき混ぜる。
- (3) 水酸化ナトリウム溶液 (5 w/v%)<sup>\*3</sup>を加えてよくかき混ぜ、pH 9 に調整し、パイプヒータで約80°Cまで加温し、沈澱を熟成する。
- (4) 放置して沈澱を十分に熟成沈降させ、傾斜法により上澄み液を捨て、スラリーを250 ml 遠心沈澱管を用いて遠心分離する。
- (5) 沈澱をできる限り少量の硝酸で溶解し、500 mlビーカーに移し、300 mlまで水を加える。
- (6) シュウ酸 3 gを加えよく攪はんする。攪はんしながら水酸化ナトリウム溶液(10w/v%)<sup>\*3</sup>を加えてpH約1.0 に調節し、加熱してシュウ酸塩を沈澱させる<sup>\*4</sup>。
- (7) 加温熟成したのち放冷する。ろ紙 (5種C) を敷いたブフナー漏斗で吸引ろ別し、沈澱はシュウ酸アンモニウム溶液で洗浄したのち、ろ紙とともに磁製皿に入れ乾燥する。  
なお、沈澱が容積で30ml以下の場合には操作(15)以後に従う。
- (8) 電気炉に入れ約 700°Cで1時間加熱し灰化する。
- (9) 放冷後、灰分を 500mlビーカーに移す。磁製皿に付着した灰分は硝酸 (7 + 5) 10mlで溶解し 500mlビーカーに合わせ過酸化水素水 2 mlを加える。加熱溶解後水を加えて 300mlとする。

---

(\* 2) 海水中の放射性セリウムが器壁に吸着するのを防ぐためである。

(\* 3) 発熱するので十分に注意する。

(\* 4) 沈澱が生成しないときは、pHを 1.5位まで上げると生成する。上澄み液は緑色である。

- (10) 塩化鉄(Ⅲ)溶液 (10mg Fe<sup>3+</sup>/ml) 1 mlを加え攪はん後、水酸化ナトリウム溶液(5w/v%)を加えてpH9に調整し、沈澱を生成する。
- (11) 約80℃まで加温し沈澱を熟成する。十分に沈澱が沈降するまで放置する。
- (12) ろ紙(5種A)を用いてろ過し、沈澱を塩酸(1+1)で溶解、温水で洗浄し、ろ液と洗液を合わせて300mlビーカーに入れる。水を加えて200mlとする。
- (13) シュウ酸3gを加えてよく攪はんする。攪はんしながら水酸化ナトリウム溶液(10w/v%)を加えてpH約1.0に調節し、加熱してシュウ酸塩を沈澱させる。
- (14) 加温熟成したのち放冷する。ろ紙(5種C)でろ過し、沈澱はシュウ酸アンモニウム溶液で洗浄したのち、ろ紙とともに磁製皿に入れ乾燥する。
- (15) 電気炉に入れ約700℃で1時間加熱して灰化する。
- (16) 灰化した残留分はビーカーに移し、磁製皿に付着した灰分は硝酸(7+5)10mlを用いて先のビーカーに洗い移す。過酸化水素水2mlを加え、溶解するまで加熱し、さらに蒸発乾固する。
- (17) 放冷したのち硝酸10mlと過酸化水素水5mlを加え、静かに加熱して溶解し、さらに発泡がなくなるまで加熱を続ける。<sup>\*5</sup>
- (18) 放冷後、溶液を分液漏斗に移し入れ、ビーカーをできるだけ少量の硝酸(5+2)で洗浄し、分液漏斗に合わす。臭素酸ナトリウム溶液1ml、HDEHP-nヘプタン溶液10mlを分液漏斗に加え、3分間激しく振り混ぜセリウムを抽出し、静置する。
- (19) 水層は別の分液漏斗に移し入れ、セリウムを抽出したHDEHP層は保存する。移し入れた水層にさらにHDEHP-nヘプタン溶液5mlを加え抽出を繰り返す。静置後、水層は捨て、有機層は先に保存した有機層に合わせる。
- (20) 有機層に硝酸(5+2)5mlと臭素酸ナトリウム溶液2滴を加え1分間振り混ぜ、水層は捨てる。
- (21) 有機相に硝酸(5+2)10mlと過酸化水素水1mlを加え、10分間激しく振り混ぜセリウムを逆抽出し、静置する。<sup>\*6</sup>

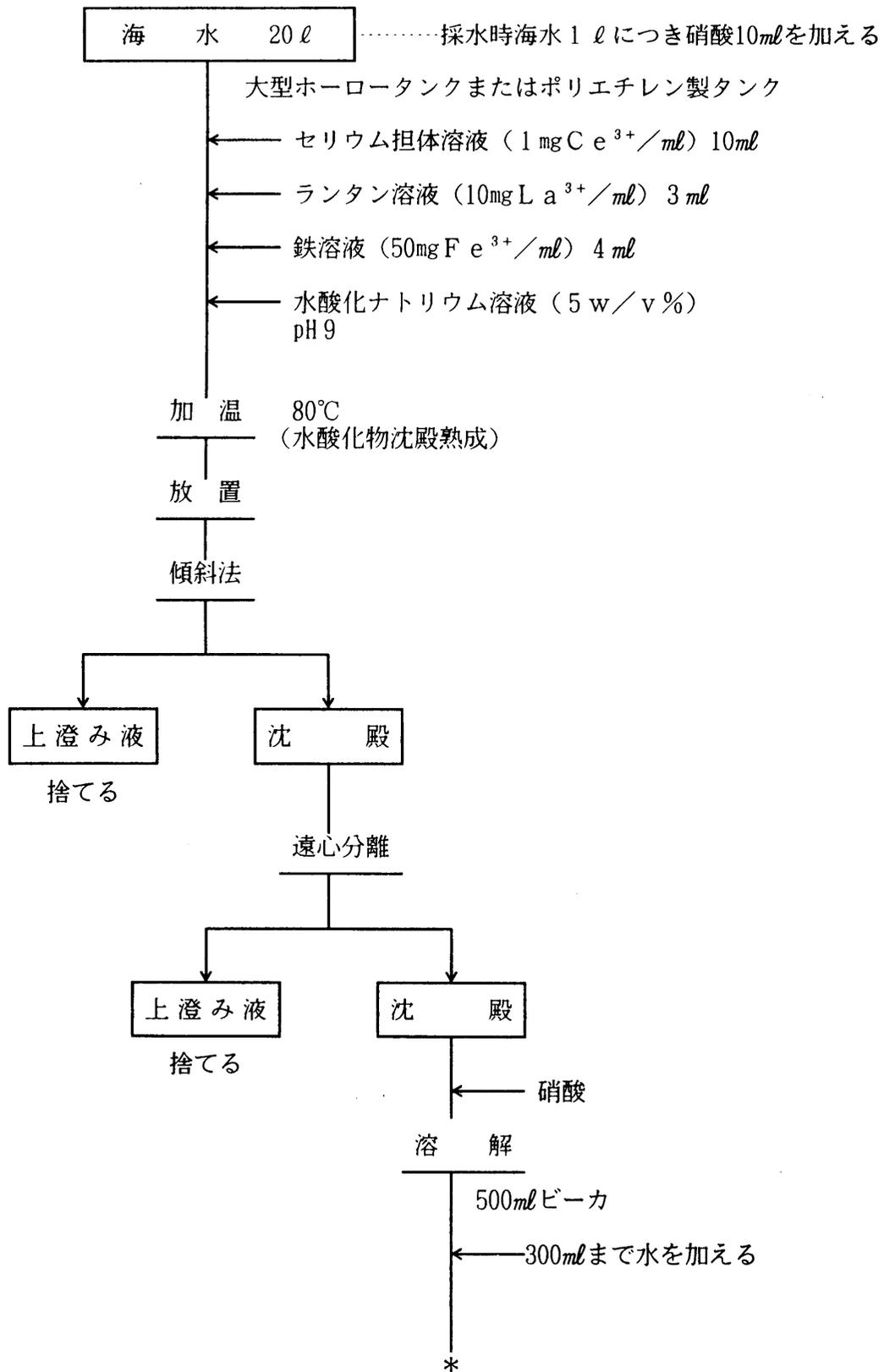
---

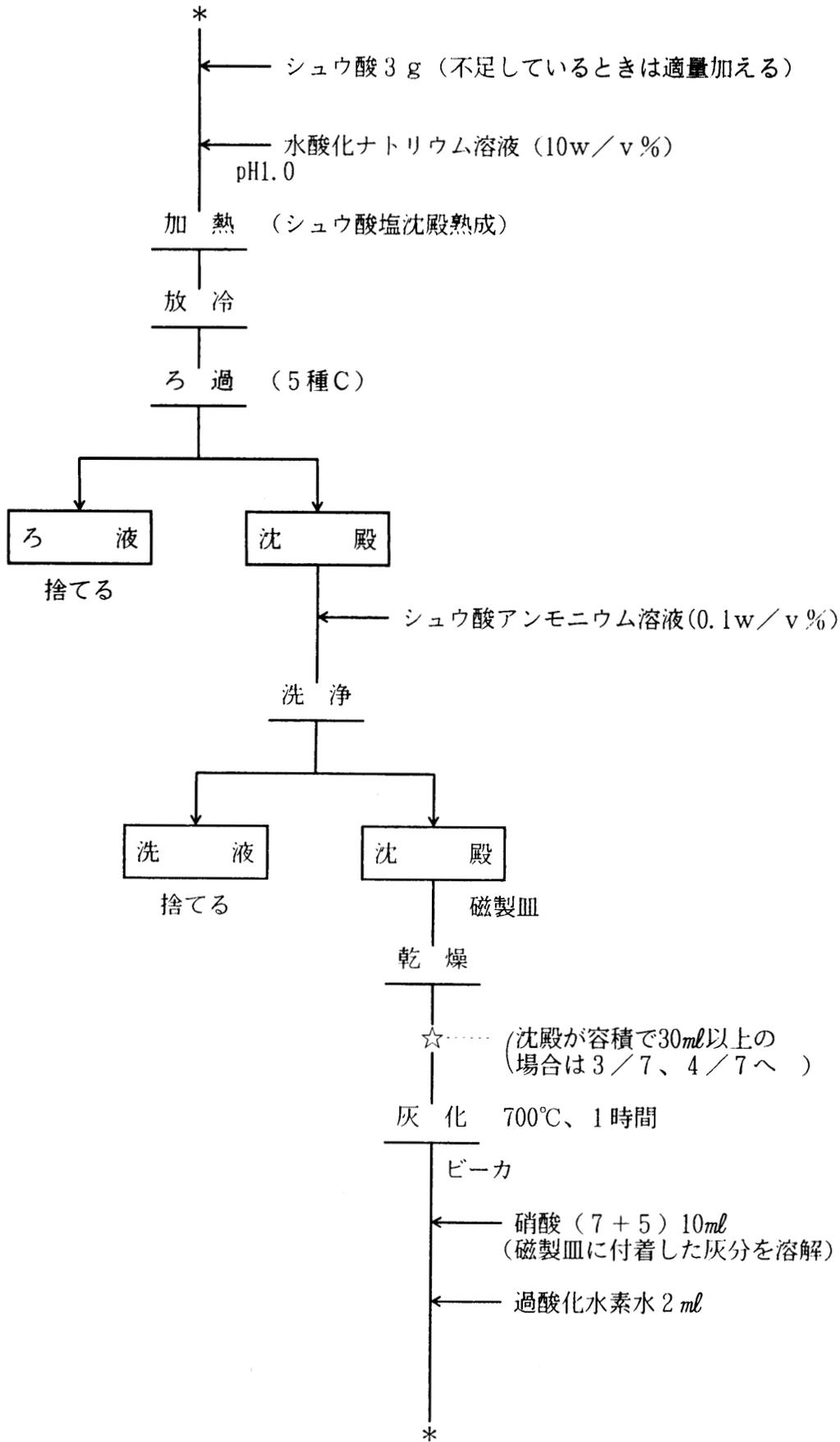
(\*5) この操作で溶液の硝酸濃度は約10Mになる。

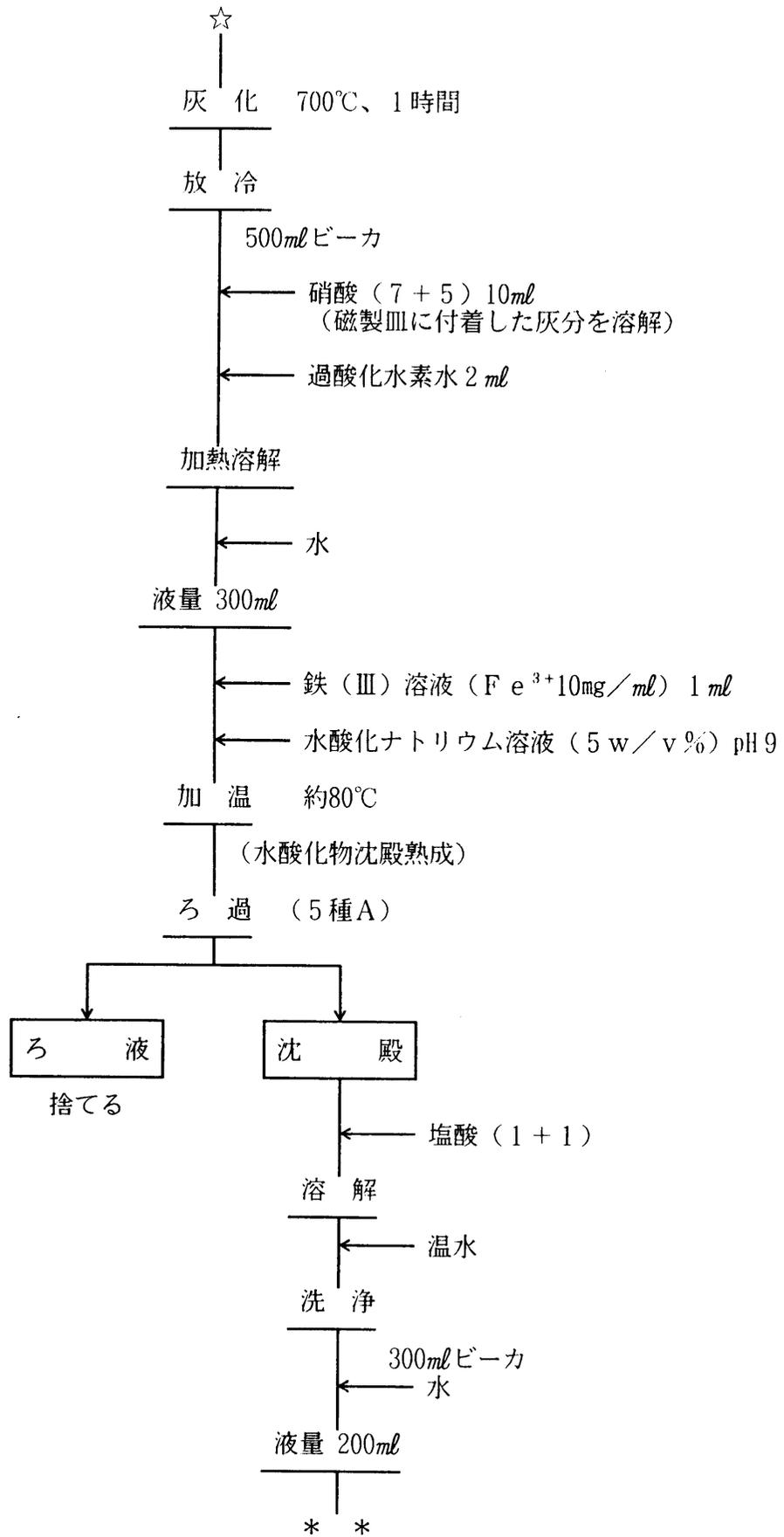
(\*6) HDEHPと硝酸の混合物は発火して爆発の恐れがあるので、使用後は多量の水で洗浄して硝酸を除いておく。

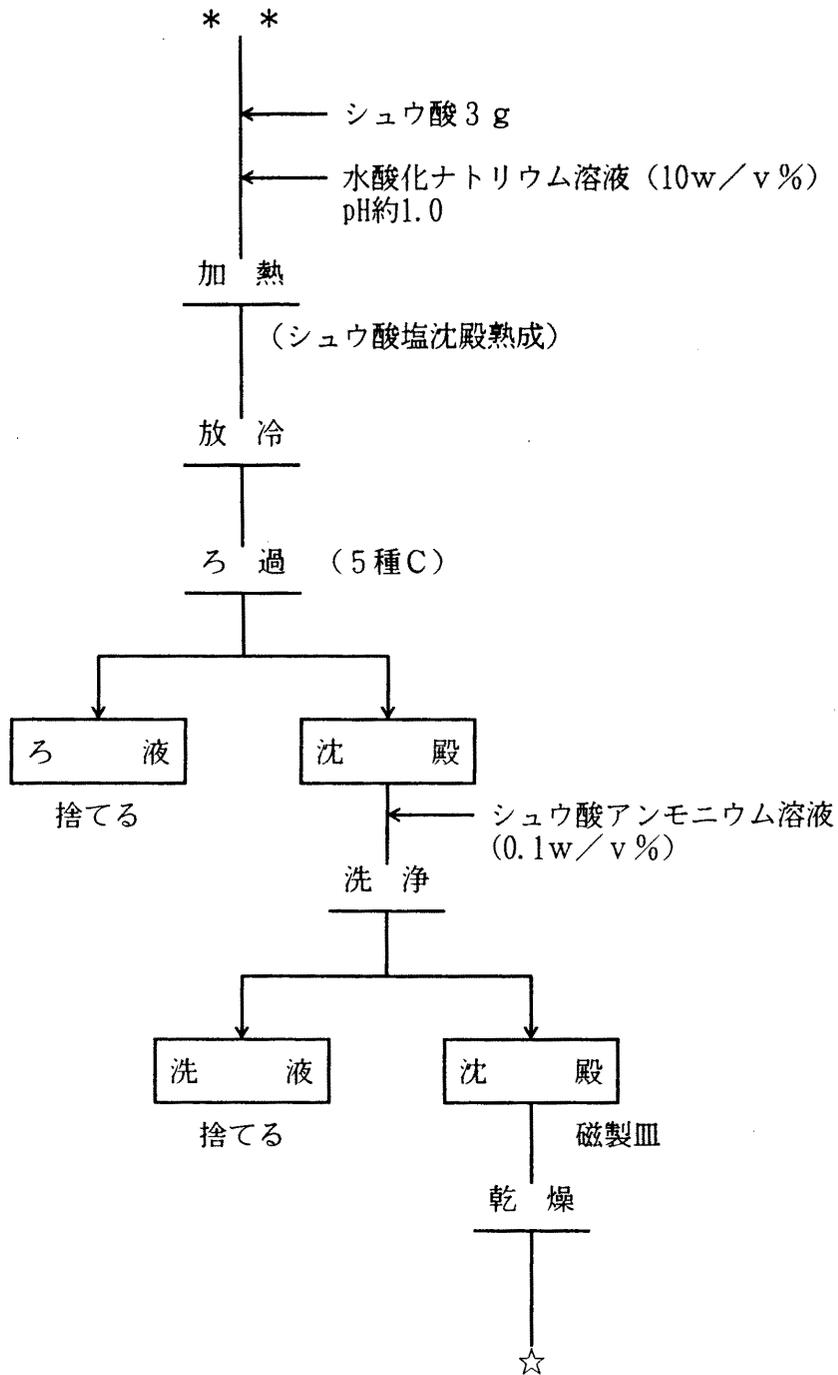
- ⑳ 水層は 100ml ビーカーに移しとり、過塩素酸 2 ml を加えホットプレート上で加熱して蒸発乾固する。
- ㉑ 蒸発乾固した残留物に、過酸化水素水 2 滴、塩酸 0.5ml 及び水 25ml を加えて加熱溶解する。
- ㉒ シュウ酸 0.5 g を加え、かき混ぜながら加温してシュウ酸塩を生成、熟成させる。氷水中で冷却する。
- ㉓ 分離型フィルターに重量既知のろ紙（5 種 C）をつけ吸引ろ過する。少量の水とエタノール、ジエチルエーテルで順次洗浄する。
- ㉔ 沈澱をろ紙ごと真空デシケータ中で 5 分間真空乾燥した後、常圧にもどし、5 分間放冷後重量をはかる。
- この操作を恒量値が得られるまでくり返す。
- ㉕ 沈澱をろ紙ごとポリエチレン（あるいはテフロン）瓶(100ml) に移し、塩酸（1 + 1）4 ml を加え加熱溶解する。さらに過酸化水素水 2 滴と水 20ml を加え再び加熱し、放冷後水を加えて 100ml とする。

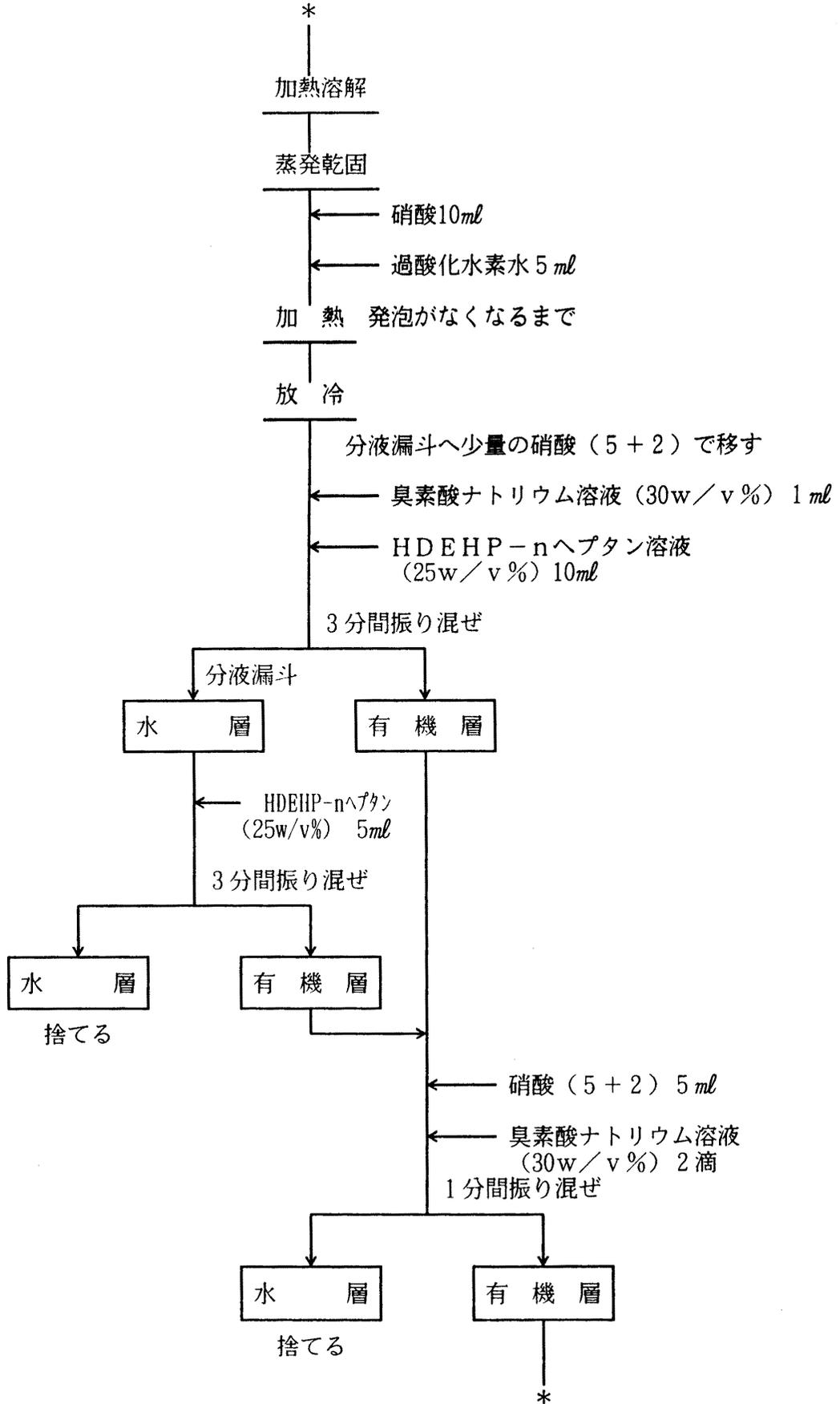
放射性セリウムの分析 (海水)

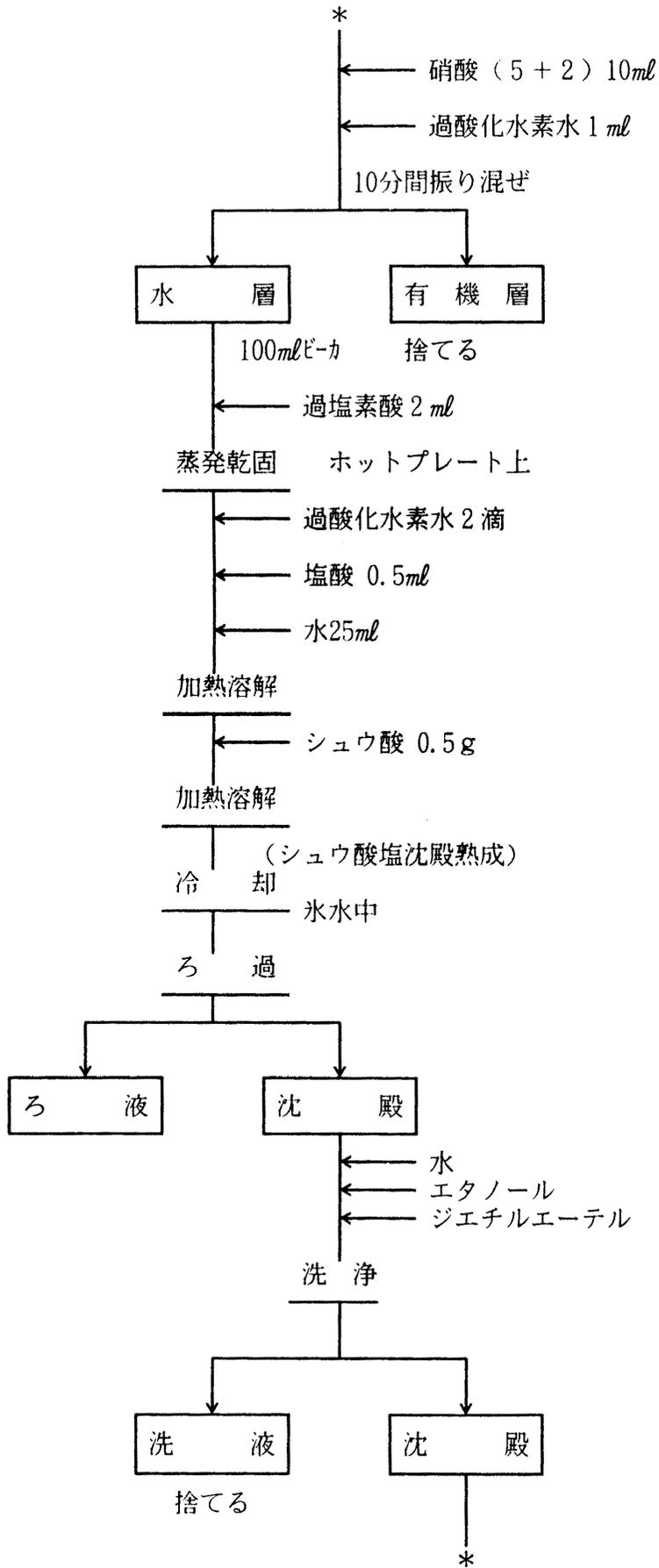


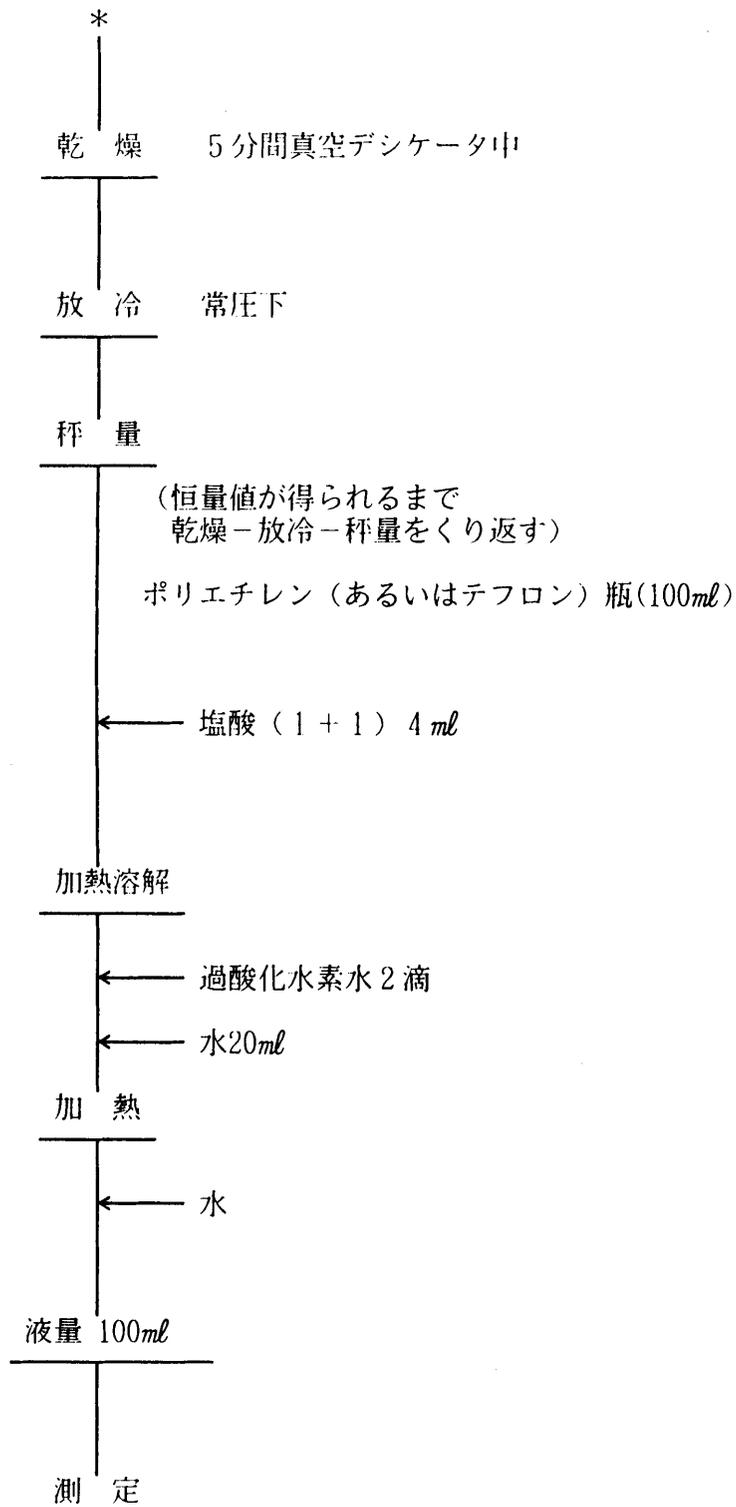












### 2.1.3 標準線源の作製 (3.3 参照)

- (1) セリウム担体溶液 (10mg  $Ce^{3+}/ml$ ) 1 ml を 2~3 個<sup>\*7</sup> の 100ml のメスフラスコに取る。
- (2)  $^{144}Ce$  標準溶液から、およそ 10 Bq を正確に分取してメスフラスコに加え、塩酸 (1+99) で標線に合わせ、栓をする。
- (3) 全量をポリエチレン (あるいはテフロン) 瓶 (100ml) に移す。
- (4) (1)、(2)、(3) に準じ、バックグラウンド用試料を作製する。

### 2.1.4 放射能測定 (3.5 参照)

$^{144}Ce$  の測定は娘核種である  $^{144}Pr$  の  $\beta$  線によるチェレンコフ光を測定する。<sup>\*8</sup>  $^{144}Ce$  の  $\beta$  線 (最大  $\beta$  線エネルギー 580 keV) によるチェレンコフ光の影響は測定装置のディスクリミネータを調整をすることによって除去する。LLD は  $^{144}Ce$  による計数効率が 1% 以下となるよう設定する。<sup>\*9</sup>

- (1) 使用機器の型式、名称、試料名などを記録する。
- (2) 適当な標準線源を用いて計数装置の動作が正常なことを確認する。
- (3) バックグラウンド試料を 100 分間測定する。
- (4) 試料を 100 分間測定する。
- (5) 標準線源を用いて計数効率を求める。
- (6) 試料の計数率からバックグラウンド計数率を差し引き、正味の計数率及び標準偏差を求める。

---

(\*7) 計数効率は数個の平均値を用いる。

(\*8) 解説 I - 6 参照

(\*9)  $^{204}Tl$  (最大  $\beta$  線エネルギー 763 keV) の計数効率が 1% 程度となるように LLD を設定する方法でも良い。

## 2.1.5 計算

### 〔1〕海水中の $^{144}\text{Ce}$ の濃度

2.1.4 で得た放射能の測定結果から次式に従って $^{144}\text{Ce}$ の濃度を計算する。

$$A' \pm \Delta' = \frac{\left[ \left( \frac{N_s}{T_s} - \frac{N_b}{T_b} \right) \pm \left( \frac{N_s}{T_s^2} + \frac{N_b}{T_b^2} \right)^{\frac{1}{2}} \right]}{60 \times \epsilon} \times 10^2 \times \frac{1}{W}$$

$A'$  : 海水中の $^{144}\text{Ce}$ の濃度 (Bq/ℓ)

$\Delta'$  : 同上誤差

$N_s$  : 試料の全計数值

$T_s$  : 試料の測定時間 (単位: 分)

$N_b$  : バックグラウンドの計数值

$T_b$  : バックグラウンドの測定時間 (単位: 分)

$\epsilon$  : 計数効率 (%)

$W$  : 分析供試量 (ℓ)

### 〔2〕減衰補正

$^{144}\text{Ce}$ の半減期は284日なので、試料採取から測定まで長期間経過している時には減衰の補正が必要である。

$$A \pm \Delta = \frac{A' \pm \Delta'}{\exp(-2.44 \cdot 10^{-3} \cdot t)}$$

$A$  : 試料採取日に補正した $^{144}\text{Ce}$ 濃度 (Bq/ℓ)

$\Delta$  : 同上誤差

$t$  : 試料採取時から測定開始時までの時間 (単位: 日)

## 2.2 海産生物

海産生物(灰)にランタン及びセリウム担体を加え、 $^{144}\text{Ce}$ を硝酸浸出し、シュウ酸塩の沈澱を生成させて大部分の他元素、特にリン酸塩から分離したのち、溶媒抽出し液体シンチレーション測定装置により定量する。この方法により灰試料20 gを処理し、100分間測定したときおよそ2m Bq/g灰の $^{144}\text{Ce}$ が分析できる。分析操作に要する時間は測定試料調製まで約12時間である。

### 2.2.1 試薬

#### (1) 担体溶液

セリウム担体溶液 (1 mg  $\text{Ce}^{3+}/\text{ml}$ )

ランタン溶液 (10 mg  $\text{La}^{3+}/\text{ml}$ )

塩化鉄(III)溶液 (10 mg  $\text{Fe}^{3+}/\text{ml}$ )

#### (2) 酸

硝酸 (7 + 5)、硝酸 (5 + 2)

塩酸 (1 + 99)、塩酸 (1 + 50)

過塩素酸

シュウ酸

過酸化水素水 (30%)

#### (3) 塩基

水酸化ナトリウム溶液 (5 w/v%)、水酸化ナトリウム溶液 (10 w/v%)

#### (4) 塩類

臭素酸ナトリウム溶液 (30 w/v%)

シュウ酸アンモニウム溶液 (0.1 w/v%)

#### (5) 有機試薬

HDEHP-nヘプタン溶液 (25 w/v%)

オクチルアルコール

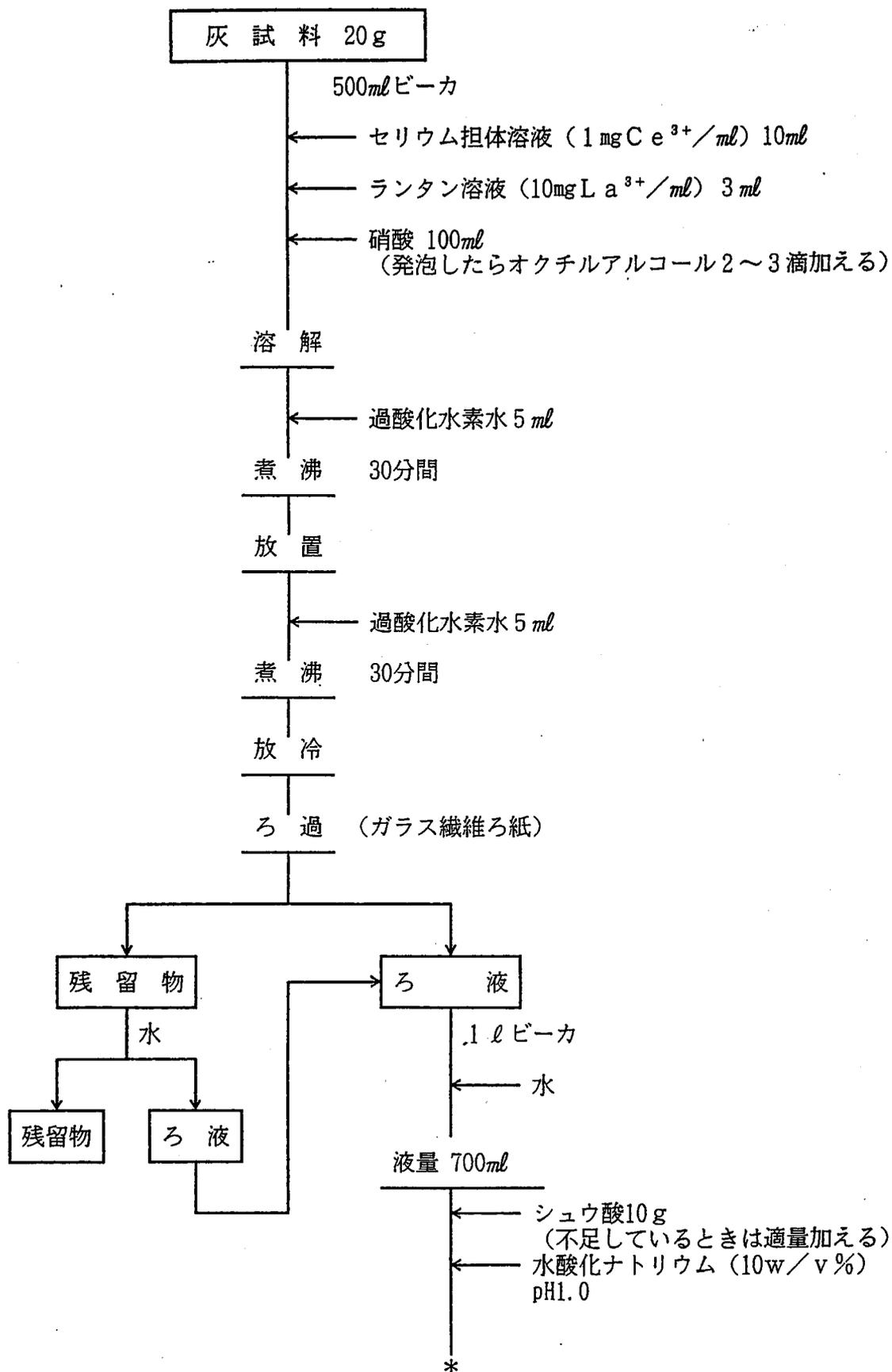
## 2.2.2 分析操作

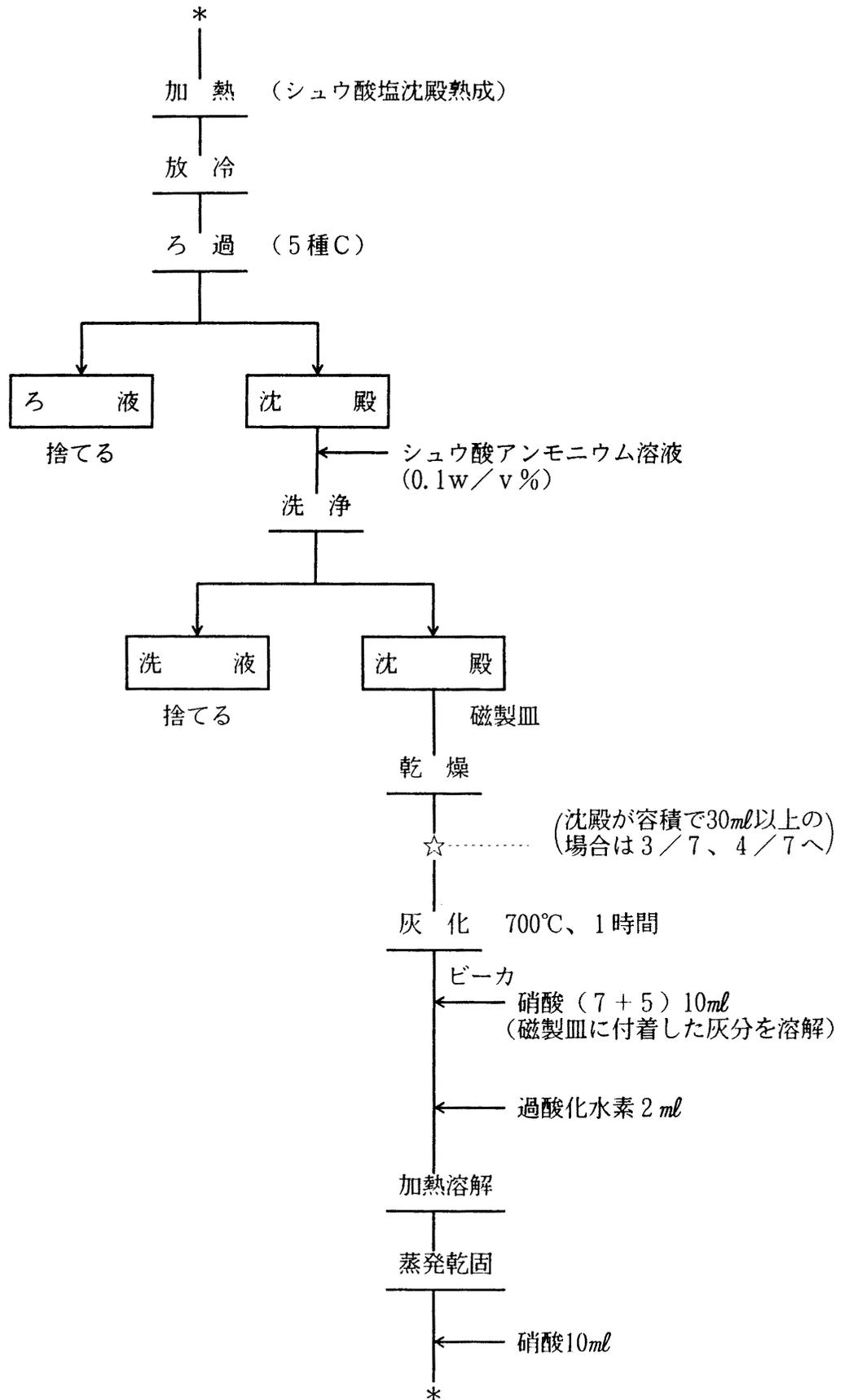
- (1) 灰化した試料20 gを 500mlビーカーにはかりとり、セリウム担体溶液 10 ml、ランタン溶液 3 mlを加えよくかき混ぜる。
- (2) 硝酸 100 mlを注意して加える（発泡したらオクチルアルコール 2～3 滴加える）。泡が消えてから過酸化水素水 5 mlを加え煮沸する。30分後再び過酸化水素水 5 mlを加えさらに30分間煮沸する。
- (3) 放冷後、ガラス繊維ろ紙(GA-100)を用いて吸引ろ過し、残留物を水で洗浄し、洗液をろ液に合わせる。
- (4) ろ液を 1 l ビーカーに移し水を加えて 700 mlとする。シュウ酸 10 gを加えて十分に攪はんして溶解する。
- (5) 水酸化ナトリウム溶液（10 w/v%）を少しずつ加え、約pH 1に調節し沈澱を生成させる。<sup>\*10</sup>
- (6) 2.1.2 分析操作(7)～(27)に同じ。

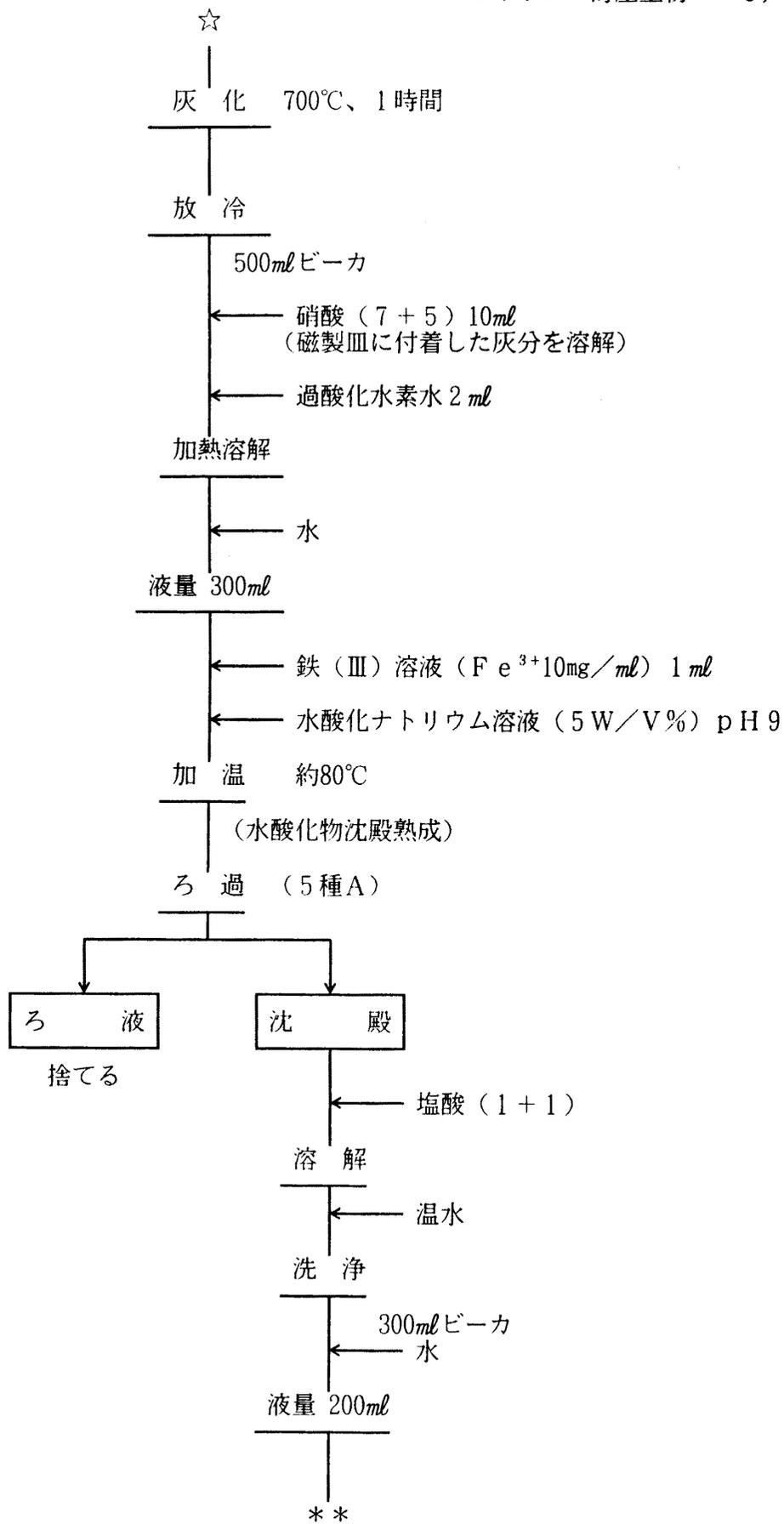
---

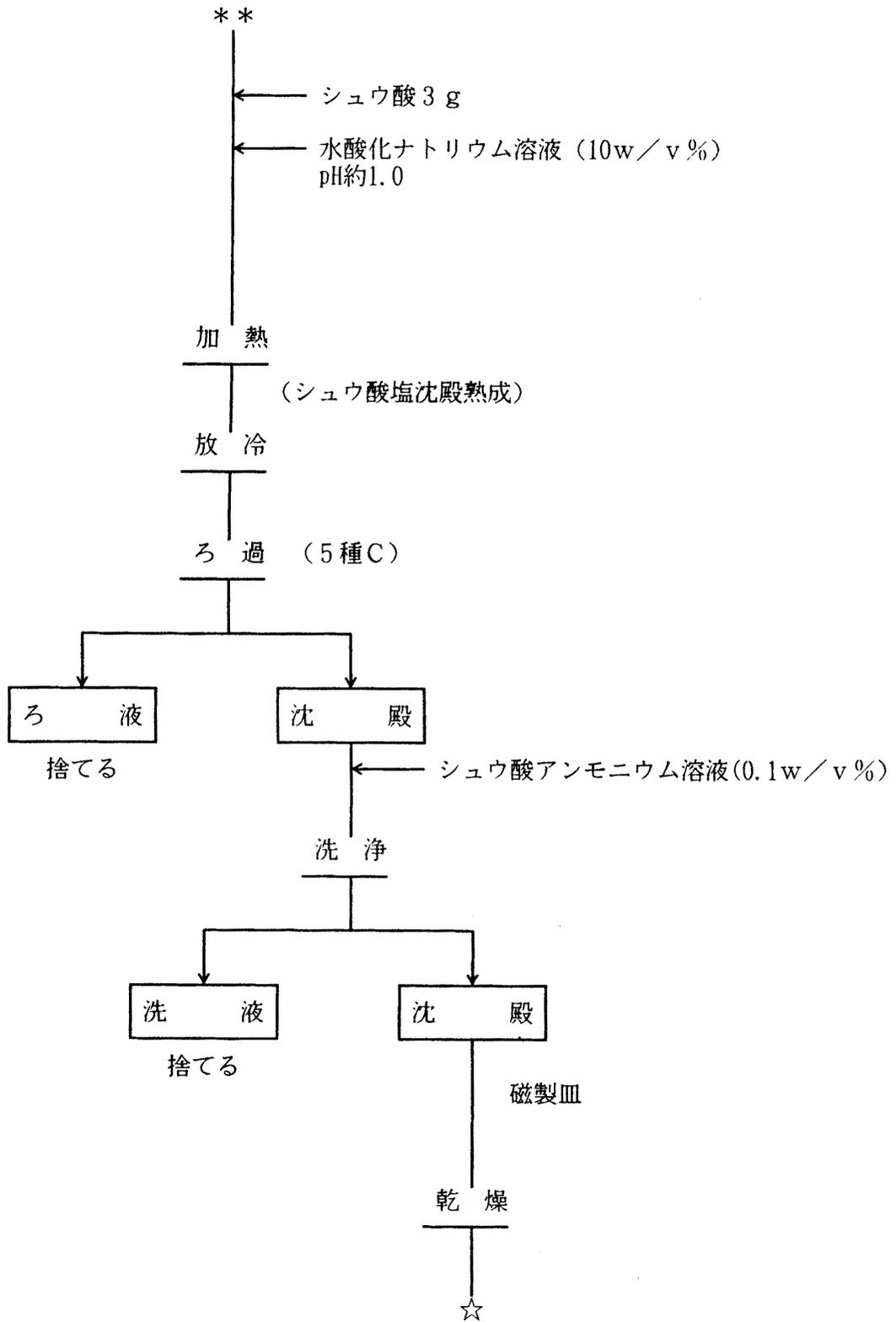
(\*10) 沈澱が生成しにくいときは、水酸化ナトリウム溶液（5 w/v%）を用いて約pH 1.5まで高めると生成する。

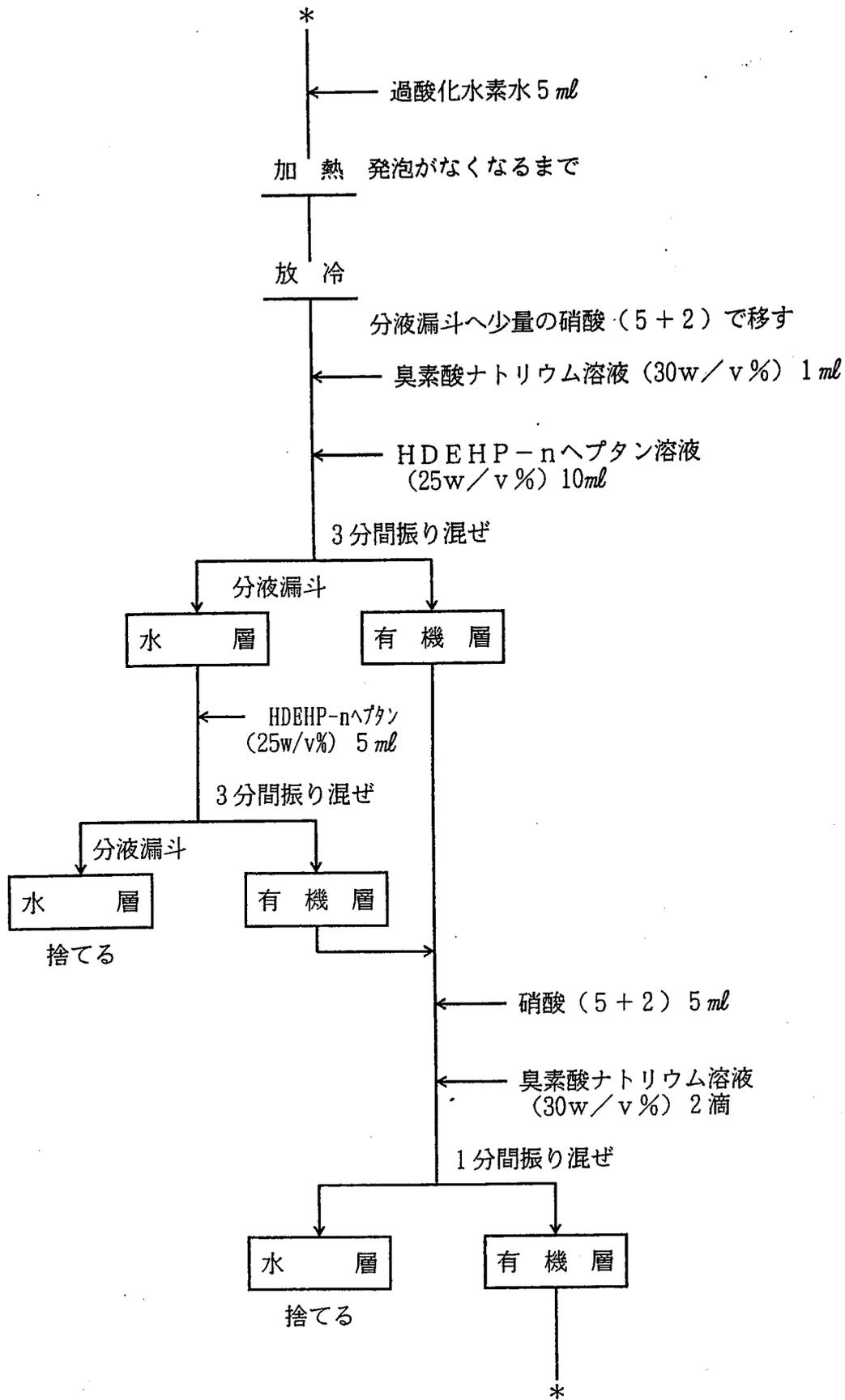
放射性セリウムの分析 (海産生物)

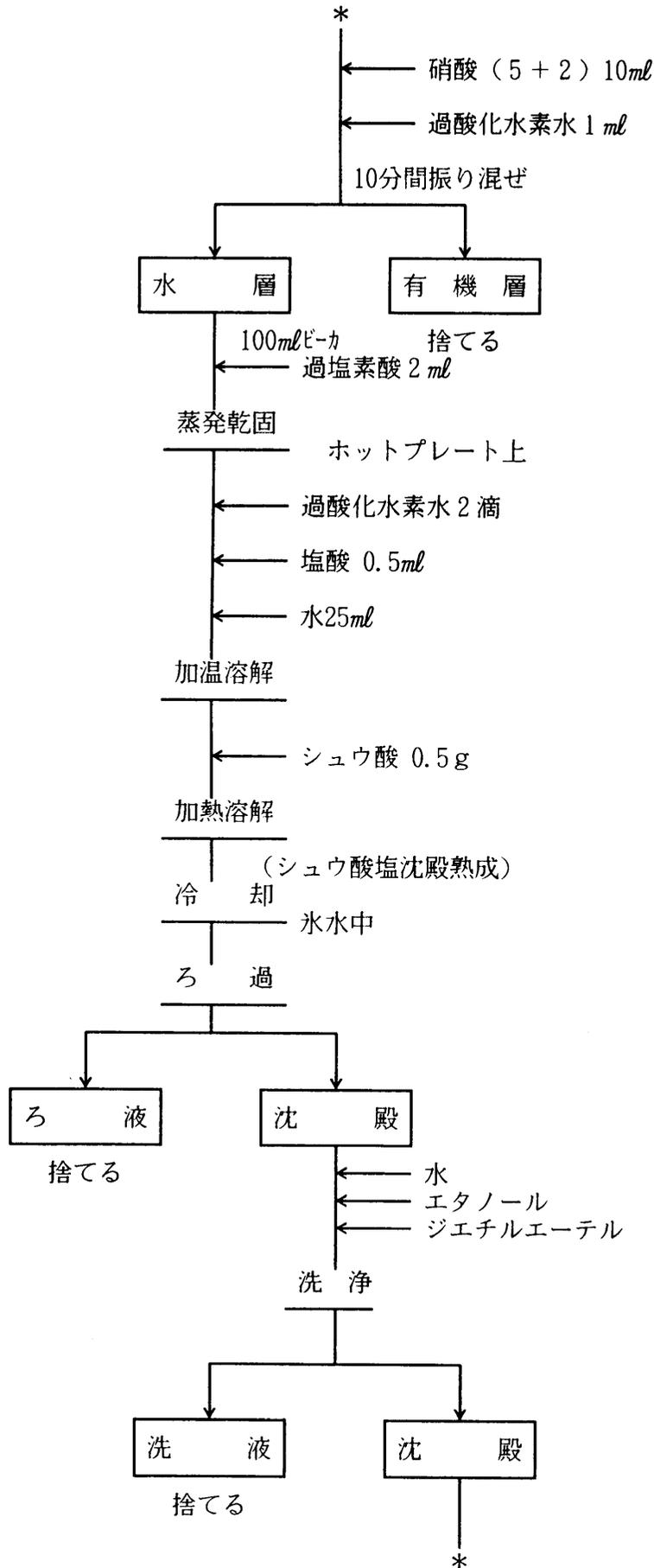


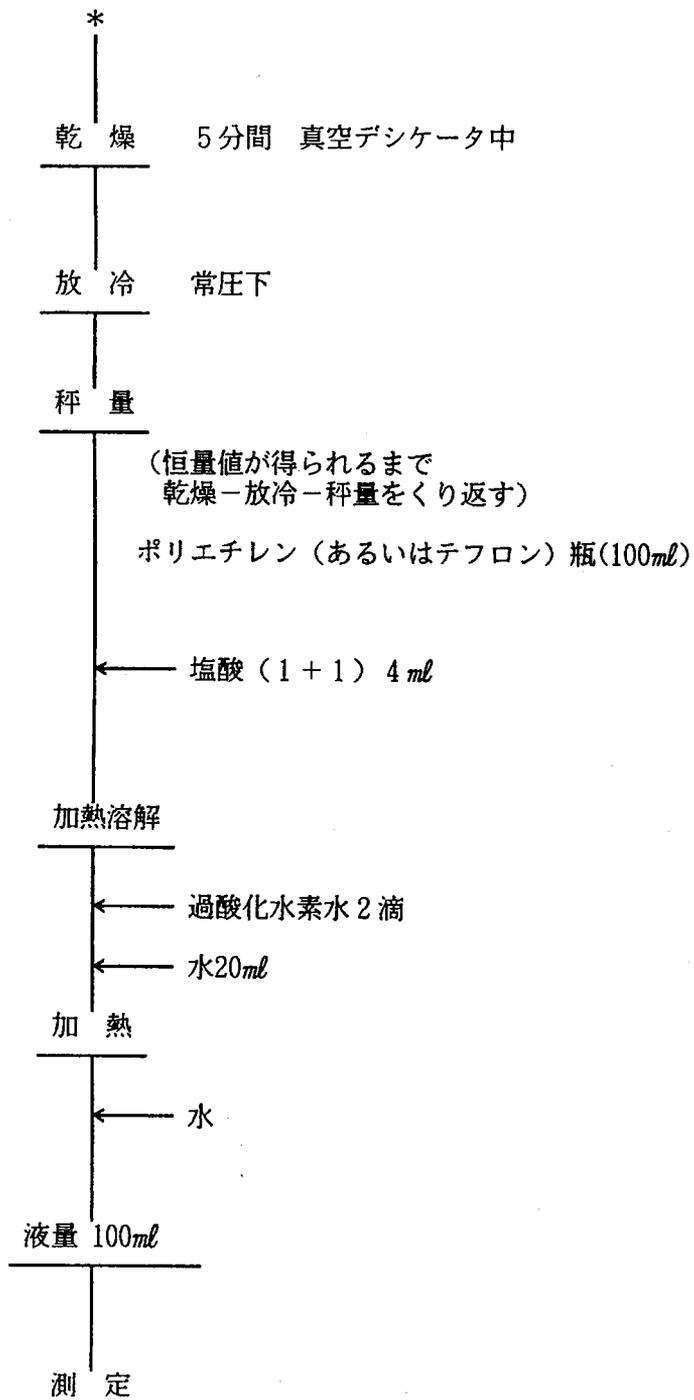












### 2.2.3 標準線源の作製 (3.3 参照)

2.1.3 と同じ。

### 2.2.4 放射能測定 (3.5 参照)

2.1.4 と同じ。

### 2.2.5 計 算

#### 〔1〕海産生物中の<sup>144</sup>Ceの濃度

2.2.4 で得た放射能の測定結果から次式に従って<sup>144</sup>Ceの濃度を計算する。

$$A' \pm \Delta' = \frac{\left\{ \left( \frac{N_s}{T_s} - \frac{N_b}{T_b} \right) \pm \left( \frac{N_s}{T_s^2} + \frac{N_b}{T_b^2} \right)^{\frac{1}{2}} \right\}}{60 \times \epsilon} \times \frac{K \times 10^3}{W}$$

A' : 海産生物中の<sup>144</sup>Ceの濃度 (Bq/kg生)

Δ' : 同上誤差

Ns : 試料の全計数值

Ts : 試料の測定時間 (単位: 分)

Nb : バックグラウンドの計数值

Tb : バックグラウンドの測定時間 (単位: 分)

ε : 計数効率 (%)

W : 分析供試量 (灰試料) (g)

K : 試料の灰分 (%)

#### 〔2〕減衰補正

2.1.5 〔2〕と同じ。

## 2.3 海底堆積物

海底堆積物にランタン及びセリウム担体を加え $^{144}\text{Ce}$ を硝酸で浸出したのち、水酸化物、炭酸塩さらにシュウ酸塩による沈澱分離により大部分の他元素から分離し、沈澱を硝酸に溶解し硝酸溶液とする。さらに溶媒抽出法により分離した後液体シンチレーション測定装置により定量する。

この方法により乾燥した海底堆積物50gを処理し、100分間測定したときおよそ0.6Bq/kg乾土の $^{144}\text{Ce}$ が分析できる。分析操作に要する時間は測定試料調製まで約12時間である。

### 2.3.1 試薬

#### (1) 担体溶液

セリウム担体溶液 (1 mg  $\text{Ce}^{3+}$  / ml)

ランタン溶液 (10 mg  $\text{La}^{3+}$  / ml)

塩化鉄(III)溶液 (10 mg  $\text{Fe}^{3+}$  / ml)

#### (2) 酸

硝酸 (7+5)、硝酸 (5+2)

塩酸 (1+99)、塩酸 (1+50)

過塩素酸

過酸化水素水 (30%)

シュウ酸

#### (3) 塩基

水酸化ナトリウム

水酸化ナトリウム溶液 (10 w/v%)

#### (4) 塩類

炭酸ナトリウム

臭素酸ナトリウム溶液 (30 w/v%)

シュウ酸アンモニウム溶液 (0.1 w/v%)

#### (5) 有機試薬

HDEHP-nヘプタン溶液 (25 w/v%)

オクチルアルコール

### 2.3.2 分析操作

- (1) 試料 50 g を平底磁製皿にはかりとり、500℃に調節した電気炉に入れ、3時間加熱する。
- (2) 放冷したのち、1ℓビーカーに移し、セリウム担体溶液 10 ml、ランタン溶液 3 ml を加える。
- (3) 硝酸 300 ml を泡立ちに注意して少しずつ加え、<sup>\*11</sup> さらに過酸化水素水 10 ml を加え 30 分間加熱する。30 分後再び過酸化水素水 10 ml を加え、さらに 30 分間煮沸する。
- (4) ブフナー漏斗にガラス繊維ろ紙(GA-100)をつけ、煮沸した試料を吸引ろ過し、残留物を温水 50 ml ずつで 3 回洗浄する。
- (5) ろ液と洗液を 3 ℓビーカーに移し、水を加えて 2.25 ℓ とする。
- (6) 攪はんしながら、水酸化ナトリウム（顆粒状）を少しずつ加えて pH10 以上と<sup>\*12</sup>する。  
攪はんしながら炭酸ナトリウム 10 g を加えて、加熱煮沸する。一晩放冷する。
- (7) 傾斜法により上澄み液を捨て、残りを遠心分離する。
- (8) 少量の塩酸で溶解し、1 ℓビーカーに移し、水を加えて 700 ml とする。
- (9) シュウ酸 10 g を加えて、十分に攪はんして溶解する。攪はんしながら、水酸化ナトリウム溶液（10 w/v%）を少しずつ加え、pH 1.0 に調節し沈澱を生成させる。<sup>\*13</sup>
- (10) 2.1.2 分析操作(7)~(9)に同じ。

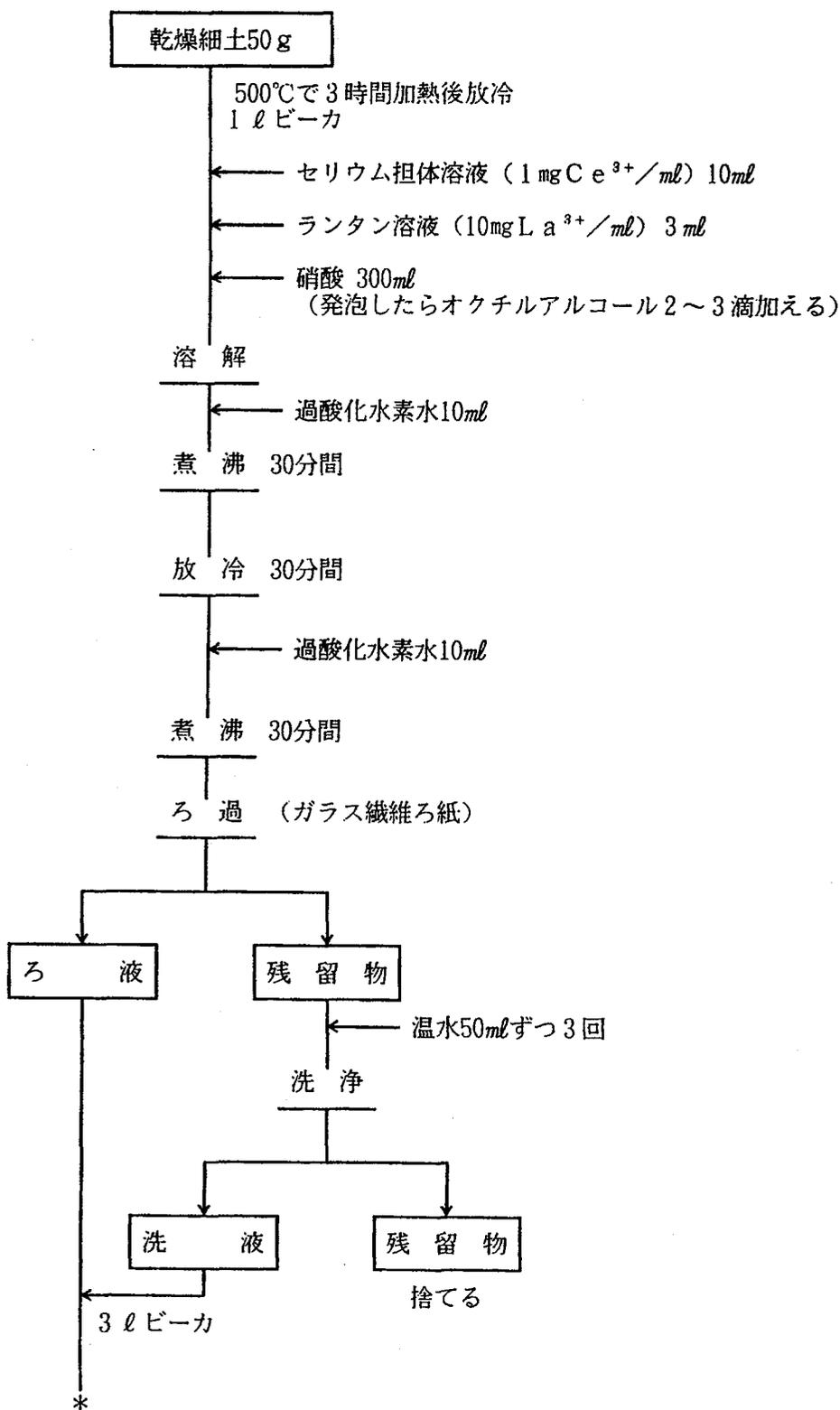
---

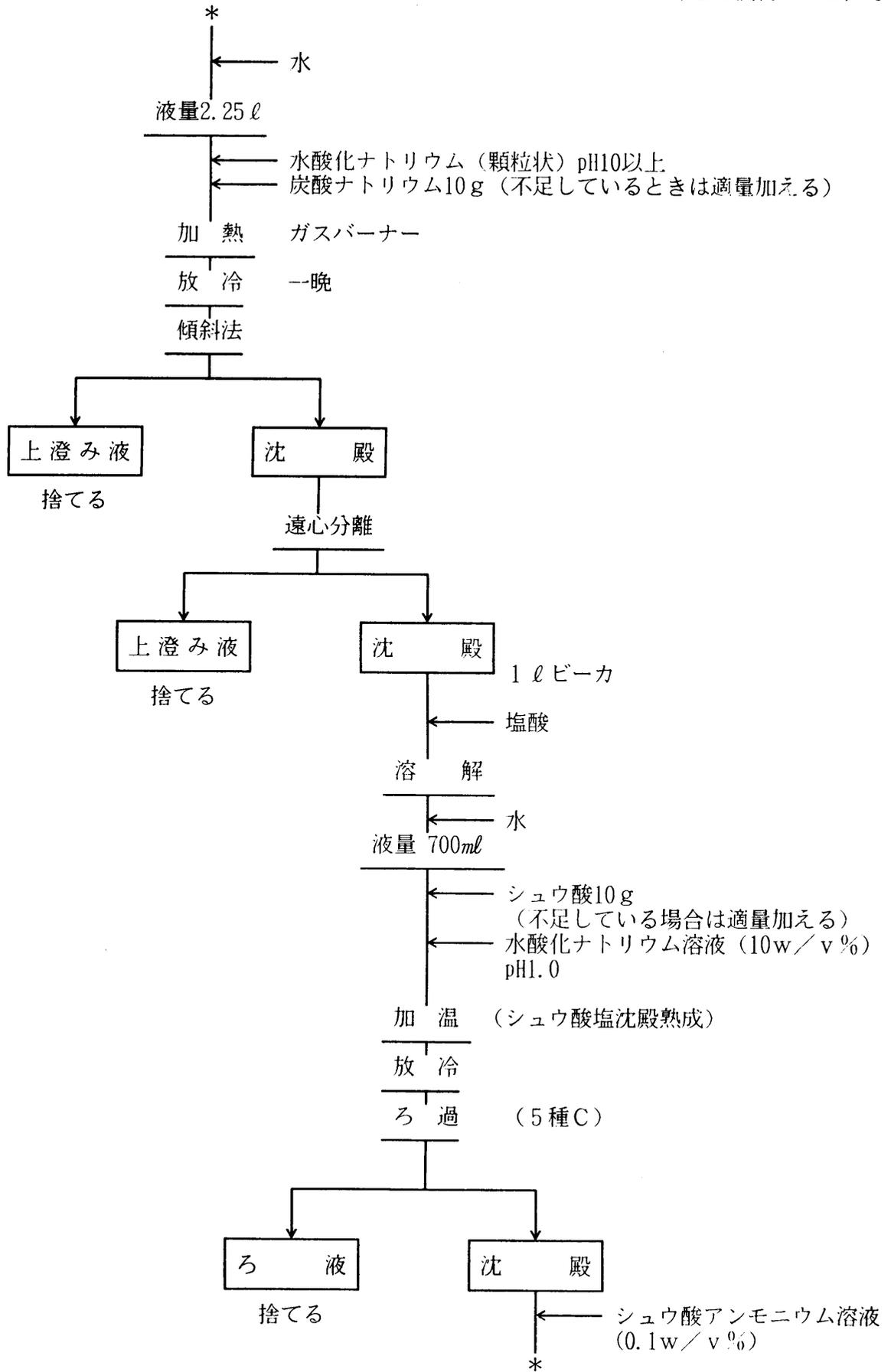
(\*11) 泡が吹き出す場合はオクチルアルコールを数滴加える。

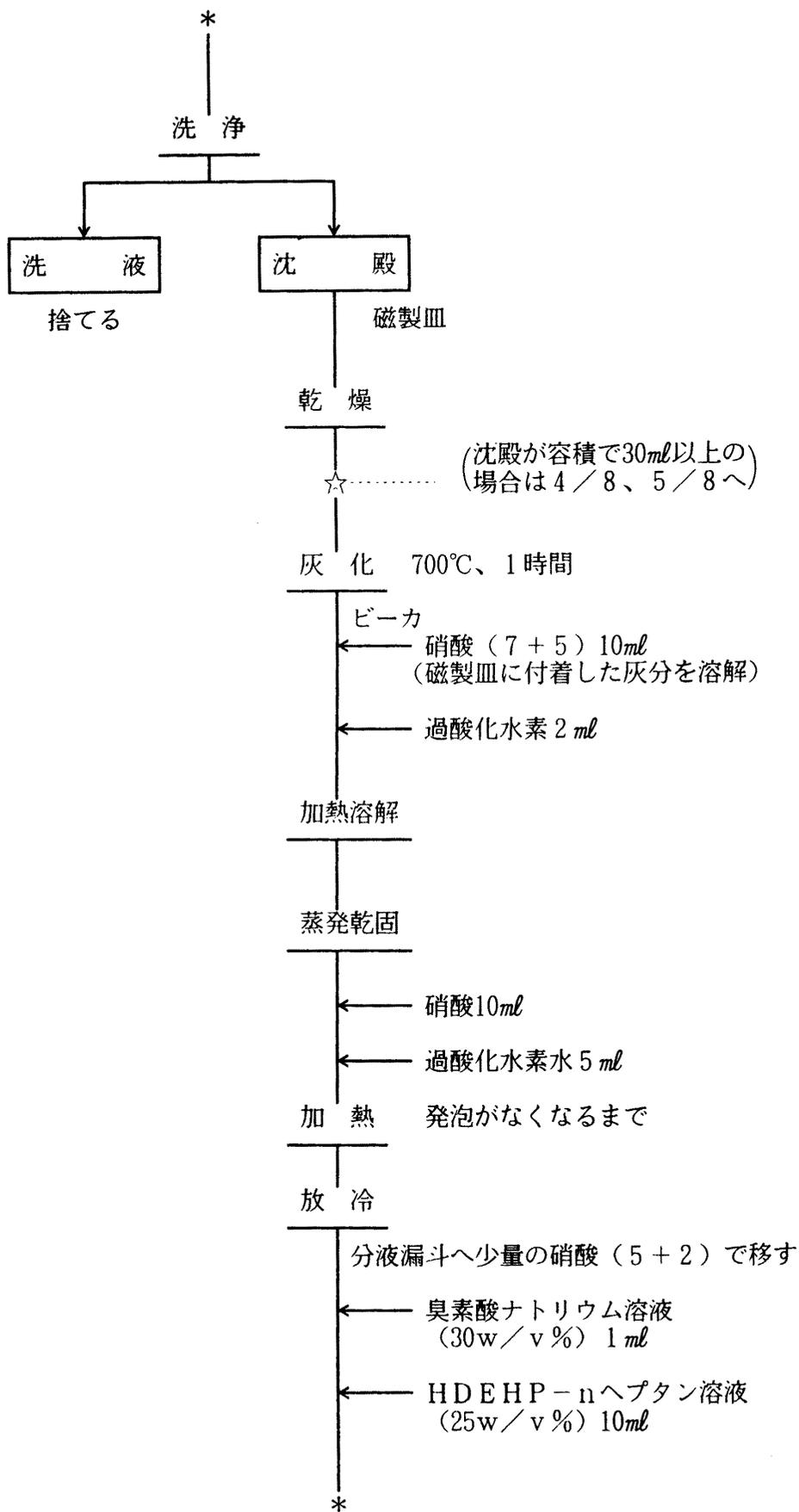
(\*12) 万能試験紙を用いる。

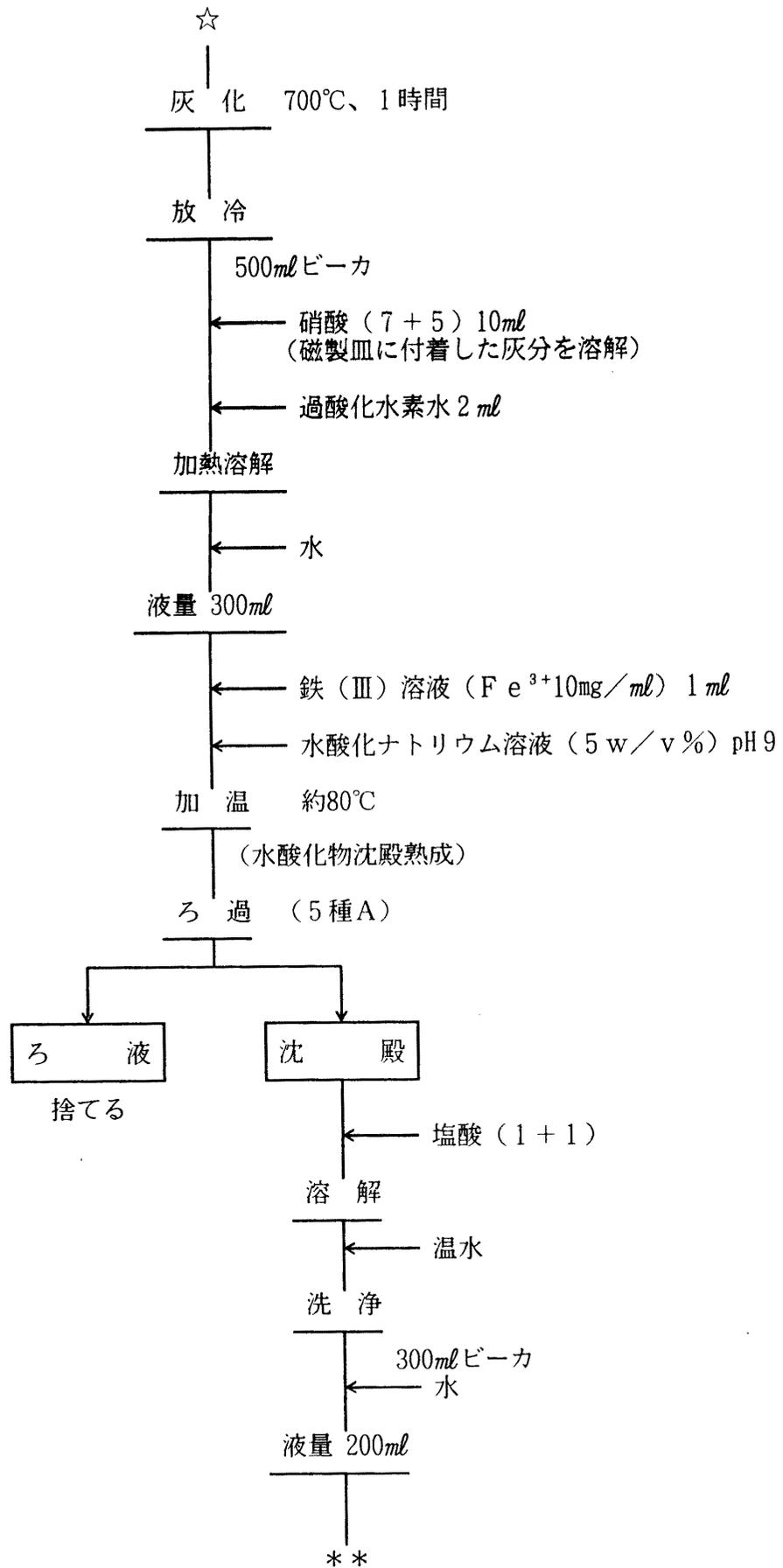
(\*13) 沈澱が生成しにくいときは pH を 1.5 まで上げるとよい。

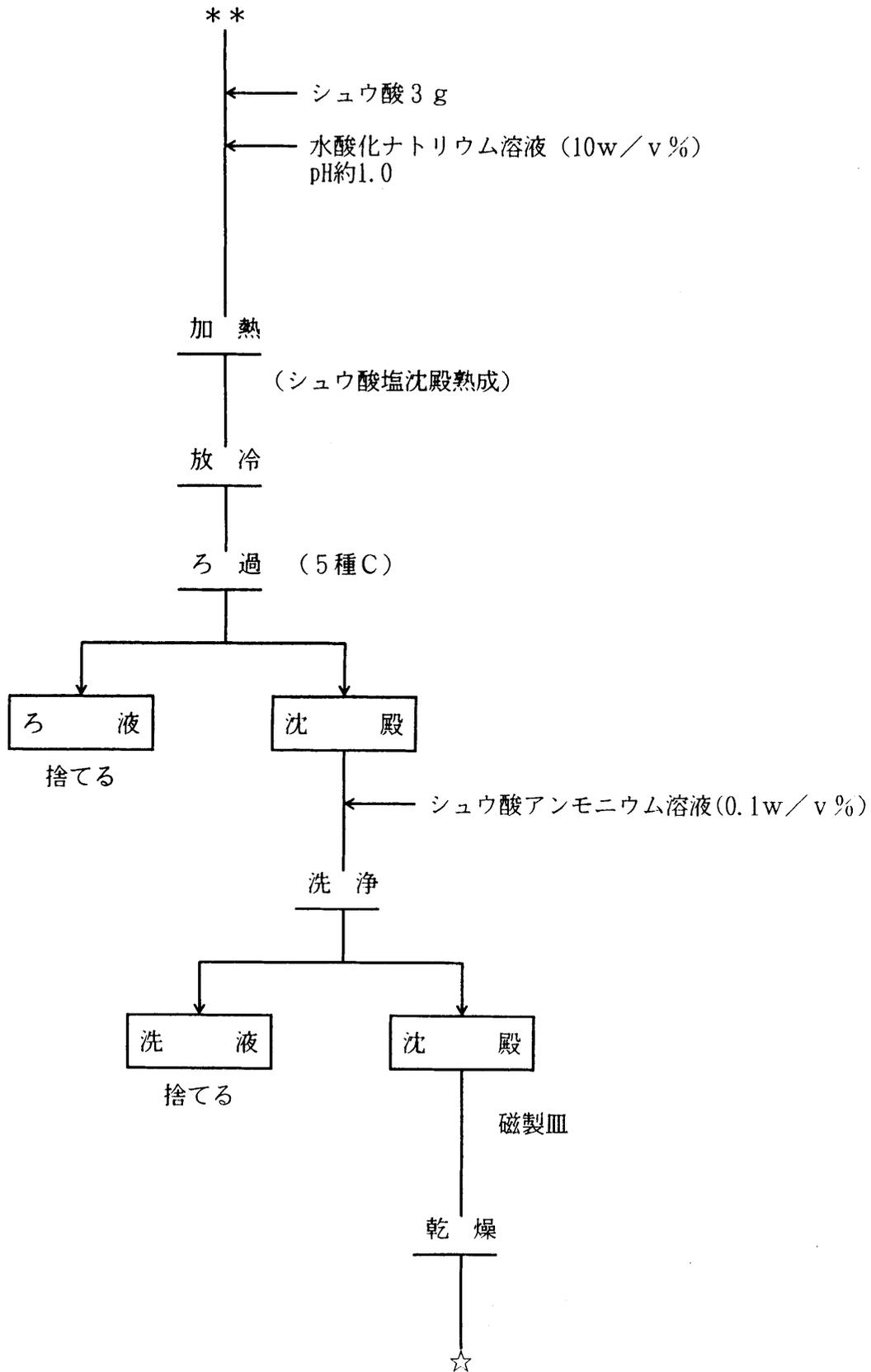
放射性セリウムの分析 (海底堆積物)

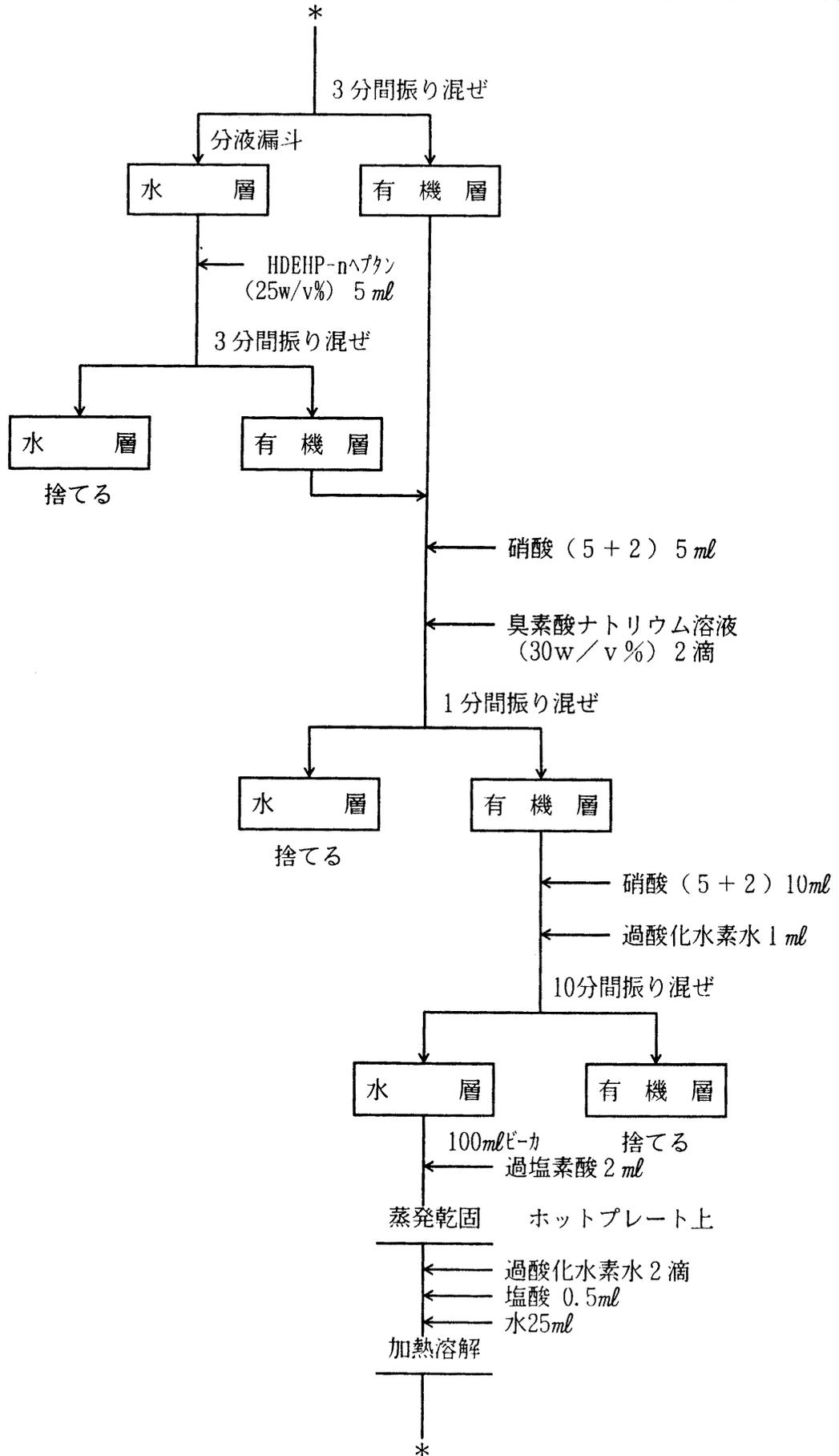


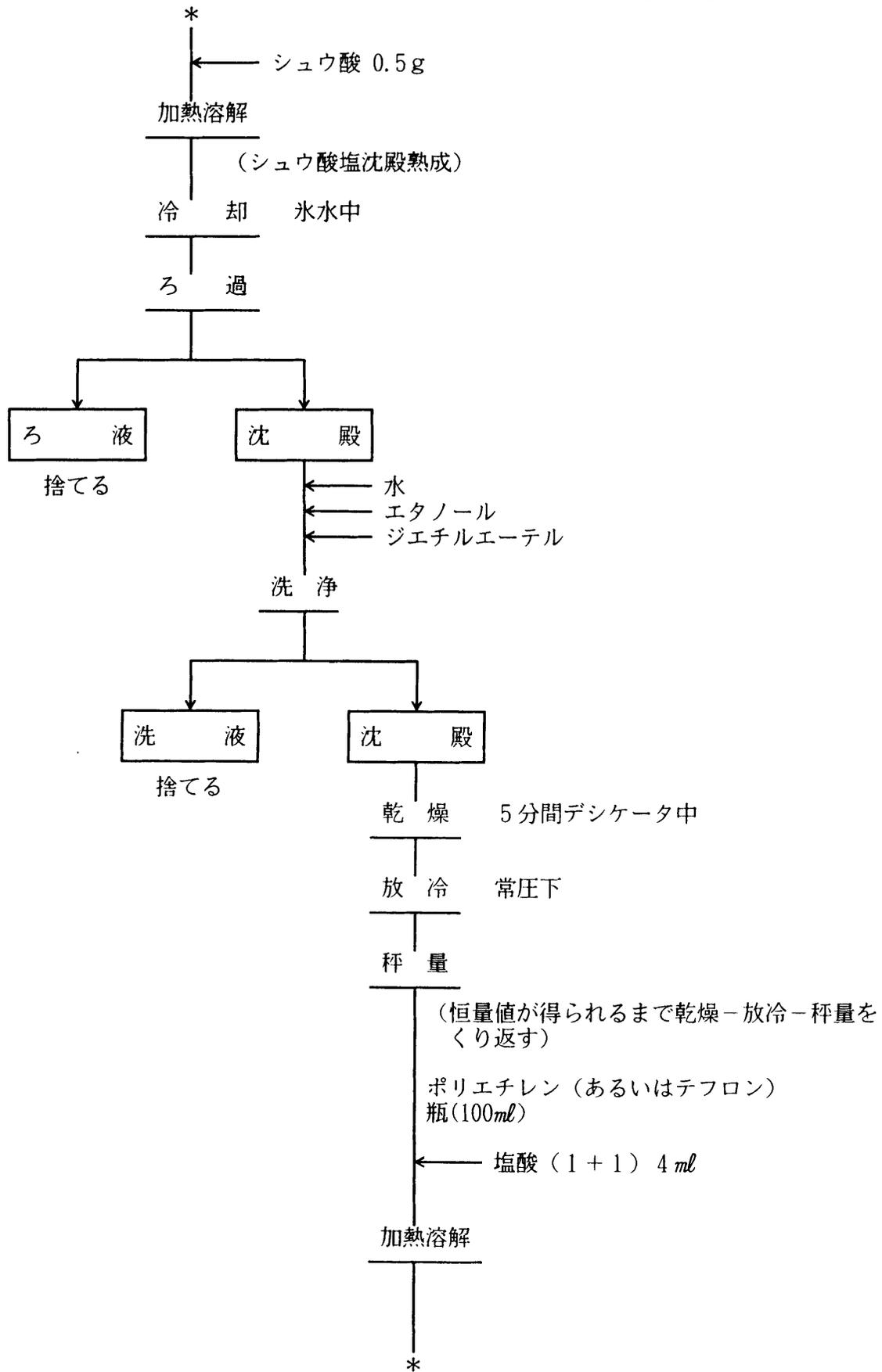


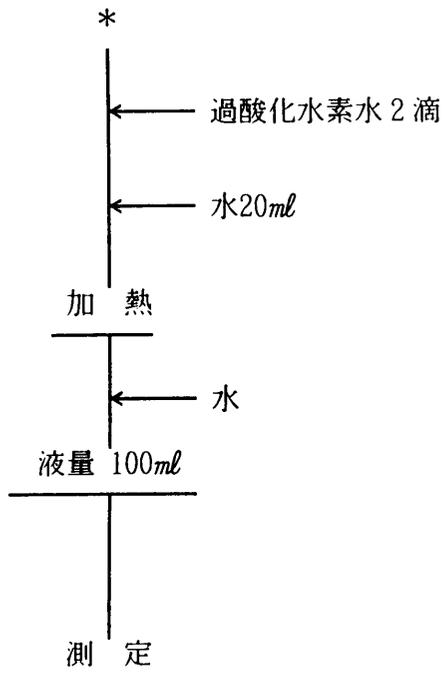












### 2.3.3 標準線源の作製 (3.3 参照)

2.1.3 と同じ。

### 2.3.4 放射能測定 (3.5 参照)

2.1.4 と同じ。

### 2.3.5 計 算

#### 〔1〕 海底堆積物中の $^{144}\text{Ce}$ の濃度

2.3.4 で得た放射能の測定結果から次式に従って $^{144}\text{Ce}$ の濃度を計算する。

$$A' \pm \Delta' = \frac{\left[ \left( \frac{N_s}{T_s} - \frac{N_b}{T_b} \right) \pm \left( \frac{N_s}{T_s^2} + \frac{N_b}{T_b^2} \right)^{1/2} \right]}{60 \times \epsilon} \times \frac{10^5}{W}$$

$A'$  : 海底堆積物中の $^{144}\text{Ce}$ の濃度 (Bq/kg乾土)

$\Delta'$  : 同上誤差

$N_s$  : 試料の全計数值

$T_s$  : 試料の測定時間 (単位:分)

$N_b$  : バックグラウンドの計数值

$T_b$  : バックグラウンドの測定時間 (単位:分)

$\epsilon$  : 計数効率 (%)

$W$  : 分析供試量 (g)

#### 〔2〕 減衰補正

2.1.5 と同じ。

### 第3章 チェレンコフ光によるβ線測定法

#### 3.1 チェレンコフ光測定

荷電粒子が、屈折率nの媒体中を、媒体中の光の速度(c/n)を超える速度vで通るとき、チェレンコフ光が生じる。電子の運動エネルギーEは次式で与えられる。

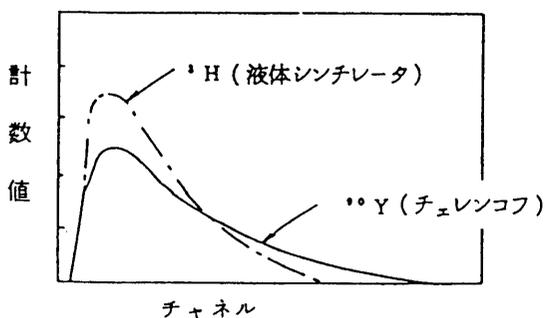
$$E = m_0 c^2 \left( 1 - \frac{1}{\sqrt{1 - \beta^2}} \right) \quad m_0 c^2 = 0.511 \text{ MeV}$$

$$\beta = v / c$$

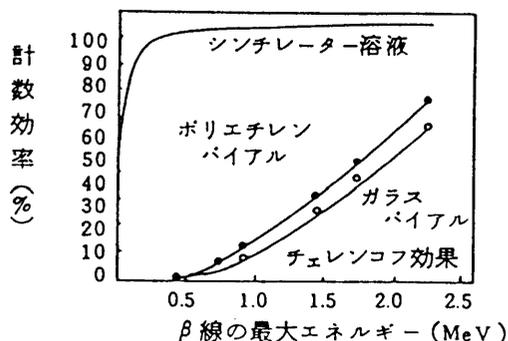
チェレンコフ光を出すしきい値エネルギーは  $v = c/n$ 、すなわち  $\beta = 1/n$  としたEである。これより、水 ( $n=1.33$ ) の場合は、 $E=0.264 \text{ MeV}$  となる。β線によって発生するチェレンコフ光の光子数は、単位距離当り、 $1 - 1/(\beta n)^2$  に比例する。すなわち、エネルギーが大きくなるほど、また屈折率が大きくなるほど光子数が多くなる。放出される光は指向性をもつが、 $E > 0.5 \text{ MeV}$  では進行方向に対してほぼ  $30^\circ \sim 40^\circ$  の円錐方向となる。波長はおよそ  $200 \sim 700 \text{ nm}$  の広範囲にわたり、発光量は波長の3乗に逆比例(短波長光が多い)している。

チェレンコフ光測定において留意すべき点は次の通りである。

- 1) 媒体の屈折率は高いほどよい。
- 2) 短波長成分が多く、また指向性があるので、用いるバイアル、光電子増倍管の入射窓、検出部の反射壁などの材質に注意する。
- 3) 化学クエンチングには関係ないが、色クエンチング(とくに短波長成分)の影響を受けるので、黄色や赤色を呈する試料は不適當である。
- 4) 出力パルスはシンチレーションのパルスにくらべてかなり小さく、検出効率は低い。実際にはβ線エネルギーが  $1 \text{ MeV}$  以上のものについて有効である(下図参照)。



トリチウムの液体シンチレーションスペクトルと  $^{60}\text{Co}$  のチェレンコフ光スペクトル



チェレンコフ効果とシンチレータ溶液によるβ線の計数効率の比較  
 シンチレータ溶液: トルエン+PPO+POPOP  
 チェレンコフ効果: 水 (1.5 ml) (文献番号70)

### 3.2 測定機器及び測定法の概要

#### [液体シンチレーション測定装置]

現在市販されている液体シンチレーション測定装置(LSC)の多くは $^3\text{H}$ や $^{14}\text{C}$ など、特定核種の測定に重点が置かれている。市販のLSCは基本的な性能に大きく変わるところがなく、クエンチング自動補正機構などの自動化の傾向が一層強まり、便利になっている。また、多くの機種では、手動による調整と計測が可能であり、本分析法の対象とする核種<sup>\*1</sup>( $\alpha$ 核種およびエネルギーが数100keV以上の $\beta$ 核種)に十分適用できる。

#### [測定法の概要]

$^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y} + ^{89}\text{Sr}$ のような複合核種の試料については、連立方程式による方法<sup>\*2</sup>や娘核種の時間的關係を用いる方法などがある。また、高エネルギー $\beta$ 線核種( $^{90}\text{Y}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{144}\text{Pr}$ )については、上記の方法の他に水溶液などを直接に測定試料とするチェレンコフ光測定法が有効である。これは、出力信号が微弱(液体シンチレータで $^3\text{H}$ を測る程度)で計数効率も液体シンチレーション測定にくらべて低いが、化学クエンチングの影響がないこと、試料調製が容易なこと、試料の再使用ができること等の長所がある。

### 3.3 チェレンコフ光測定用標準線源

チェレンコフ光測定の場合は、計数効率は化学クエンチングの影響を受けないので、標準線源とバックグラウンド用試料それぞれ1個作製するのみでよい。

- 1) 測定瓶を2個用意する。
- 2) 放射能標準水溶液より正確に一定量(放射能は100 Bq程度)分取し、1個の瓶に入れる。
- 3) 分析試料と同一の媒体(ふつうは蒸留水)を加えて一定量(100mlまたは20ml)にする。  
また、バックグラウンド用試料は同一の媒体を同一容量入れる。
- 4) 密栓し、調製(または検定)年月日、放射能などを瓶蓋上部に記載する。

---

(\*1) 核データについては表I-2(P. 4)参照。

(\*2) 解説I-7参照

### 3.4 $\beta$ 線測定条件の設定

環境試料のような微弱放射能を測定する場合には、計数誤差をできるだけ小さくするような測定条件の設定が望ましい。<sup>\*3</sup> その設定条件の目安として、FOMがしばしば用いられる。計数効率をE(%)、バックグラウンド計数率をB(cpm)とすると、 $FOM = E^2 / B$  (または  $E / \sqrt{B}$ ) を最大にする測定条件を用いる。そのため、試料分析用チャンネル(Aチャンネルとする)の増幅器ゲイン、下限および上限ディスクリミネータを以下に示す手順で設定する。

- 1) 標準線源およびバックグラウンド用試料の計3試料をサンプルチェンジャに計数開始約1時間前(室温型測定器の場合はその必要はない)にセットし、標準線源を検出部に入れる。
- 2) 液体シンチレーション測定装置のAチャンネルを次のように設定する。  
下限ディスクリミネータ(LLD)を800、上限ディスクリミネータ(ULD)を900に設定する。(ただしフルスケールを1000とした場合)
- 3) Aチャンネルの増幅器ゲインを最小値から順次増加し、そのつど計数率 $n_A$ を求める。  
 $n_A$ が放射能のおよそ1%ぐらいになるゲインを見出しそこに固定する。クエンチャ量0の標準線源を取り出し、もう一方のクエンチング標準線源を検出部に入れる。
- 4) LLDを50に固定し、ULDを900、850、800……のように順次下げて、そのつど標準線源の計数効率(E)を求める。
- 5) バックグラウンド用試料を検出部に入れる。  
5)と同様にLLDを50としULDを900、850、800……のように順次下げて、そのつど計数率(B)を求める。
- 6) リニアグラフ用紙の横軸をULDの目盛り、縦軸を $E^2 / B$ 値としてプロットする。
- 7) 同図より $E^2 / B$ 値の最大値を与えるULDに設定し直す。

---

(\*3) 分析目標値の算出については解説4参照。

### 3.5 チェレンコフ光による $\beta$ 線測定

チェレンコフ効果を利用した $\beta$ 放射能測定法を $^{90}\text{Y}$  (2.28 MeV)、 $^{89}\text{Sr}$  (1.49 MeV) および  $^{144}\text{Pr}$  (3.00 MeV) の分析に適用する。チェレンコフ光測定のように微小パルスを計数する場合、ノイズ等の混入によって誤った計数が得られる危険性がある。これをさけるため、長時間1回測定をするより、繰り返し多数回測定をして統計処理をする方がよい。<sup>\*4</sup> 以下にその手順を示す。

- 1) 3.3に述べたチェレンコフ光測定用標準線源、同バックグラウンド用試料および測定試料をサンプルチェンジャにセットする。
- 2) 標準線源を検出部に送り込む。
- 3) 3.4  $\beta$ 線測定条件の設定に準じて、FOMが最大になるように増幅器ゲイン、LLDおよびULDを設定する。
- 4) 計数誤差(標準偏差)が1%未満になるように測定時間を設定して、標準線源の計数率 $n_A$  (cpm)を求める。
- 5) 標準線源の放射能を $N_0$  (Bq)とすると、計数効率は $\varepsilon = n_A / (N_0 \times 60)$ 。
- 6) サンプルチェンジャを動かして測定試料を検出部に送り込む。
- 7) 測定時間を $t_s$ 分として $J_s$ 回測定し、そのつど計数率 $n_{si}$  (cpm)を求める。例えば、 $t_s = 10$ 分、 $J_s = 10$ 回。
- 8) サンプルチェンジャを動かしてバックグラウンド用試料を検出部に送り込む。
- 9) 測定時間を $t_{BG}$ 分として $J_{BG}$ 回測定し、そのつど計数率 $n_{BGi}$  (cpm)を求める。
- 10) 解説3に準じて異常データの棄却を行い、正味計数率 $n$  (cpm) およびその標準偏差 $\sigma$ を計算する。
- 11) 測定試料の放射能 $A$ およびその誤差 $\Delta$ を求める。

---

(\*4) 解説3参照。

## II. 液体シンチレーション測定 ( $\beta$ 線) による 放射性コバルト及び放射性ヨウ素の分析法

## 第 1 章 放射性コバルトの分析<sup>\*1</sup>

分析対象試料は海水、海産生物（灰）および海底堆積物とする。イオン交換法でコバルトを分離したのち、乳化シンチレータを加えて測定試料とする。<sup>\*2</sup> 本法は電着により測定試料を調製する従来法に比べ分析所要時間を短縮できる。

分析目標値は測定時間を100分とし、バックグラウンド計数の計数誤差の3倍以上を有意とした場合、およそ60 mBq/試料である。<sup>\*3</sup>

### 1.1 海水

海水にコバルト担体と酸化剤<sup>\*4</sup>を加えて加熱したのち、<sup>60</sup>Coを水酸化物沈澱等に共沈分離する。次いで陰イオン交換法でコバルトを分離し、乳化シンチレータを加え液体シンチレーション測定装置により定量する。この方法により海水10ℓ処理でき、100分間測定でおよそ6 mBq/ℓの<sup>60</sup>Coが分析できる。分析操作に要する時間は測定試料調製まで約25時間である。

#### 1.1.1 試薬

##### (1) 担体溶液

コバルト担体溶液 [10 mg Co<sup>2+</sup>/ml HCl (1+119)]

##### (2) 酸

塩酸 (1+119)、塩酸 (1+11)、塩酸 (1+2)、塩酸 (1+1)、塩酸 (2+1)

##### (3) 塩基

水酸化ナトリウム溶液 (10 w/v %)

##### (4) 塩類

ペルオキソ二硫酸カリウム K<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>8</sub>

過ヨウ素酸ナトリウム溶液 NaIO<sub>4</sub> (4.6 w/v %)

---

(\*1) 分析法は科学技術庁放射能測定法シリーズ5「放射性コバルト分析法」(平成2年改訂)をもとに、液体シンチレーション測定法に合うよう一部手直した。

(\*2) 本分析法による除染係数は解説Ⅱ-2参照。

(\*3) <sup>60</sup>Coのような原子核の励起レベルの寿命が検出器の分解時間より短いβ-γ線放出核種の測定には反同時計数回路の採否に注意を要する。(解説Ⅱ-3参照)

(\*4) 解説Ⅱ-4参照。

(5) 有機試薬

アセトフェノン

乳化シンチレータ<sup>\*5</sup>

(6) 陰イオン交換樹脂<sup>\*6</sup>

1.1.2 分析操作

- (1) 海水 10 l を 10 l ビーカーにとり、コバルト担体溶液 1 ml を加える。<sup>\*7</sup>
- (2) ガラス棒でよくかき混ぜながら、ペルオキソ二硫酸カリウム 1 g と過ヨウ素酸ナトリウム溶液 50 ml を加える。<sup>\*8</sup>
- (3) 70℃以上で2時間加熱したのち、水酸化ナトリウム溶液を加えてpH約6.5 (BTB試験紙など) とし、さらに30分間加熱して沈殿を熟成する。<sup>\*9</sup>
- (4) 沈殿が沈降するまで放置した後、傾斜法で上澄み液を捨て、沈殿は遠心分離する。<sup>\*10</sup>
- (5) 沈殿は塩酸 (1+1) 10~20 ml で溶解し、不溶解物があればろ過する。

---

(\*5) 市販の乳化シンチレータにはInsta-gel, Aquasol-2 などがある。3.2参照。

(\*6) Dowex® 1×8、Amberlite® CG-400、Diaion® SA#100 のような強塩基性陰イオン交換樹脂100~200メッシュを用いる。

コンディショニング(P.10 参照)した陰イオン交換樹脂をイオン交換カラム(内径1cm、高さ20cm、下方コック付ガラスフィルター封じ込みガラス管)に樹脂柱の高さが14cmになるようにつめる。塩酸(2+1)50mlを毎分1mlの流速でカラムに通し飽和させる。

(\*7) 全操作を通してのコバルト回収率は95%なので、特別の場合を除いては回収率の補正は必要ない。

解説Ⅱ-5参照。

(\*8) 解説Ⅱ-4参照。

(\*9) 解説Ⅱ-6参照。

(\*10) 一夜放置すれば十分である。

(\*11) ろ紙でろ過し、次に塩酸(1+1)で溶解する時に塩素ガスが発生してろ紙が破れる恐れがあるので遠心分離する。

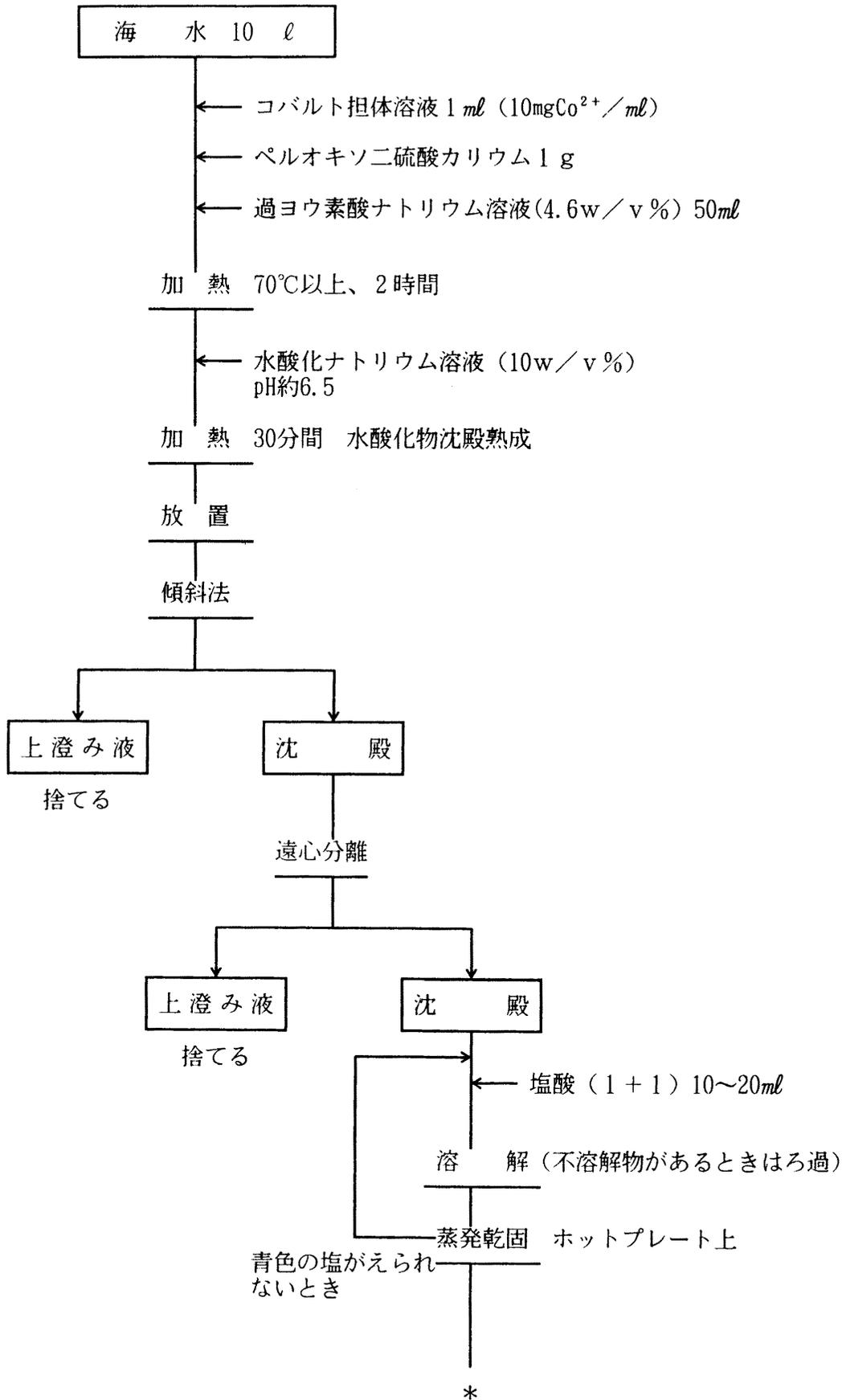
- (6) ホットプレート上で蒸発乾固する。<sup>\*12</sup>
- (7) 塩酸(2+1) 20 mlを加えて溶解する。
- (8) あらかじめ準備した陰イオン交換樹脂カラムに毎分1 mlの流速で流し、さらに塩酸(2+1) 50 mlを流す。<sup>\*13</sup> 流出液は捨てる。
- (9) 塩酸(1+2)を流してコバルトを溶離し、溶出液を100mlビーカーに受ける。コバルトの吸着帯(緑色)が流出しきったのち、さらに20mlを流す。
- (10) 溶出液はホットプレート上で蒸発乾固する。
- (11) 乾固物を塩酸(1+1) 5 mlで溶解しテフロン瓶(100 ml)に移す。
- (12) ビーカーを塩酸(1+1) 5 mlで洗い、洗液もテフロン瓶(100 ml)に加える。
- (13) 乳化シンチレータ90 mlを加え振り混ぜた後、冷暗所に約1時間放置する。

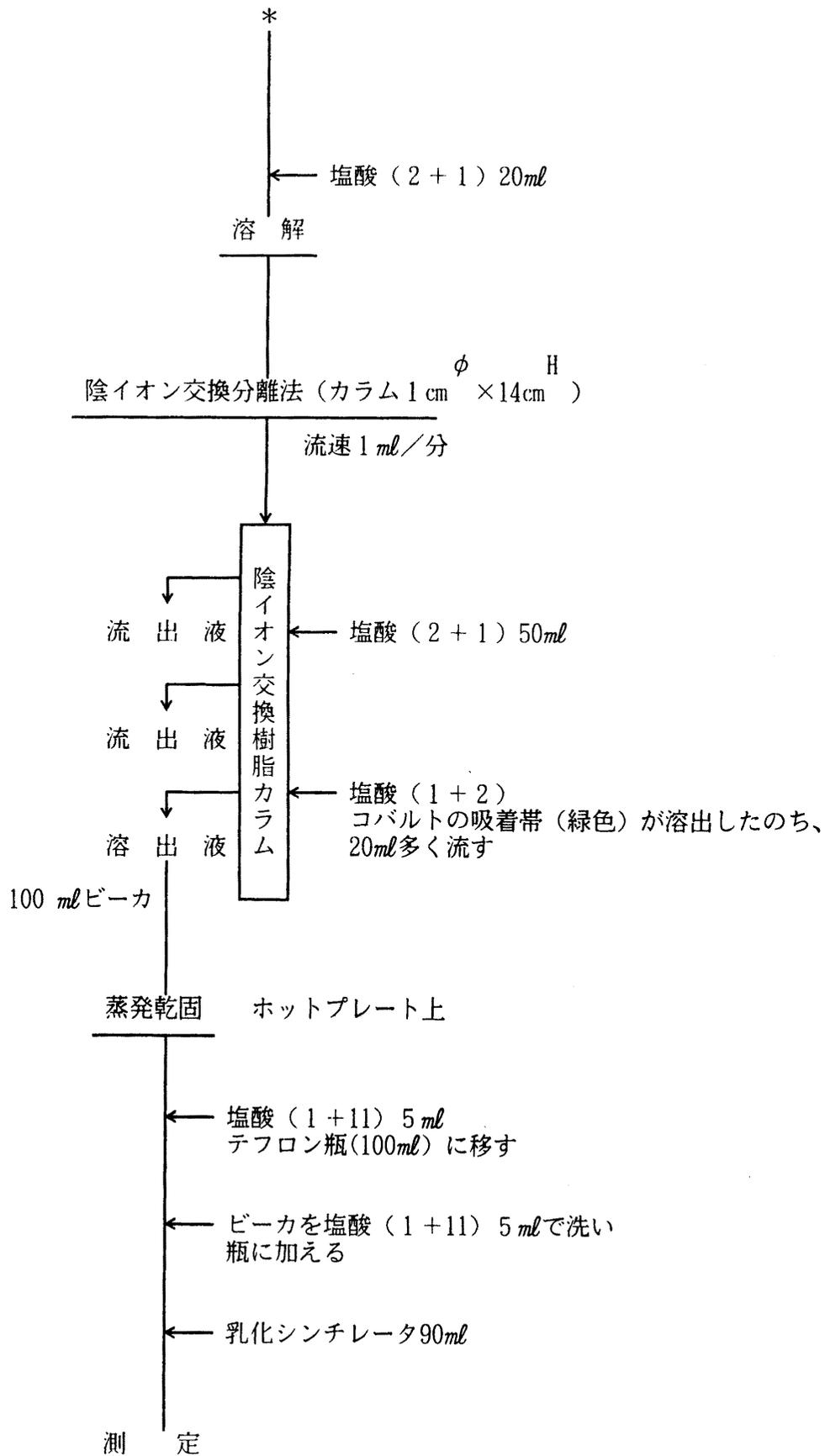
---

(\*12) 沈澱を塩酸(1+1)に溶解した時に過ヨウ素酸イオンが多く存在すると黄～橙色溶液となり、蒸発乾固すると緑色の塩となることがある。このような時は次のイオン交換分離の時に妨害となるので青色の塩が得られるまで塩酸溶解、蒸発乾固を繰り返す。

解説Ⅱ-6 参照。

(\*13) 解説Ⅱ-7 参照。





### 1.1.3 標準線源の作製 (3.3 参照)

- (1) 100ml ビーカを5 ~7 個用意し、各々に<sup>60</sup>Co 標準溶液<sup>\*14</sup>の一定量 (10 Bq程度) をとり、ホットプレート上で蒸発乾固する。
- (2) 乾固物を塩酸(1 + 11)5mlで溶解し、テフロン瓶(100ml)に移す。
- (3) ビーカを塩酸(1 + 11)5mlで洗い、洗液もテフロン瓶(100ml)に加える。
- (4) 乳化シンチレータ90mlを加える。
- (5) クエンチャとしてアセトフェノンを0、0.05、0.1...1(容積%)のように添加<sup>\*15</sup>し、振り混ぜた後密栓する。調製(または検定)年月日、放射能などを瓶蓋上に記載する。

### 1.1.4 放射能測定(3.4、3.5.1 および解説3参照)

- (1) 使用機器の型式、名称、試料名などを記録する。
- (2) 適当な標準線源を用いて計数装置の動作が正常なことを確認する。
- (3) バックグランド試料を100分間測定する。
- (4) 試料を100分間測定する。
- (5) 外部標準線源を用いて試料の外部標準チャンネル比(ESCR)を求め、クエンチング補正曲線<sup>\*16</sup>から計数効率を求める。
- (6) 試料の計数率からバックグランド計数率を差し引き、正味の計数率および標準偏差を求める。

---

(\*14) 工業技術院電子技術総合研究所で検定された標準溶液が日本アイソトープ協会(〒113 東京都文京区本駒込2-28-45)を通じて頒布されている。

(\*15) 1mlのシリンジ(例えばテルモシリンジ)を利用する方法が簡便である。

(\*16) 解説II-8参照。

### 1.1.5 計算

#### 〔1〕 海水中の $^{60}\text{C}$ の濃度

1.1.4 で得た放射能の測定結果から次式に従って $^{60}\text{C}$ の濃度を計算する。

$$A' \pm \Delta' = \frac{\left[ \left( \frac{N_s}{T_s} - \frac{N_b}{T_b} \right) \pm \left( \frac{N_s}{T_s^2} + \frac{N_b}{T_b^2} \right)^{\frac{1}{2}} \right]}{60 \times \varepsilon} \times \frac{10^2}{W}$$

$A'$  : 海水中の $^{60}\text{C}$ 濃度 (Bq/ℓ)

$\Delta'$  : 同上誤差

$N_s$  : 試料の全計数值

$T_s$  : 試料の測定時間 (単位: 分)

$N_b$  : バックグラウンドの計数值

$T_b$  : バックグラウンドの測定時間 (単位: 分)

$\varepsilon$  :  $^{60}\text{C}$ の計数効率 (%)

$W$  : 分析供試量 (ℓ)

#### 〔2〕 減衰補正

$^{60}\text{C}$ の半減期は5.27年で比較的長い、試料採取から測定まで長時間経過している時には減衰の補正が必要である。

$$A \pm \Delta = \frac{A' \pm \Delta'}{\exp(-3.6 \cdot 10^{-4} \cdot t)}$$

$A$  : 試料採取日に補正した $^{60}\text{C}$ 濃度 (Bq/ℓ)

$\Delta$  : 同上誤差

$t$  : 試料採取時から測定開始時までの時間 (単位: 日)

## 1.2 海産生物

灰試料から $^{60}\text{Co}$ を酸抽出し、次いで陰イオン交換およびアセトンを用いる陽イオン交換でコバルトを分離したのち、乳化シンチレータを加え、液体シンチレーション測定装置により定量する。この方法により灰20gを使用した場合、100分間測定でおよそ3mBq/g灰の $^{60}\text{Co}$ が分析できる。分析操作に要する時間は測定試料調製まで約30時間である。

### 1.2.1 試薬

#### (1) 担体溶液

コバルト担体溶液[10mg $\text{Co}^{2+}$ /mlHCl(1+119)]

#### (2) 酸

塩酸(1+119)、塩酸(1+11)、塩酸(1+3)、塩酸(1+2)、塩酸(1+1)、  
塩酸(2+1)

#### (3) 有機試薬

アセトフェノン

乳化シンチレータ<sup>\*17</sup>

#### (4) 混合溶液

塩酸-アセトン混液<sup>\*18</sup>

A [塩酸(1+3)20mlとアセトン80mlの割合の混合液]

B [塩酸(1+1)10mlとアセトン90mlの割合の混合液]

#### (5) 陰イオン交換樹脂(カラムA)<sup>\*19</sup>

---

(\*17) 市販の乳化シンチレータにはInsta-gel, Aquasol-2 などがある。3.2参照。

(\*18) アセトンは揮発性であるので、使用の都度調製することが望ましい。混合液は密栓できる褐色ビンに入れて蒸発による濃度変化、紫外線による組成変化を少なくする。アセトンの濃度が低下するとコバルトの吸着帯が広がったり、あるいは溶離の際にコバルトが樹脂に残留する原因となる。

(\*19) Dowex® 1×8、Amberlite® CG-400、Diaion® SA#100のような強塩基性陰イオン交換樹脂100～200メッシュを用いる。コンディショニング(P.10参照)した陰イオン交換樹脂をイオン交換カラム(内径3cm、高さ30cm、下方コック付ガラスフィルター封じ込みガラス管)に樹脂柱の高さが20cmになるようにつめる。塩酸(2+1)200mlを毎分2mlの流速でカラムに通し飽和させる。

(6)陽イオン交換樹脂 (カラムB) <sup>\*20</sup>

1.2.2 分析操作

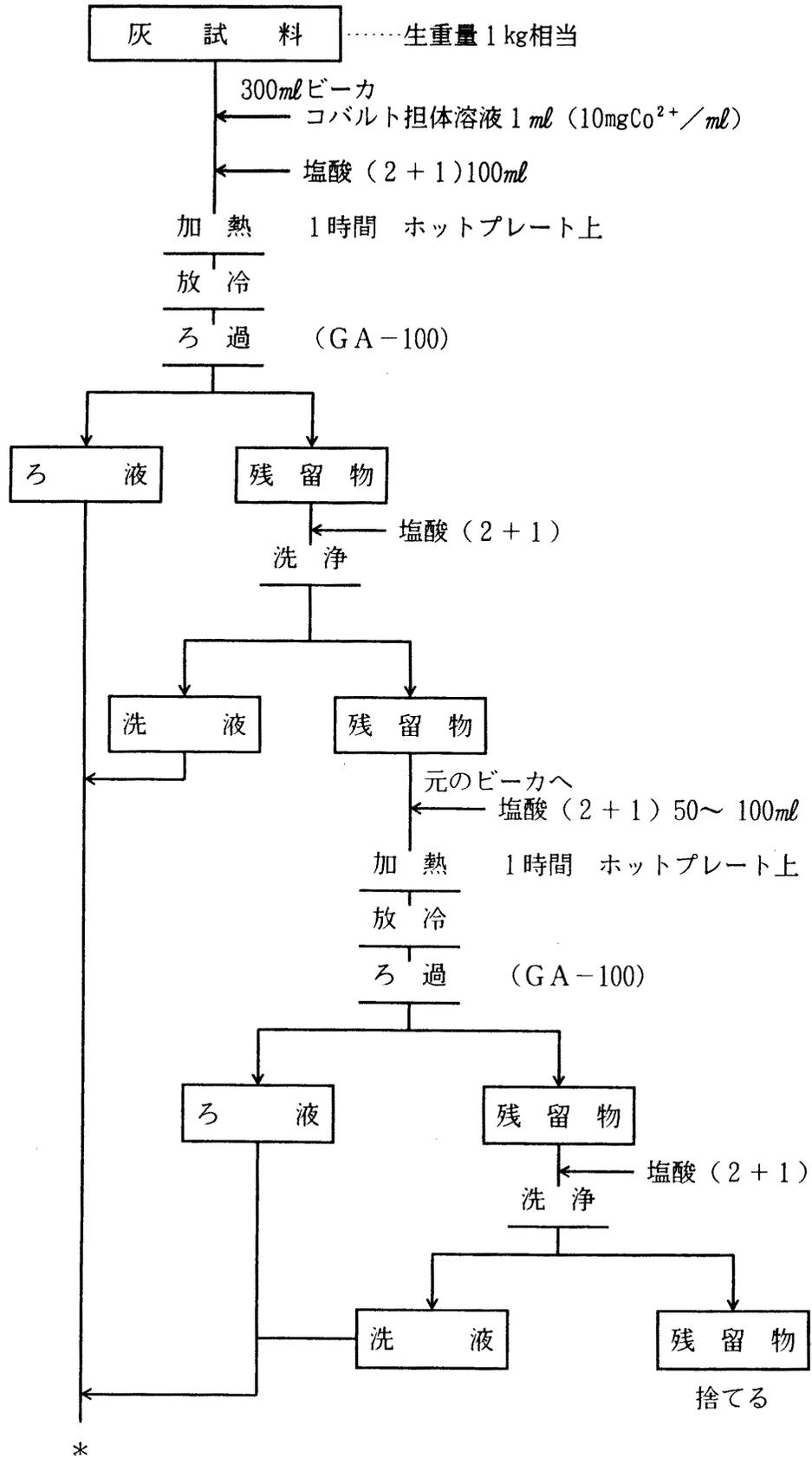
- (1) 灰試料 20 g <sup>\*21</sup> を 300 ml ビーカに正確にはかりとり、コバルト担体溶液 1 ml <sup>\*22</sup> と塩酸 (2+1) 100 ml を加えて時計皿で覆い、ホットプレート上で時々攪はんしながら1時間加熱する。 <sup>\*23</sup>
- (2) 冷却後、ガラス繊維ろ紙 (GA-100) を敷いたブフナー漏斗を用いて吸引ろ過し、残留物は少量の塩酸 (2+1) で洗浄する。
- (3) 残留物 <sup>\*24</sup> はろ紙とともに元のビーカにもどし、再度塩酸 (2+1) 50~100 ml を加えてホットプレート上で1時間加熱する。 <sup>\*23</sup> 冷却後ガラス繊維ろ紙 (GA-100) を敷いたブフナー漏斗を用いて吸引ろ過し、少量の塩酸 (2+1) で洗浄する。ろ液・洗浄液は(2)の溶液に合わせ、さらに塩酸 (2+1) 60 ml <sup>\*25</sup> を加える。
- (4) 溶液はあらかじめ準備した陰イオン交換樹脂カラムAに毎分2 mlの流速で流してコバルトを樹脂に吸着させる。流出液は捨てる。
- (5) 塩酸 (2+1) 150 ml、次いで塩酸 (1+1) 60 ml <sup>\*26</sup> を流して洗浄する。

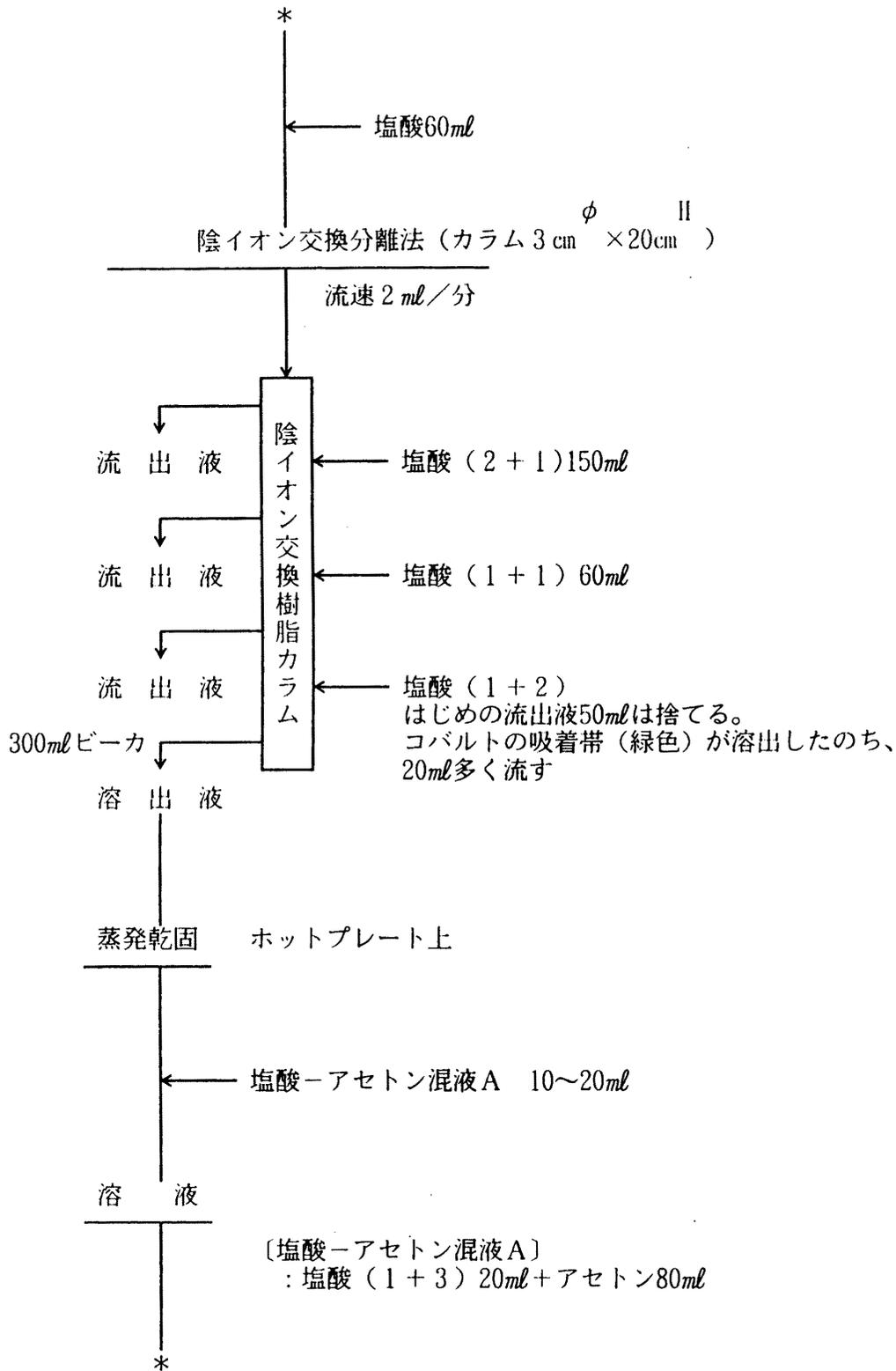
- 
- (\*20) Dowex® 50W-X8、Ameberlite® CG-120、Diaion® SK-1のような強酸性陽イオン交換樹脂100~200メッシュなどを用いる。コンディショニング (P.10参照) した陽イオン交換カラム (内径1cm、高さ20cm、下方コック付きガラスフィルター封じ込みガラス管) に樹脂柱の高さが15cmになるようにつめる。塩酸-アセトン混液A20mlを通して生じた気泡はガラス棒でかき混ぜて除き、さらに10mlを通す。
- (\*21) およそ生重量1kgに相当する灰を分析に供する。
- (\*22) 全操作を通してのコバルトの回収率は95%以上なので、特別の場合を除いては回収率の補正は必要ない。解説II-5参照。
- (\*23) 塩酸の刺激臭が著しいので換気には十分に注意する。
- (\*24) 残留物に炭素分を多く含む黒色の場合は (コバルトは炭素に吸着されやすい) ろ紙ごと白金皿に入れて硝酸2~3滴を加え、電気炉 (450~500℃) で灰化する。残留物が少ない時には再抽出を省略してよい。
- (\*25) 抽出に用いた塩酸 (2+1) はコバルトを陰イオン交換樹脂に安定に吸着させるための最低濃度であり、抽出の際に消費された塩酸を補充して溶液の塩酸濃度を8~10Mにするためである。この際に塩が析出したならば、これはほとんどNaCl、KCl、CaHPO<sub>4</sub>などと考えられるので、しばらく放置して塩を完全に析出させてからろ過して除去する。
- (\*26) コバルトの吸着帯 (緑色) を目安とする。もし緑色の吸着帯が樹脂柱の上部から2/3より下方に下がったら、洗浄はその時点で打ち切る。解説II-7参照。

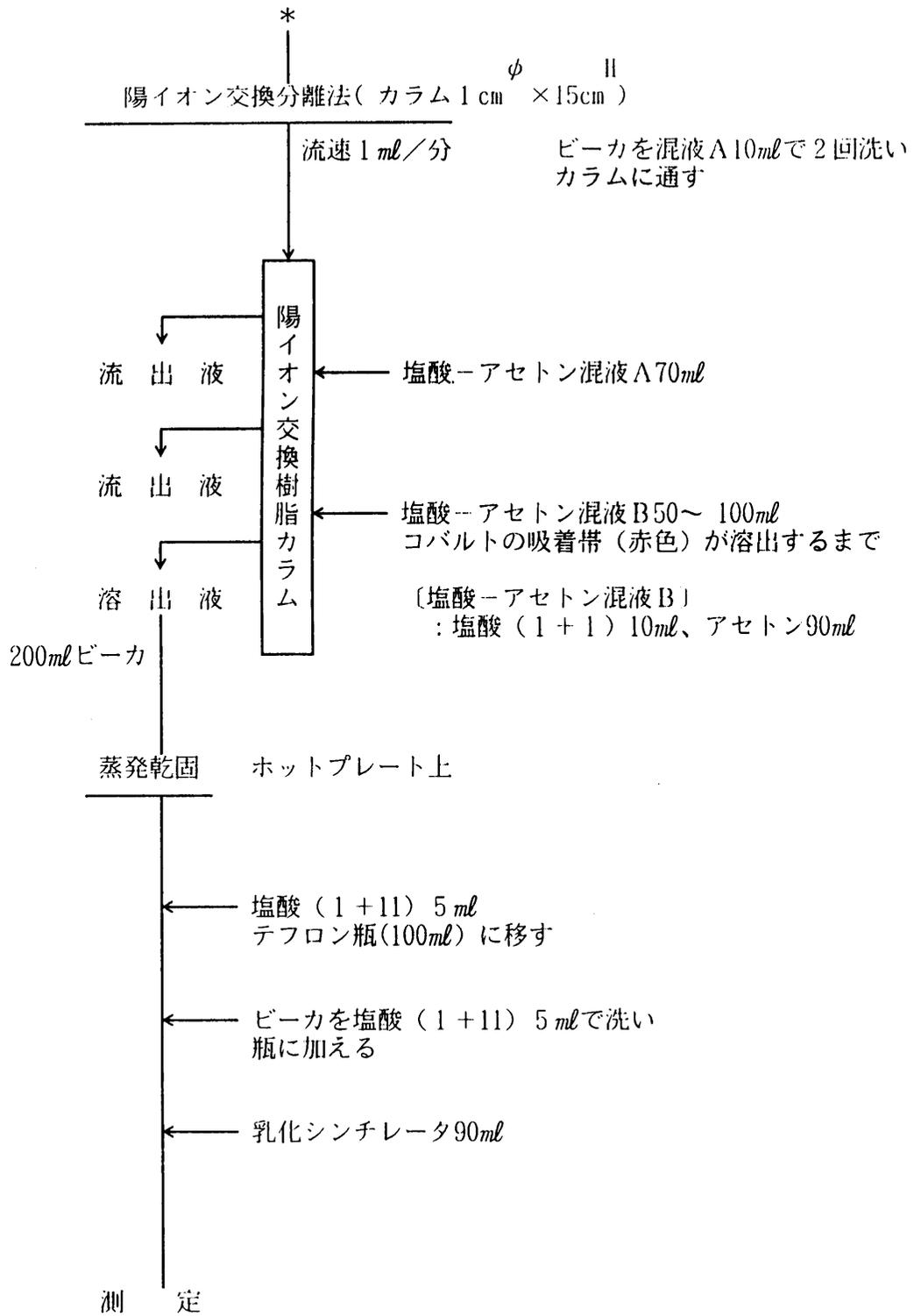
- (6) 塩酸（1 + 2）を流してコバルトを溶離する。はじめの流出液 50 ml は捨てる。<sup>\*27</sup> 溶出液は 300 ml ビーカに受ける。緑色の吸着帯が溶出しきったのち、さらに 20 ml を流す。<sup>\*28</sup>
- (7) 溶出液をホットプレート上で蒸発乾固する。<sup>\*29</sup>
- (8) 乾固物は少量（10～20ml）の塩酸－アセトン混液 A で溶かし、あらかじめ準備した陽イオン交換樹脂カラム B に毎分 1 ml の流速で流してコバルトを吸着させる。ビーカを混液 A で 10 ml ずつ 2 回洗い、この溶液もカラム B に流す。
- (9) さらに混液 A 70 ml を流して流出液は捨てる。<sup>\*30</sup>
- (10) 塩酸－アセトン混液 B を流し、コバルトを溶離する。<sup>\*31</sup> 溶出液は 200 ml ビーカに受ける。
- (11) 溶出液はホットプレート上で蒸発乾固する。<sup>\*32</sup>
- (12) 1.1.2 分析操作(11)～(13)に同じ。

- 
- (\*27) マンガン等を除去するため緑色の吸着帯が樹脂カラムより流出する限界まで洗浄するのが望ましい。
- (\*28) コバルトの溶離には塩酸（1 + 2）200 ～ 300ml を必要とする。この時、鉄を多量に含む試料では、コバルトの溶出フラクション中に鉄が混入してくるが、後の陽イオン樹脂カラム分離操作によって鉄を除去出来るので支障はない。
- (\*29) 高い温度で行うと乾固少し手前で析出物が飛びはねるおそれがあるので、濃縮してきたらなるべく低温で乾固する。
- (\*30) 銅が多く含まれる試料では流出液に銅の青色が見られるが、コバルトは樹脂に吸着しているので問題はない。コバルトは赤色の吸着帯となっている。
- (\*31) コバルトの溶離には塩酸－アセトン混液 B 50～100 ml を必要とする。場合によってはコバルトの溶離が遅いことがある。これはアセトンの濃度の低下、脱離交換速度が遅いことなどが考えられる。この時には下部コックを一旦閉めて（10分程度）その後流出を再開するなどコバルトが完全に溶出するまで混液 B を流す。
- (\*32) アセトンを多量に蒸発させるので引火しないようになるべく低温で蒸発させるとともに、換気には十分に注意する。

放射性コバルトの分析 (海産生物)







1.2.3 標準線源の作製（3.3 参照）

1.1.3 に同じ。

1.2.4 放射能測定（3.4、3.5.1 および解説3 参照）

1.1.4 に同じ。

1.2.5 計算

〔1〕海産生物の $^{60}\text{Co}$ の濃度

1.2.4 で得た放射能の測定結果から次式に従って $^{60}\text{Co}$ の濃度を計算する。

$$A' \pm \Delta' = \frac{\left[ \left( \frac{N_s}{T_s} - \frac{N_b}{T_b} \right) \pm \left( \frac{N_s}{T_s^2} + \frac{N_b}{T_b^2} \right)^{1/2} \right]}{60 \times \epsilon} \times \frac{K \times 10^3}{W}$$

$A'$  : 海産生物中の $^{60}\text{Co}$ 濃度 (Bq/kg生)

$\Delta'$  : 同上誤差

$N_s$  : 試料の全計数值

$T_s$  : 試料の測定時間 (単位: 分)

$N_b$  : バックグラウンドの計数值

$T_b$  : バックグラウンドの測定時間 (単位: 分)

$\epsilon$  :  $^{60}\text{Co}$ の計数効率(%)

$W$  : 分析供試量 (灰試料) (g)

$K$  : 試料の灰分(%)

〔2〕減衰補正

1.1.5 〔2〕に同じ。

### 1.3 海底堆積物

海底堆積物中の有機物を電気炉で加熱分解したのち<sup>60</sup>C<sup>o</sup>を酸抽出し、次いで陰イオン交換およびアセトンを用いる陽イオン交換でコバルトを分離し、乳化シンチレータを加え液体シンチレーション測定装置により定量する。この方法により乾燥した海底堆積物100gを使用した場合、100分間測定でおよそ0.6Bq/kg乾土の<sup>60</sup>C<sup>o</sup>が分析できる。分析操作に要する時間は測定試料調製まで約35時間である。

#### 1.3.1 試薬

1.2.1 に同じ。

#### 1.3.2 分析操作

- (1) 乾燥細土約100gを磁製皿<sup>\*33</sup>に正確にはかりとり、650℃以下<sup>\*34</sup>で3～4時間加熱処理後1ℓビーカーに移す。
- (2) コバルト担体溶液1ml<sup>\*35</sup>と塩酸(2+1)200mlを少量ずつ攪はんしながら加えて時計皿で覆い、ホットプレート上で時々攪はんしながら1時間加熱する<sup>\*36</sup>。
- (3) 冷却後、ガラス繊維ろ紙(GA-100)<sup>\*37</sup>を敷いたブフナー漏斗を用いて吸引ろ過し、残留物を少量の塩酸(2+1)で洗浄しながらガラス繊維ろ紙上に移す。ろ液は保存する。
- (4) 少量の塩酸(2+1)でガラス繊維ろ紙上の残留物<sup>\*38</sup>をろ紙とともに1ℓのビーカーにもどす。ガラス棒でその残留物を細かく砕き、塩酸(2+1)150mlを加えてホットプレート上で1時間加熱する<sup>\*36</sup>。

---

(\*33) 加熱処理に使用する磁製皿は底の深いものを用いると下部の有機物が焼けずに残ってしまうので、なるべく底が浅く広い磁製皿を使用する。

(\*34) 700℃を超えると(2)の操作でコバルトの抽出量が低下するので、650℃以下で処理しなければならない。解説Ⅱ-9参照。

(\*35) 全操作を通してのコバルトの回収率は95%以上なので、特別な場合を除いて回収率の補正は必要ない。解説Ⅱ-5参照。

(\*36) 塩酸の刺激臭が著しいので換気には十分に注意する。

(\*37) 通常のろ紙を用いるとろ紙が破れたり、細かい粒子がもれるおそれがある。

(\*38) 残留物に多量の炭化物が認められる場合には再度加熱処理を行う。

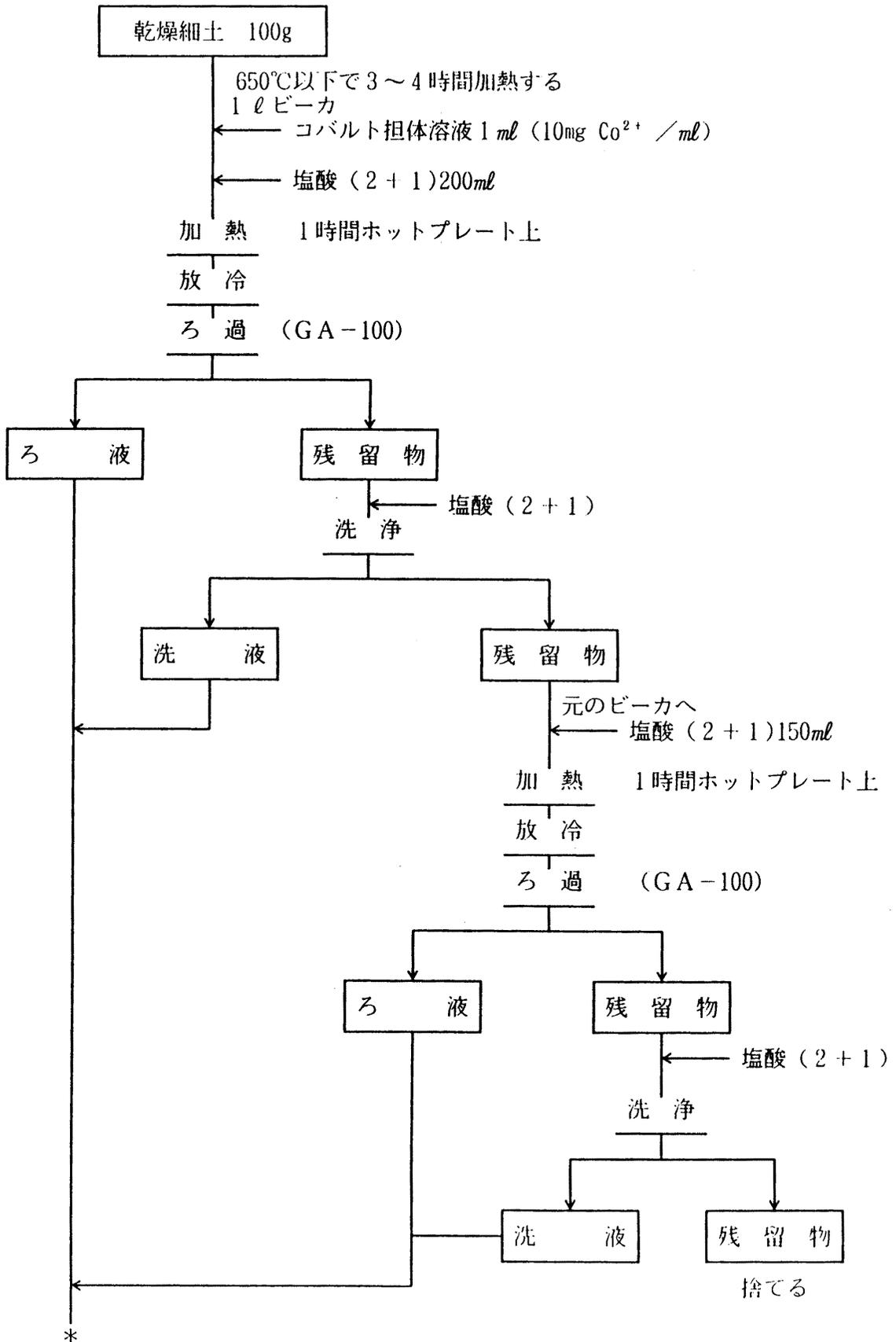
- (5) 冷却後、ガラス繊維ろ紙 (GA-100) を敷いたブフナー漏斗を用いて吸引ろ過し、残留物を少量の塩酸 (2 + 1) で洗浄しながらガラス繊維ろ紙上に移す。ろ液は(3)のろ紙と合わせ、さらに塩酸 (2 + 1) 60 ml<sup>\*39</sup>を加える。
- (6) 溶液はあらかじめ準備した陰イオン交換樹脂カラムAに毎分2 mlの流速で流してコバルトを樹脂に吸着させる。流出液は捨てる。
- (7) 塩酸 (2 + 1) 250 ml、次いで塩酸 (1 + 1) 60 ml<sup>\*10</sup>を流して洗浄する。
- (8) 1.2.2 分析操作(6)~(12)に同じ。

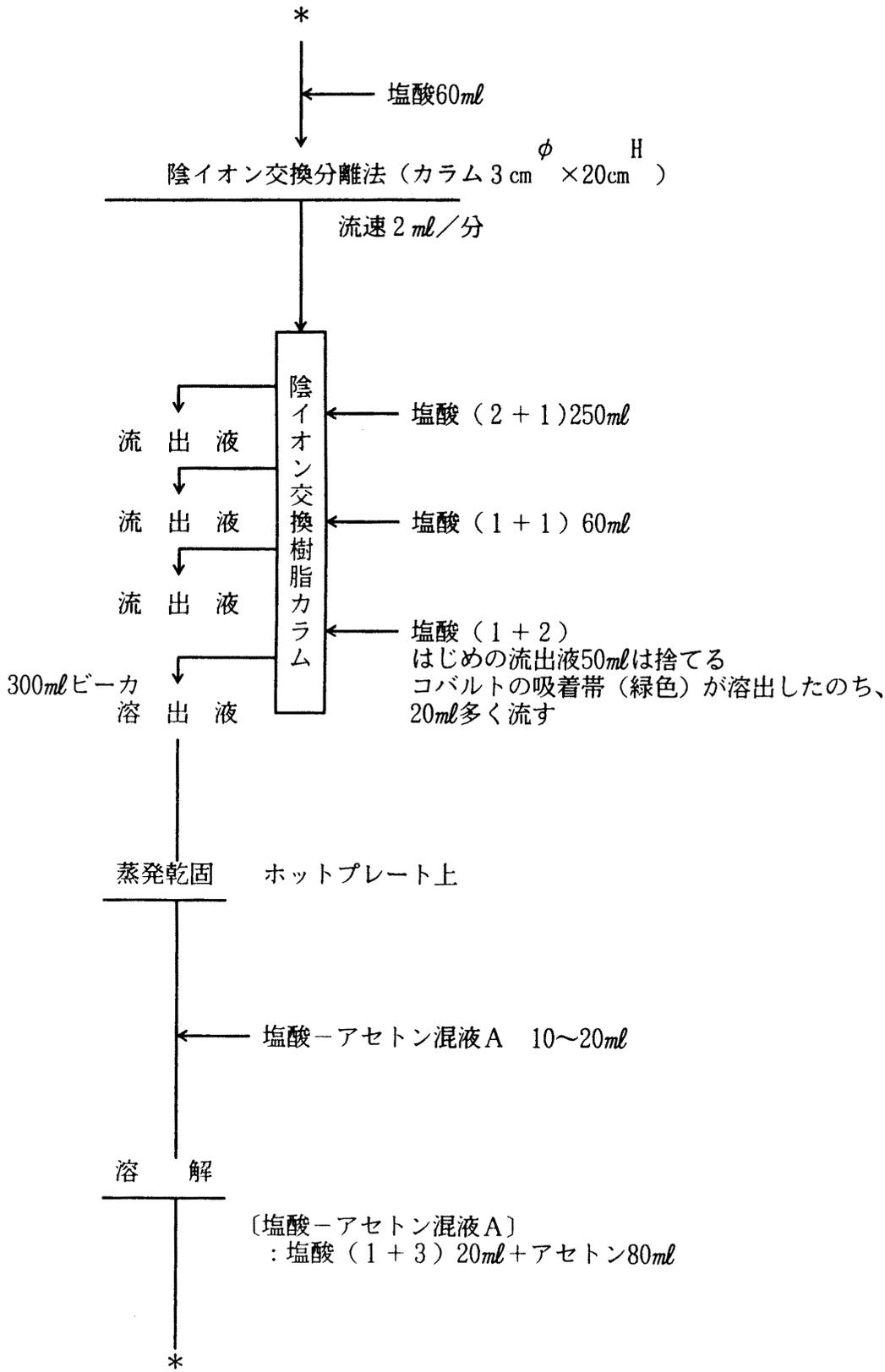
---

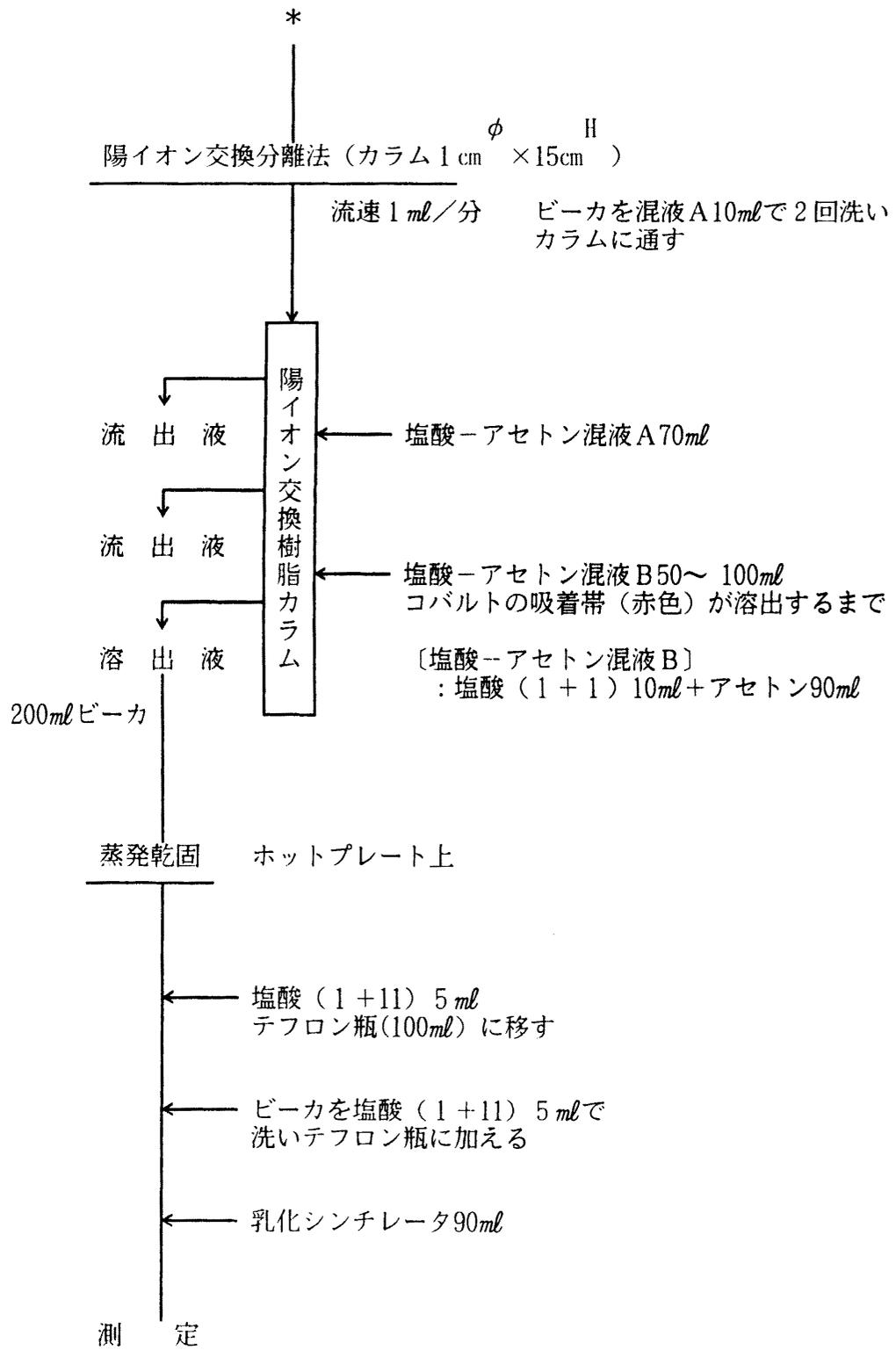
(\*39) 抽出に用いた塩酸 (2 + 1) はコバルトを陰イオン交換樹脂に安定に吸着させるための最低濃度であり、抽出の際に消費された塩酸を補充して溶液の塩酸濃度を8~10Mにするためである。この際に塩が析出したならば、これはほとんどNaCl、KCl、CaHPO<sub>4</sub>などと考えられるので、しばらく放置して塩を完全に析出させてからろ過して除去する。

(\*40) コバルトの吸着帯 (緑色) を目安とする。もし緑色の吸着帯が樹脂柱の上部から2/3より下方に下がったら、洗浄はその時点で打ち切る。解説II-7参照。

放射性コバルトの分析 (海底堆積物)







### 1.3.3 標準線源の作製 ( 3.3 参照)

1.1.3 に同じ。

### 1.3.4 放射能測定 (3.4、3.5.1 および解説3 参照)

1.1.4 に同じ。

### 1.3.5 計算

#### 〔1〕 海底堆積物中の $^{60}\text{Co}$ の濃度

1.3.4 で得た放射能の測定結果から次式に従って $^{60}\text{Co}$ の濃度を計算する。

$$A' \pm \Delta' = \frac{\left[ \left( \frac{N_s}{T_s} - \frac{N_b}{T_b} \right) \pm \left( \frac{N_s}{T_s^2} + \frac{N_b}{T_b^2} \right)^{1/2} \right]}{60 \times \epsilon} \times \frac{10^5}{W}$$

$A'$  : 海産生物中の $^{60}\text{Co}$ 濃度 (Bq/kg乾土)

$\Delta'$  : 同上誤差

$N_s$  : 試料の全計数值

$T_s$  : 試料の測定時間 (単位: 分)

$N_b$  : バックグラウンドの計数值

$T_b$  : バックグラウンドの測定時間 (単位: 分)

$\epsilon$  :  $^{60}\text{Co}$ の計数効率 (%)

$W$  : 分析供試量 (g)

#### 〔2〕 減衰補正

1.1.5 〔2〕に同じ。

## 第2章 放射性ヨウ素の分析

この章の分析法は、原乳<sup>\*1</sup>を対象とする。

本法は、陰イオン交換樹脂に吸着させた放射性ヨウ素を溶離したのち溶媒抽出を行い、その有機溶液を測定試料とする<sup>\*2</sup>。

従来のヨウ化パラジウムを測定試料とする方法に比べ、分析所要時間を短縮できる。分析目標値は、試料量4ℓ、測定時間を100分としたとき、およそ10mBq/ℓである。

### 2.1 原乳

原乳4ℓにヨウ素担体を加えて、陰イオン交換樹脂に、バッチ法によりヨウ素を吸着させる。次亜塩素酸ナトリウム溶液で樹脂からヨウ素を溶離後、TiO<sub>2</sub>-キシレン溶液で抽出する。有機層と、液体シンチレータ及び亜硫酸ナトリウムをテフロン瓶(100ml)へ入れ、液体シンチレーション測定装置により定量する。分析操作に要する時間は測定試料調製まで約8時間である。

#### 2.1.1 試薬

##### (1) 担体溶液

ヨウ素担体溶液 (10mg I<sup>-</sup>/ml)

##### (2) 酸

塩酸

##### (3) 塩類

亜硫酸ナトリウム溶液 Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> (12.6w/v%)

次亜塩素酸ナトリウム溶液 NaClO (有効塩素5~6%)

塩酸ヒドロキシルアミン

亜硝酸ナトリウム

---

(\*1) 市販乳にも適用できる。

(\*2) 本分析法による回収率と除染係数は解説II-10参照。

(4) 有機試薬

アセトフェノン

TiOA- キシレン溶液\*<sup>3</sup> (1v/v%)

乳化シンチレータ\*<sup>4</sup>

尿素溶液(1w/v%)

(5) 陰イオン交換樹脂\*<sup>5</sup>

2.1.2 分析操作

- (1) 原乳試料は採取直後に、4 lにつきヨウ素担体溶液 2 ml及び亜硫酸ナトリウム溶液 2～3 滴を加え\*<sup>6</sup>よくかき混ぜる。
- (2) 試料 4 lをビーカーにとり、スラリー状イオン交換樹脂 5 0 mlを加え、激しく 3 0 分間かき混ぜ、3 0 分間静置する。
- (3) 傾斜法によりイオン交換樹脂が流出しないように注意して、別のビーカーにできるだけ原乳を移し入れる。イオン交換樹脂は保存する。
- (4) 原乳に再びスラリー状イオン交換樹脂 5 0 mlを加え、(2)、(3)の操作を繰り返す\*<sup>6</sup> 原乳は捨てる。
- (5) 樹脂を別の 5 0 0 mlビーカーに水で洗い移し合わす。
- (6) 樹脂に熱水(6 0～7 0℃) 3 0 0 mlを加えて、数秒間かき混ぜて静置し、樹脂が沈降後、傾斜法により洗液を捨てる。この操作を洗液が透明になるまで繰り返す。
- (7) 洗液の終わった樹脂に次亜塩素酸ナトリウム溶液 1 0 0 mlを加え、5 分間かき混ぜる。
- (8) グラスフィルター 3 Gでろ過する。
- (9) ろ液は保存し、イオン交換樹脂は元のビーカーにもどし、残った樹脂は少量の水で洗い入れ、次亜塩素酸ナトリウム溶液 1 0 0 mlを加え、(7)、(8)の操作を繰り返す。ろ液は前のろ液に合わす。イオン交換樹脂は捨てる。

---

(\* 3) 解説Ⅱ-1 1 参照。

(\* 4) 市販の乳化シンチレータ Insta-gel, Aquasol-2 などがある。3.2 参照。

(\* 5) Dowex ® 1×8、Amberlite ® C G-400、Diaion® SA# のような塩基性陰イオン交換樹脂 50～100 メッシュを用いる。コンディショニングについては(P. 10)参照。

(\* 6) 防腐剤としてのホルマリンの添加は、回収率を低下させる恐れがあるので、できる限り添加しない方がよい。解説Ⅱ-1 1 参照。

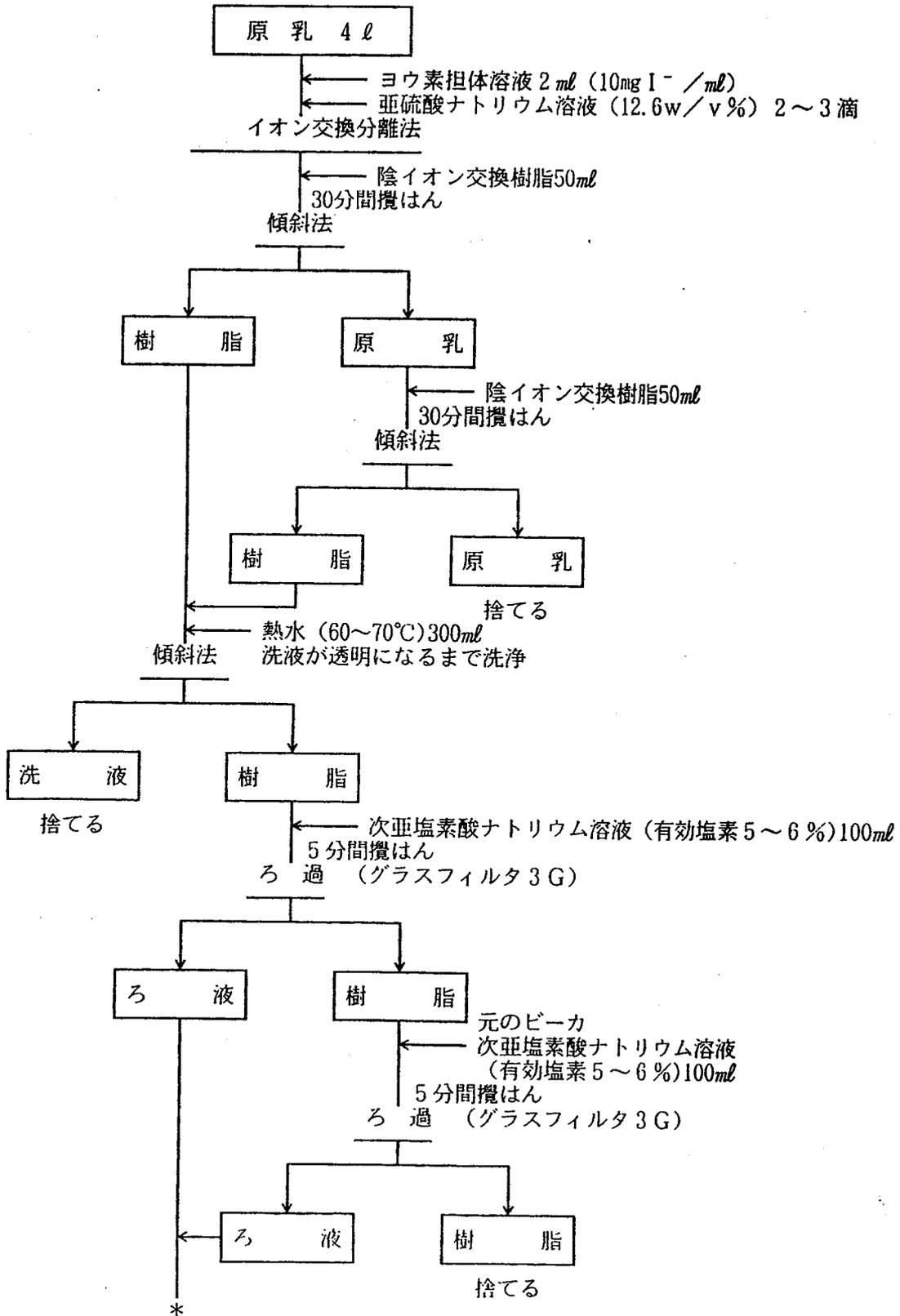
- (10) 合わせたろ液をかき混ぜながら、塩酸を少量ずつ発泡が終ること<sup>\*7</sup>に加え、pHを約1にする。
- (11) ホットプレート上で加熱<sup>\*8</sup>し、かき混ぜて、発生する気体を十分に追い出した後放冷する。
- (12) 分液漏斗に溶液を移す。ビーカーは少量の水で洗う。TiOA-キシレン溶液を正確に40ml<sup>\*8</sup>、次に塩酸ヒドロキシルアミン2gを加え、2分間振り混ぜ、静置する。水層は別の分液漏斗に移し入れる。
- (13) 再び水層にTiOA-キシレン溶液を正確に20ml、次に塩酸ヒドロキシルアミン1gを加え振り混ぜて抽出を繰り返し、有機層は先の有機層に合わせる。
- (14) 有機層に、尿素溶液50mlを加え、2分間振り混ぜ、洗浄する。
- (15) 水層を捨て、有機層55mlを正確にとりテフロン瓶(100ml)に移し、乳化シンチレータ45ml、亜硫酸ナトリウム溶液0.5mlを加えて、よく振り混ぜる。

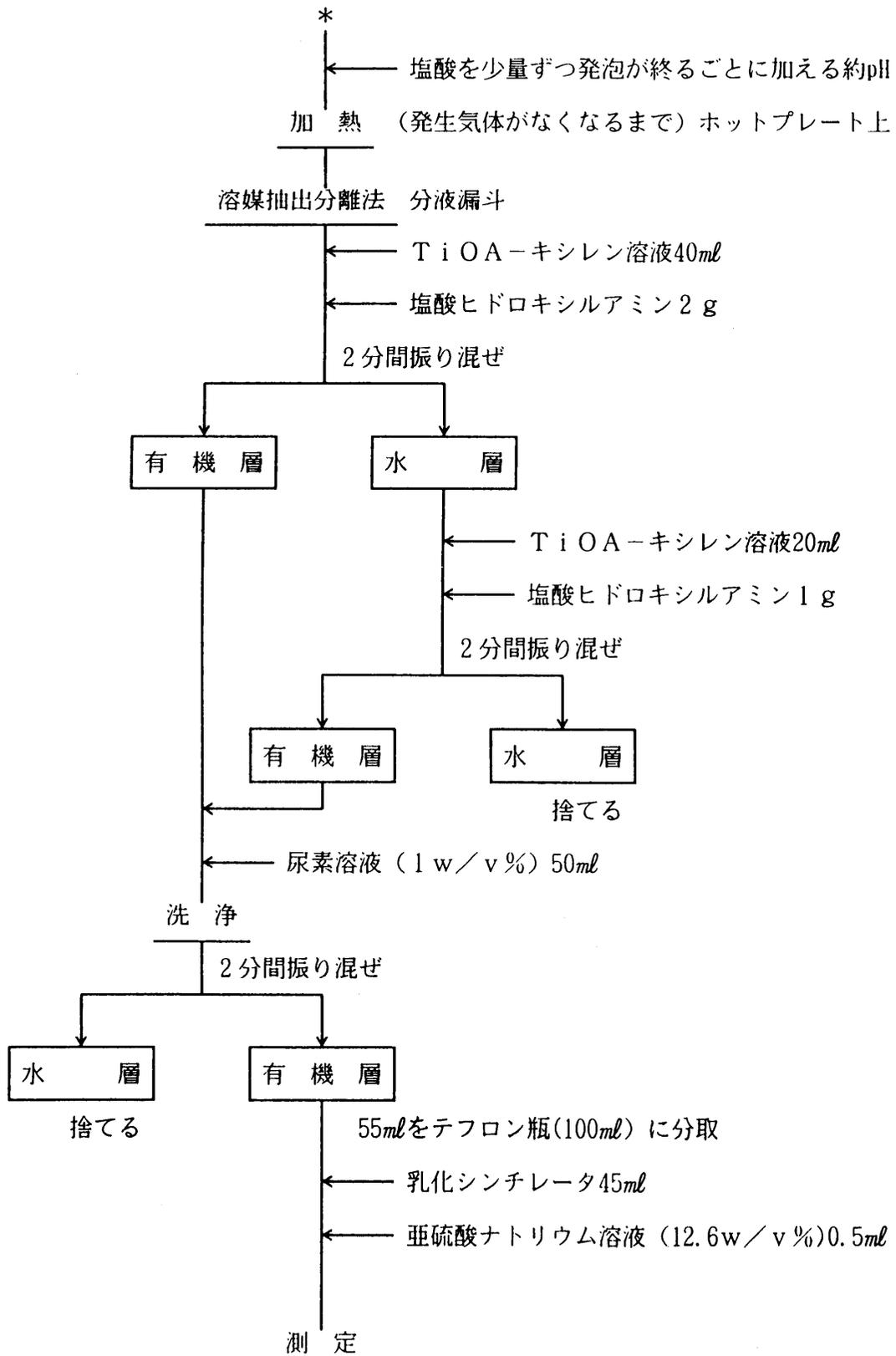
---

(\*7) 塩酸の添加は少量ずつ加え、発泡による損失のないよう注意深くかき混ぜる。

(\*8) 解説II-11参照。

放射性ヨウ素の分析 (原乳)





### 2.1.3 標準線源の作製 (3.3参照)

- (1) 100mlビーカーを5～7個用意し、各々に<sup>131</sup>I標準溶液のおよそ10Bqを正確に分取し、亜硫酸ナトリウム溶液1ml加える。
- (2) ビーカーに水を加えて、溶液体積を50mlとする。
- (3) 水溶液を分液漏斗に移し、TiOA-キシレン溶液40ml、亜硝酸ナトリウム0.5g、塩酸1mlを加え、2分間振り混ぜて静置する。水層は別の分液漏斗に移し入れる。
- (4) 再び水層に、TiOA-キシレン溶液20mlを加えて抽出し、有機層は先の有機層に合わせる。
- (5) 有機層に、尿素溶液50mlを加え、2分間振り混ぜて洗浄する。
- (6) 水層を捨て、有機層55mlを正確にとり、テフロン瓶(100ml)に移し、乳化シンチレータ45mlを加える。
- (6) 亜硫酸ナトリウム0.5mlを加え、さらにクエンチャとしてアセトフェノンを0～1.5v/v%になるように加えてよく振り混ぜる。

### 2.1.4 放射能測定(3.4, 3.5.1 及び解説3参照)

- (1) 使用機器の型式、名称、試料名などを記録する。
- (2) 適当な標準線源を用いて計数装置の動作が正常なことを確認する。
- (3) バックグラウンド用試料を100分間測定する。
- (4) 試料を100分間測定する。
- (5) 外部標準線源を用いて試料の外部標準チャンネル比(ESCR)を求め、クエンチング補正曲線<sup>\*</sup>から計数効率を求める。
- (6) 試料の計数率から、バックグラウンド計数率を差し引き、正味の計数率及び標準偏差を求める。

---

(\*9) 解説II-12参照。

## 2.1.5 計算

### (1) 原乳中の<sup>131</sup>Iの濃度

2.1.4 で得た放射能の測定結果から次式に従って<sup>131</sup>Iの濃度を計算する。

$$A' \pm \Delta' = \frac{\left[ \left( \frac{N_s}{T_s} - \frac{N_b}{T_b} \right) \pm \left( \frac{N_s}{T_s^2} + \frac{N_b}{T_b^2} \right)^{1/2} \right]}{60 \times \varepsilon} \times \frac{10^2}{W} \times \frac{60^{*10}}{55}$$

A' : 原乳中の<sup>131</sup>I濃度 (Bq / ℓ)

Δ' : 同上誤差

Ns : 試料の全計数值

Ts : 試料の測定時間(単位:分)

Nb : バックグラウンドの計数值

Tb : バックグラウンドの測定時間(単位:分)

ε : <sup>131</sup>Iの計数効率(%)

W : 分析供試量(ℓ)

### (2) 減衰補正

<sup>131</sup>Iの半減期は8.04日と比較的短いので試料採取から測定までの減衰の補正が必要である。

$$A \pm \Delta = \frac{A' \pm \Delta'}{\exp(-0.0862 \cdot t)}$$

A : 試料採取日に補正した<sup>131</sup>I濃度 (Bq / ℓ)

Δ : 同上誤差

t : 試料採取時から測定開始時までの時間(単位:日)

---

(\*10) 測定に用いた溶媒(TiO<sub>2</sub>-キシレン溶液)量(55ml)と抽出に用いた量との比(60ml)。

## 第3章 液体シンチレータによる $\beta$ 線測定法

### 3.1 測定機器及び測定法の概要

#### 〔液体シンチレーション測定装置〕

現在、市販されている液体シンチレーション測定装置(LSC)には多くの種類があり、ほとんどのものは $^3\text{H}$ と $^{14}\text{C}$ など特定の核種に重点を置いている。基本的な性能についてはあまり変りはなく、機能的には一層自動化の傾向にあつてクエンチング自動補正機構など便利にはなっているが、反面、応用性・拡張性に欠けるものもある。しかし、多くの機種においては手動による機器の調整および計測が可能であり、本分析法の対象とする核種<sup>\*1</sup>( $\alpha$ 核種およびエネルギーが数100keV以上の $\beta$ 核種)に十分適用できる。

#### 〔測定法の概要〕

液体シンチレーション測定法においては、クエンチング効果の補正が最も重要な問題である。クエンチング効果の補正を含めて、効率を求めるためのいくつかの方法<sup>\*2</sup>があるが、多試料の測定、微弱な放射能、操作の自動化などの点を考慮すると、環境試料の分析には外部標準チャンネル比法(ESCR法)が最も適した方法であり、市販の多くの機種はこの方法を採用している。

外部標準チャンネル比法については、II.3.4、II.3.5.1、III.2.4、及びII.3.5を参照されたい。

---

(\*1) 核データについては表1-2(P.4)参照。

(\*2) II.3.5 参照。

### 3.2 液体シンチレータ

液体シンチレータは有機溶媒と蛍光体を主成分とし、それらを混合したカクテルには目的に応じて多くの種類がある。分析試料は最終的には水溶液ないし溶媒抽出による有機溶液をシンチレータに混合して測定されるので、現在最も一般に用いられている液体シンチレータを用いることとする。すなわち、水溶液は市販の乳化シンチレータに混合するか、あるいは、抽出用シンチレータによって対象核種を抽出した有機溶液を測定試料とする。また、有機溶液の試料はキシレン（またはトルエン）ベースシンチレータに混合して測定試料とする。以下にそれらシンチレータについて述べる。

#### 1 キシレン（またはトルエン）ベースシンチレータ

これは最も一般的に用いられる液体シンチレータで、他のカクテルの基本となるものである。溶媒としてはキシレン（凝固点 $-20^{\circ}\text{C}$ 、 $\lambda_{\text{mp}}^{*3}=284\text{nm}$ ）またはトルエン（凝固点 $-95^{\circ}\text{C}$ 、 $\lambda_{\text{mp}}=284\text{nm}$ ）を、蛍光体としては最も一般的に $\text{PPO}^{*4}$ （ $\lambda_{\text{mp}}=336\text{nm}$ ）を、そして波長シフタとして $\text{DMPOPOP}^{*5}$ （ $\lambda_{\text{mp}}=419\text{nm}$ ）を用いる。

その基本となる組成は次のものである。

キシレン（またはトルエン）1ℓ + PPO 5 g + DMPOPOP 0.3 g

なお、DMPOPOPは、用いる光電子増倍管の感度レスポンスがPPOの発光スペクトルを充分カバーしていれば用いる必要はないが、色クエンチングが生じる可能性のあるときは加えた方がよい。

---

(\* 3) 発光量が最大値を示す波長。

(\* 4) PPO : 2,5 -diphenyloxazole

(\* 5) DMPOPOP : 1,4-bis-2-(4-methyl 5-phenyloxazolyl) benzene .

PPOの量は、5 g/lぐらいで最大の発光量を示すが、3～8 g/lの範囲では発光量にあまり変化はない。

混合する有機溶液試料の量を考慮してほぼ上記の濃度になるように調製する。また、多めに入れる方が試料によっては、クエンチング効果を弱めることもある。

## 2 乳化シンチレータ

液体シンチレータに界面活性剤を加えたもので水溶液をシンチレータに均質に分散することができる。乳化シンチレータは水溶液との混合比によって試料の状態が変わるので注意する必要がある。市販の乳化シンチレータのほとんどは、温度により多少異なるが、乳化シンチレータに対する水の混合率がほぼ10%未満では透明、ほぼ10～20%の間で二相に分離、ほぼ20～50%ではゲル状コロイドとなる。一般的にはゲル状で用いることが多い。

市販の乳化シンチレータとしては次のようなものがあり、特性については大きく異なるところはない。

Insta-gel	Packard 社 (アムコ(株)取扱)
Aquasol-2	New England Nuclear 社 (第一化学薬品(株)取扱)
ACS II	Amersham 社 (アマシャム・ジャパン(株)取扱)
Scintisol EX-II	同仁化学研究所

## 3 抽出用シンチレータ

キシレン (またはトルエン) ベースシンチレータに抽出試薬を混ぜたもので、その混合比は抽出試薬のクエンチング効果を考慮し、蛍光体の量は1に述べた濃度になるように調製する。抽出試薬はできるだけクエンチング効果の小さいものが望ましく、次のようなものが用いられる。

HDEHP	bis-(2-ethylhexyl) phosphoric acid
TiOA	triisooctylamine
TBP	tributyl phosphate

### 3.3 標準線源とバックグラウンド用試料

本分析法の液体シンチレーション測定に用いられる標準線源は、クエンチング補正曲線を作成するためのクエンチング標準線源5～7個で1セットとなる。対象核種に応じ、化学分析の最終段階に得られる溶液に準じて調製する。それらに要求される条件としては、以下のとおりである。

- 1) 測定の対象となる核種と同一の単一核種を含むこと
- 2) 放射能はその不確かさが5%以下の精度であること
- 3) 1セットの全ての線源は同一放射能である方が使い良い
- 4) クエンチャの種類および量が適切で、想定される測定試料のクエンチング範囲をカバーすること
- 5) 測定試料と同一の測定瓶中にはほぼ同一量のシンチレータを含むこと。

### 3.3.1 クエンチング標準線源

- 1) およそ10 Bq/mlの放射能標準水溶液<sup>\*6</sup>で約10 ml、あるいは同水溶液を抽出試薬（HDEHP、TiOAなど）で100%抽出したものを用意する。
- 2) この一定量（1 ml程度）を正確に分取して、5～7個の瓶に入れる。
- 3) シンチレータ（水溶液線源に乳化シンチレータ、有機溶媒線源にはキシレンあるいはトルエンベースシンチレータ<sup>\*7</sup>）の一定量（9.9 mlまたは1.9 ml<sup>\*8</sup>）を上記の各瓶に加える。
- 4) クエンチャとしてアセトフェノン<sup>\*9</sup>を0.05、0.1、0.15（容積%）・・・のように添加する。  
なお、その量は正確である必要はない。
- 5) 密栓した後、可能ならばさらに接着剤などでシールする。調製（または検定）年月日、放射能などを瓶蓋上部に記載する。
- 6) バックグラウンド用試料は上記の3）、4）、5）に準じて調製する。

---

(\*6) 放射能が不確かな場合は、解説Ⅱ-13に述べる効率トレーサー法などによつて放射能を決定することができる。

(\*7) 窒素ガス等で充分バブリングして脱酸素したものをを用いるほうが望ましい。

(\*8) 測定瓶の容積が100mlか20mlの場合。

(\*9) クエンチャの種類としては他のもので良く、化学分析の最終段階において得られる溶液（及びその添加量を変える）を用いてもよい。

### 3.4 $\beta$ 線測定条件の設定

環境試料のような微弱放射能を測定する場合には、計数誤差をできるだけ小さくするような測定条件の設定が望ましい。<sup>\*10</sup>その設定条件の目安として、FOMがしばしば用いられる。計数効率をE(%)、バックグラウンド計数率をB(cpm)とすると、 $FOM = E^2 / B$  (または $E / \sqrt{B}$ )を最大にする測定条件を用いる。そのため、試料分析用チャンネル(Aチャンネルとする)の増幅器ゲイン、下限および上限ディスクリミネータを以下に示す手順で設定する。

- 1) 3.3.1で作製したクエンチング標準線源のうち、クエンチャ量0の標準線源、通常の分析操作より得られる試料とほぼ同程度のクエンチングを示す標準線源およびバックグラウンド用試料の計3試料をサンプルチェンジャに計数開始約1時間前(室温型測定器の場合はその必要はない)にセットする。

クエンチャ量0の標準線源を検出部に入れる。

- 2) 液体シンチレーション測定装置のAチャンネルを次のように設定する。

下限ディスクリミネータ(LLD)を800、上限ディスクリミネータ(ULD)を900に設定する。(ただしフルスケールを1000とした場合)

- 3) Aチャンネルの増幅器ゲインを最小値から順次増加し、そのつど計数率 $n_A$ を求める。

$n_A$ が放射能のおよそ1%ぐらいになるゲインを見出しそこに固定する。クエンチャ量0の標準線源を取り出し、もう一方のクエンチング標準線源を検出部に入れる。

- 4) LLDを50に固定し、ULDを900、850、800……のように順次下げて、そのつど標準線源の計数効率(E)を求める。

- 5) バックグラウンド用試料を検出部に入れる。

4)と同様にLLDを50としULDを900、850、800……のように順次下げて、そのつど計数率(B)を求める。

- 6) リニアグラフ用紙の横軸をULDの目盛り、縦軸を $E^2 / B$ 値としてプロットする。

- 7) 同図より $E^2 / B$ 値の最大値を与えるULDに設定し直す。

---

(\*10) 分析目標値の算出については解説4参照。

### 3.5 クエンチング補正法

測定試料のクエンチング補正法には次のような方法がある。

- 1 内部標準法：測定試料を一度測定した後、標準放射能溶液をそれに加えて再び測定する方法である。これは微弱放射能測定にも適しているが、手間がかかり試料の再測定ができない等の欠点があり、現在ではあまり用いられない。
- 2 試料チャンネル比法：異なる波高領域に設定した2チャンネルにおける計数値の比よりクエンチングを補正する方法であるが、微弱放射能測定には計数誤差の点で不利である。
- 3 外部標準計数法：試料の外部より $\gamma$ 線を照射して1チャンネルにおける計数率よりクエンチングを補正する方法であるが、試料の量に依存し、外部 $\gamma$ 線源による照射位置の再現性の影響を受ける欠点がある。
- 4 外部標準チャンネル比法（E S C R法）：2）と3）の長所を併せたもので、2チャンネルにおける外部 $\gamma$ 線源による計数値の比によってクエンチング補正を行うものである。

以下にE S C R法の概要を述べる。

試料にクエンチング効果が生じると、 $\beta$ 線スペクトルは低波高側へシフトしてシングルチャンネルAにおける計数率（すなわち計数効率）が減少する（図1）。そして同試料に外部より $\gamma$ 線を照射して得られるコンプトン電子のスペクトルも同様に低波高側へシフトするため、2個のシングルチャンネル（B、C）の計数値は異なった値を示す。すなわちCチャンネルの計数値 $n_c$ とBチャンネルの計数値 $n_b$ の比 $n_c/n_b$ はクエンチング効果によって変る効率の情報をもつことになる。この方法において、チャンネルA、B、Cの選び方はかなり任意であるが、次の点を考慮して決めねばならない。

1) Aチャンネルは、ほぼβ線スペクトルのほとんどを含めるようにするのが一般的であるが、微弱放射能測定の場合は、同チャンネルに含まれるバックグラウンド計数率を考慮する必要がある。

計数効率をE(%)、

バックグラウンド

計数率をB(cpm)

とすると、 $E^2/B$

ができるだけ大き

くなるようにチャ

ネルAを決めるこ

とが望ましい

(3.4 参照)。

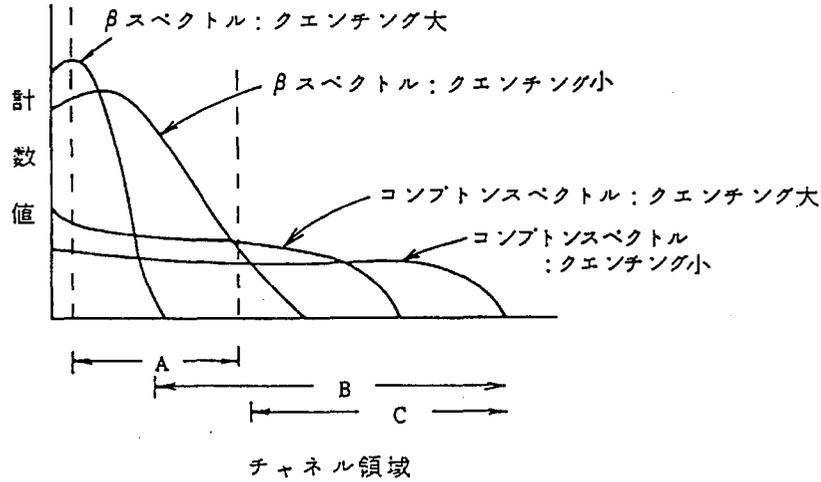


図 1

2) BとCチャンネルは、予想されるクエンチング範囲をカバーできるように、しかも後述するクエンチング補正曲線ができるだけ理想的な形になるように、数回の試行錯誤によって決める方がよい。

クエンチング標準線源セットを用いて、II. 3.5.1に述べる手順によってクエンチング補正曲線

(図2)を作成する。ESCR方を用いる場合の注意事項としては、

- 1) 化学クエンチングと色クエンチングはやや異なる曲線を示すので注意しなければならない。
- 2) チャンネル比の液量依存性は少ないとはいえ、多重散乱などは液量に依存し、コンプトンスペクトルが変わることがあるので、液量はできるだけ一定にする方がよい。

3) クエンチング補正曲線は機器の安定性に影響

されるので、定期的に測定し直すか、あるいは、

試料の測定に先だって標準線源を測定して、同

補正曲線が正しいことを確認しておく。もし、

曲線から離れた値が得られたときは、増幅器の

微調整ゲインを変えて、効率が曲線に一致する

ようにする。

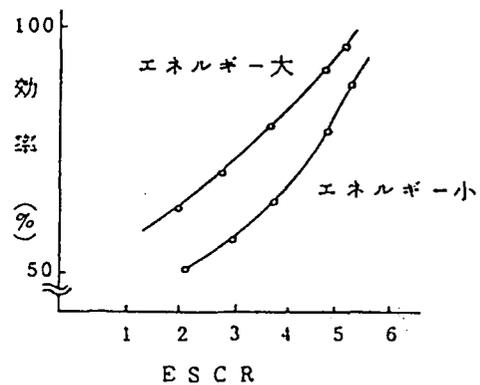


図 2

### 3.5.1 $\beta$ 線クエンチング補正曲線の作成

クエンチング補正法としては、微弱放射能のルーチン分析に適している外部標準チャンネル比法（ESCR法）を用いる。前述のクエンチング標準線源セットを用い、次のような手順でクエンチング補正曲線を作成する。<sup>\*11</sup>

- 1) クエンチング標準線源セットおよびバックグラウンド用試料をサンプルチェンジャに計数開始1時間前にセットする。クエンチャ量0の線源を検出部に入れる。

---

#### (\*11) 低バックグラウンド液体シンチレーション測定装置のクエンチング補正曲線の作成方法

- ① 液体シンチレーション測定装置のAチャンネル（増幅器ゲイン、LLD、ULD）を3.4  $\beta$ 線測定条件の設定により得た条件に設定する。
- ② クエンチング標準線源セットをサンプルチェンジャに計数開始1時間前にセットする。各クエンチング標準線源について計数率 $n_A$ を求める。
- ③ 各線源の放射能を $N_0$ とすると、計数効率 $\varepsilon = n_A / N_0$ である。
- ④ クエンチャ量0の標準線源を検出部に入れ、外部 $\gamma$ 線源（ $^{137}\text{Cs}$ ）をセットする。
- ⑤ 液体シンチレーション測定装置のESCR用チャンネルのLLDを100、ULDを1000に設定する。
- ⑥ ESCR用増幅器ゲインを最小値から順次増加し、そのつど計数率 $n_B$ 、 $n_C$ を求める。一定値を示していた $\text{ESCR} = (n_B / n_C)$ が変化（コンプトン端パルスがULDを越えはじめる点）するところを見い出して固定する。（このとき $n_C$ を $10^k$ （ $k = 3, 4, \dots$ ）にプリセットカウントすればESCRが求め易い。）
- ⑦ ULDを300に設定し直す。これで測定条件の設定は終了。なおULDの大小によって補正曲線の感度が変わる。
- ⑧ 各クエンチング標準線源について計数値 $n_B$ 、 $n_C$ よりチャンネル比 $R = n_B / n_C$ を求める。（このとき $n_C$ を $10^k$ （ $k = 3, 4, \dots$ ）にプリセットカウントすればESCRが求め易い。）  
なお、クエンチング標準線源の放射能が $n_B$  および  $n_C$  に対して無視できないときは次のようにする。

上記設定条件にてクエンチング標準線源のみ（外部 $\gamma$ 線を照射せず）を測定し、 $n'_B$ 、 $n'_C$ を求める。その時のチャンネル比は

$$R = (n_B - n'_B) / (n_C - n'_C) \text{ である。}$$

- ⑨ 直線グラフ用紙の縦軸に $\varepsilon$ を、横軸に $R$ をとり全データをプロットし、滑らかな曲線でトレースする。
- ⑩ なお、精度および使い易さの点で、同曲線は直線に近いほどよく、また、その見かけのこう配はあまり大きくない方がよい（ $R$ の誤差 $\Delta R$ に伴う $\varepsilon$ の誤差 $\Delta \varepsilon$ はこう配に比例するため）。各チャンネルのLLD、ULDおよびゲインを変えて同様の測定を行い、最適の効率曲線を求めることが望ましい。
- ⑪  $R$ を変数として効率曲線 $\varepsilon(R)$ を2次式または3次式に仮定し、最小二乗法または連立方程式により数値式として表示しておくことと便利である（解説2参照）。そのさい、実測値そのものを適合データとして用いるより、トレースした曲線上で読みとった値を用いて計算する方がフィッティングの精度がよい。

- 2) 液体シンチレーション測定装置に内蔵の3チャンネル波高分析器(A、B、Cチャンネルとする)のAチャンネル(分析用チャンネル)を3.4 β線測定条件の設定に準じて設定する。
- 3) BチャンネルのLLDを100、ULDを∞に、CチャンネルのLLDを1000、ULDを∞にし、外部γ線源を検出部に送り出す。
- 4) BおよびCチャンネルの増幅器ゲインを共に最小値から順次増加し、そのつど各計数率 $n_B$ と $n_C$ を求める。 $n_C$ が $n_B$ のおよそ1%ぐらいになるゲイン(コンプトン端パルスが $ULD=1000$ を越えはじめる点)を見い出して、そこに固定する。
- 5) CチャンネルのLLDを300に設定し直す。これで測定条件の設定は終了。なお、CチャンネルのLLDの大小によって補正曲線の感度が変わる。
- 6) クエンチング標準線源について $n_A$ 、 $n_B$ 、 $n_C$ を求め、次に外部γ線を照射して $n_B^{EX}$ 、 $n_C^{EX}$ を求める。また、バックグラウンド用試料を用いてAチャンネルの計数率 $N_{BG}$ を求める。
- 7) 各線源の放射能を $N_0$ とすると、計数効率は $\epsilon = (n_A - n_{BG}) / N_0$ 、チャンネル比は $R = (n_C^{EX} - n_C) / (n_B^{EX} - n_B)$ である。
- 8) 直線グラフ用紙の縦軸に $\epsilon$ を、横軸に $R$ をとり全データをプロットし、滑らかな曲線でトレースする。
- 9) なお、精度および使い易さの点で、同曲線は直線に近いほどよく、また、その見かけの勾配はあまり大きくない方がよい。<sup>\*12</sup> 各チャンネルのLLD、ULDおよびゲインを変えて同様の測定を行い、最適の効率曲線を求めることが望ましい。
- 10)  $R$ を変数として効率曲線 $\epsilon(R)$ を2次式または3次式に仮定し、最小二乗法または連立方程式により数値式として表示しておく<sup>\*13</sup>と便利である。そのさい、実測値そのものを適合データとして用いるより、トレースした曲線上で読みとった値を用いて計算する方がフィッティングの精度がよい。

(\*12)  $R$ の誤差 $\Delta R$ に伴う $\epsilon$ の誤差 $\Delta \epsilon$ は勾配に比例するため。

(\*13) 解説2参照。

### Ⅲ. 液体シンチレーション測定 ( $\alpha$ 線) による プルトニウムの分析法

## 第 1 章 プルトニウムの分析

分析対象試料は海水、海産生物（灰）及び海底堆積物である。イオン交換あるいはTiO<sub>2</sub>-キシレン溶媒抽出によりプルトニウムを精製したのち、シンチレータ溶液を加え、測定試料とする。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、本法では<sup>238</sup>Pu + <sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu<sup>\*1</sup>の合計が得られる。また、回収率補正用トレーサー(<sup>230</sup>Pu または<sup>242</sup>Pu)も添加出来ない。それ故、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。本法の長所は、電着により試料を調製する従来法に比べ、分析所要時間を短縮出来る点である。分析目標値は平均回収率を75%、測定時間を100分、バックグラウンド計数の計数誤差の3倍以上を有意とした場合、およそ10mBq / 試料である。また、バックグラウンド計数を減少させ、分析目標値を低くする方法として有用である $\alpha$ - $\beta$ 線波形弁別法は幾つかの特殊な装置を必要とするので“解説”<sup>\*2</sup>とした。それを用いた場合の分析目標値はおよそ4mBq / 試料である。

### 1.1 海水

試料に塩化鉄(III)溶液を加え、プルトニウムを水酸化鉄(III)に共沈させたのち、陰イオン交換またはTiO<sub>2</sub>-キシレン溶媒抽出によりプルトニウムを分離する。精製されたプルトニウムを塩酸に溶解したのち、抽出シンチレータを加え、液体シンチレーション測定装置により定量する。この方法により海水100ℓが処理でき、100分間測定でおよそ0.1mBq / ℓのプルトニウムが分析出来る。

#### 1.1.1 試薬

##### (1)担体溶液

塩化鉄(III)溶液 [50 mg Fe<sup>3+</sup> / ml、HCl (1+120) ]

##### (2)酸

硝酸 (1+13)、硝酸 (3+2)

塩酸 (1+200)、塩酸 (1+120)、塩酸 (1+11)、塩酸 (5+1)

過塩素酸

過酸化水素水

---

(\*1) <sup>241</sup>Puは $\alpha$ 線放出率が低く、また $\beta$ 線の最大エネルギーが21keVと低いので影響しない。

(3) 塩基

アンモニア水 (1 + 150)

(4) 有機試薬

TiOA-キシレン溶液 (1v/v%)、TiOA-キシレン溶液 (10v/v%)

フェノールフタレイン (1w/v%)

抽出シンチレータ (キシレン200mlにPPO1gとDMPOPOP60mgを加え攪はん、振り混ぜ、溶解する。さらにHDEHP20mlを加え、振り混ぜる。)

アセトフェノン

(5) 混合溶液

溶離液または逆抽出液

ヨウ化アンモニウム溶液<sup>\*3</sup> (A液-塩酸、B液-ヨウ化アンモニウム10.2gを水に溶解し200mlとする。使用直前にA液とB液を71:29の割合で混合する。)

(6) 陰イオン交換樹脂<sup>\*4</sup>

1.1.2 分析操作

分析操作は〔1〕、〔2〕、〔3〕あるいは〔1〕、〔2'〕、〔3〕の順に行う。

〔1〕濃縮・溶解

- (1) あらかじめ硝酸で酸性とした海水100ℓをポリエチレン容器に移す。
- (2) 塩化鉄(Ⅲ)溶液20mlをかき混ぜながら加える。
- (3) フェノールフタレイン2mlを加え、十分かき混ぜたのち、アンモニア水を試料水が赤色を呈するまで加える。
- (3) 沈殿が沈降するまで放置する。上澄み液を捨て、沈殿を残液と共に5ℓビーカーに移し、加温し、放置する。沈殿を移しかえる際、共沈容器をアンモニア水で洗浄する。洗液はビーカーに合わせる。

---

(\*3) ヨウ化水素酸を用いる場合には、ヨウ化水素酸136mlと塩酸708mlを使用直前に混合し、水で正確に1ℓとする。

(\*4) Dowex® 1×8、Amberlite® CG-400、Diaion® SA#100のような強塩基性陰イオン交換樹脂100~200メッシュを用いる。

コンディショニングした樹脂をイオン交換カラム(内径1~1.5cm、高さ15~20cm、下方コック付きガラスフィルター封じ込みガラス管)に樹脂柱の高さが5cmとなるようにつめる。硝酸(3+2)100mlを毎分2mlの流速でカラムを通し飽和させる。コンディショニングについては(P.10)参照。

- (5) 上澄み液を捨て、沈澱を残液とともに1ℓまたは2ℓビーカーに移し、数時間放置する。
- (6) 上澄み液を捨て、沈澱を残液とともに遠沈管に移し、遠心分離を行い、上澄み液を捨てる。この操作を繰り返し沈澱を集める。遠心分離は2500rpmで5分間行う。
- (7) 沈澱にアンモニア水100mlを加え、よく混ぜあわせたのち、遠心分離し、上澄み液を捨てる。
- (8) 沈澱を温硝酸(3+2)約100mlで溶解する。
- (9) ガラス繊維ろ紙(GA-100)<sup>\*5</sup>でろ過し、ろ液をビーカー500mlに受ける。ろ紙上の残留物は少量の温硝酸(3+2)で洗ったのち捨てる。
- (10) ろ液、洗液は合わせ、加温して溶液がシロップ状になるまで濃縮する。
- (11) 蒸発濃縮した溶液に硝酸(3+2)100mlと過酸化水素水1mlを加えて、析出した塩を加温溶解する。そのさい過酸化水素の発泡が無くなるまで十分加熱し分解する。<sup>\*6</sup>
- (12) 不溶物があればガラス繊維ろ紙(GA-100)<sup>\*7</sup>で吸引ろ別し、ろ液は200mlビーカーに受ける。ろ紙を少量の硝酸(3+2)で洗浄し、洗液はろ液に合わせる。
- (13) ろ液、洗液は〔2〕または〔2'〕に従って操作する。

## 〔2〕分離・精製—イオン交換分離法

- (1) 試料溶液をあらかじめ調製してある陰イオン交換樹脂カラムに毎分2ml以下の流速で流す。流出液は捨てる。
- (2) つぎに1回当たり硝酸(3+2)30mlを用いて3回<sup>\*8</sup>、つづけて1回当たり塩酸(5+1)50mlを用いて4回順次カラムを洗浄する。
- (3) 溶離液40mlを毎分1ml以下の流速で流し、溶出液を100mlビーカーに集める。<sup>\*9</sup>
- (4) 溶出液を蒸発乾固したのち、硝酸5mlと過塩素酸数滴を加え、再び加熱し、過塩素酸の白煙が発生しなくなるまで蒸発乾固する。以下〔3〕にしたがって操作する。

## 〔2'〕分離・精製—TiO<sub>2</sub>-キシレン溶媒抽出分離法

- (1) 試料溶液をその量に応じて200～500ml分液漏斗に移す。  
あらかじめ硝酸(3+2)で予備平衡にしておいた10%TiO<sub>2</sub>-キシレン溶液50mlを加え2～3分間振り混ぜ、プルトニウムを有機層に抽出する。水層を別の分液漏斗に移す。

- 
- (\*5) 手に入らない場合は試料溶液を十分放冷したのち、ろ紙(5種A)を用いてもよい。
  - (\*6) 分解が不十分であると分離操作が不完全となり、回収率が悪くなる。過酸化水素でプルトニウム<IV>にそろえる。
  - (\*7) 手に入らない場合は試料溶液を十分放冷したのち、ろ紙(5種C)を用いてもよい。
  - (\*8) 硝酸(3+2)による洗浄までは連続して行うこと。
  - (\*9) 流速の調節ができない場合は溶離液20mlを流出させてから流出を止め、4価のプルトニウムが十分に3価に還元されるよう1時間放置したのち、残りの溶離液20mlを流す。

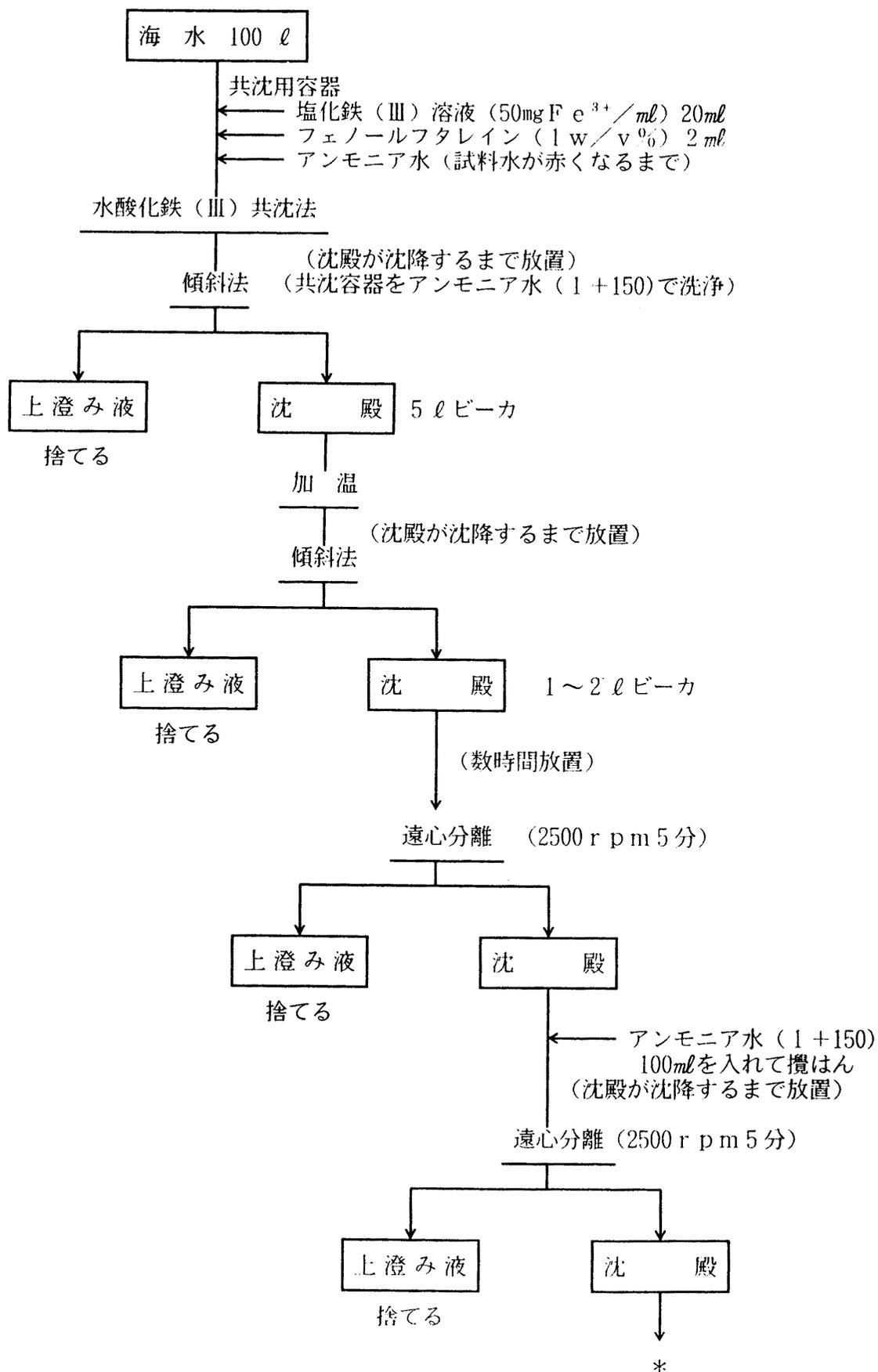
- (2) 再び水層に10%TiO<sub>2</sub>-キシレン30 mlを加え2~3分間振り混ぜる。水層を捨て有機層を(1)の有機層に合わせる。
- (3) 有機層に硝酸(3+2)100 mlを加え、2~3分間振り混ぜ、有機層を洗浄する。さらに硝酸(3+2)100 mlで1回、塩酸(5+1)100 mlで2回洗浄し、洗液は捨てる。
- (4) 有機層に逆抽出液40 mlを加え、2~3分間振り混ぜ、プルトニウムを水層に逆抽出する。水層は別の分液漏斗に移す。この操作をもう一度くり返し、水層を合わせる。
- (5) 水層にキシレン30 mlを加え、2~3分間振り混ぜ洗浄する。
- (6) 水層を100~200 mlビーカーにとり、ホットプレート上で蒸発乾固する。冷却した後、硝酸5 mlと過塩素酸数滴を加え再び加熱し、過塩素酸の白煙が生じなくなるまで蒸発乾固する。以下〔3〕にしたがって操作する。

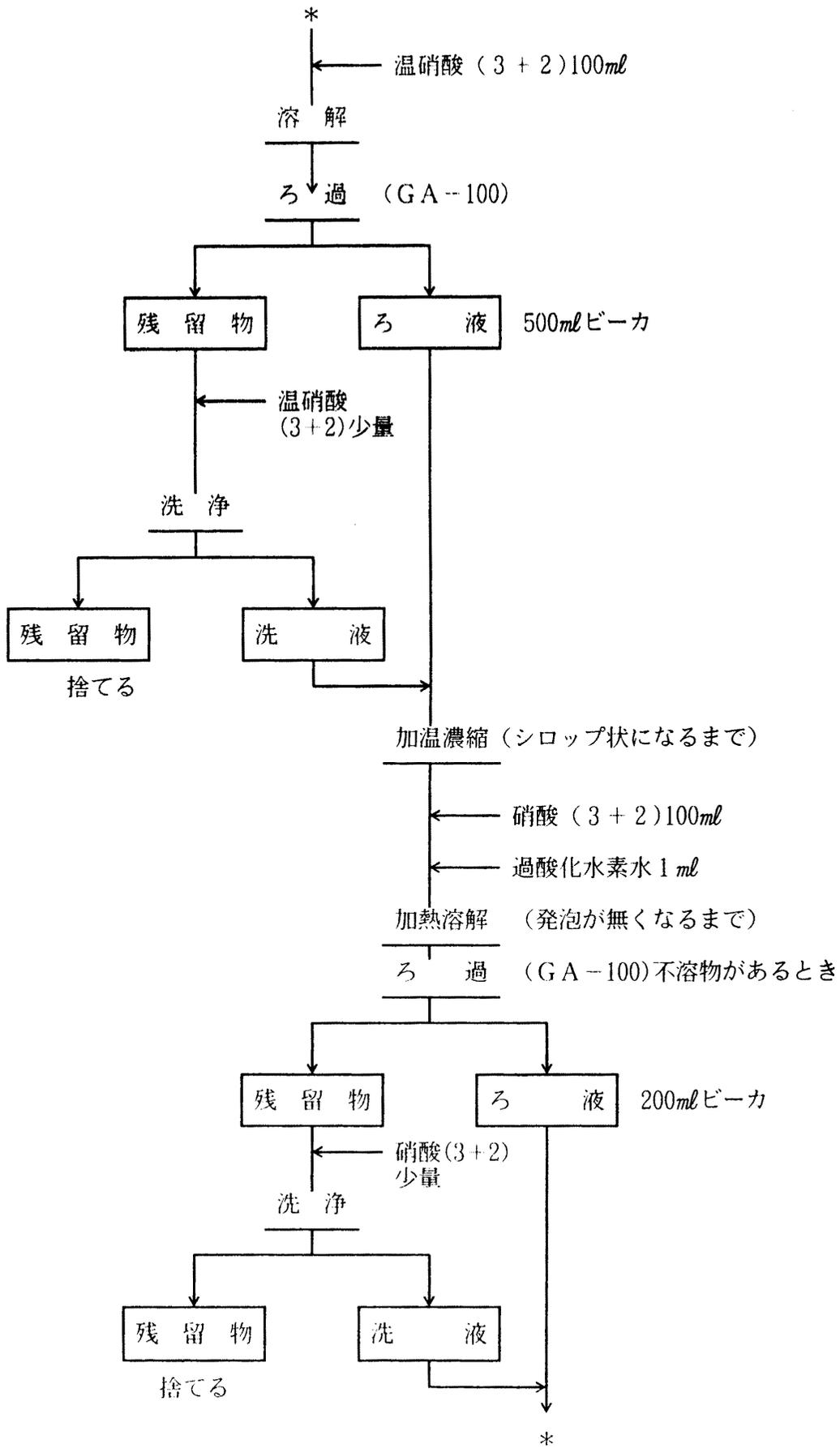
### 〔3〕測定試料の調製

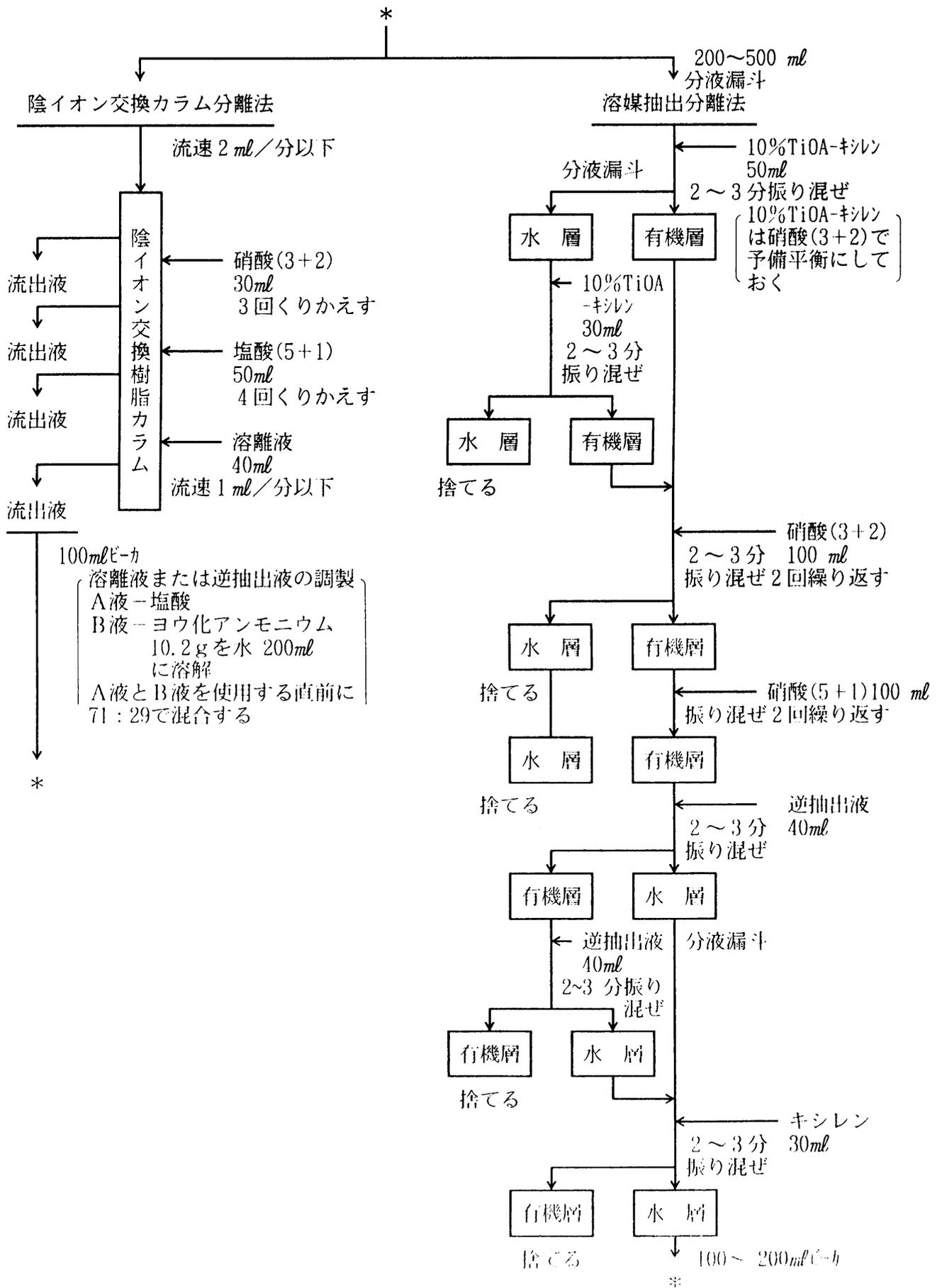
- (1) 乾固物を塩酸(1+11)5 mlで加温溶解する。もし褐色残留物がある場合には(6)以下に従って操作する。<sup>\*10</sup>
- (2) 加温溶解した溶液はガラス瓶<sup>\*11</sup>(20 ml)に移す。  
ビーカーを塩酸(1+11)で洗浄し、洗液もガラス瓶(20 ml)に加える。
- (3) ホットプレート上で試料溶液を蒸発乾固する。
- (4) 塩酸(1+11)5 mlを加え、試料を加温溶解する。
- (5) 放冷後、抽出シンチレータ<sup>\*12</sup>15 mlを加え、十分に振り混ぜる。  
— 褐色の残留物がある場合 —
- (6) ホットプレート上で蒸発乾固する。
- (7) 乾固物を硝酸(1+13)5 mlで加温溶解する。
- (8) 加温溶解した溶液はガラス瓶<sup>\*11</sup>(20 ml)に移す。  
ビーカーを硝酸(1+13)で洗浄し、洗液もガラス瓶(20 ml)に加える。
- (9) ホットプレート上で試料溶液を蒸発乾固する。
- (10) 硝酸(1+13)5 mlを加え、試料を加温溶解する。
- (11) 放冷後、抽出シンチレータ<sup>\*13</sup>15 mlを加え、十分に振り混ぜる。

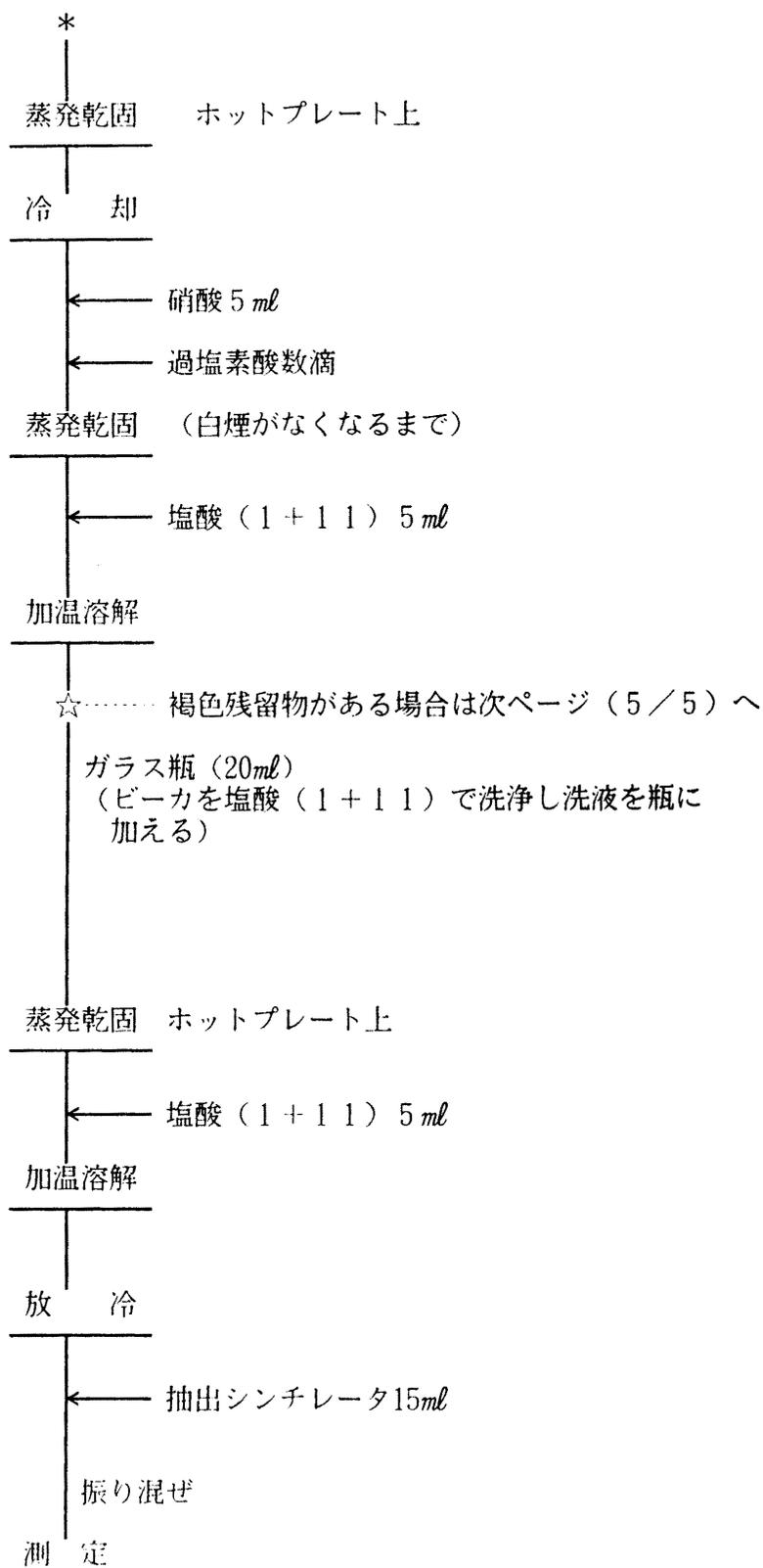
- 
- (\*10) 海産生物(灰)試料を溶媒抽出分離法で処理した場合にみられることがある。
- (\*11) 測定瓶のキャップの内ぶたの素材が酸に侵されないもの、例えば尿素樹脂などで作られているものを使用する。
- (\*12) 品質の良いHDEHPが得られない場合は乳化シンチレータを用いる。解説Ⅲ-4参照。乳化シンチレータを用いた時は、50℃前後の湯に浸しながら液が透明になるまで振り混ぜた後、冷暗所に1時間程度放置する。
- (\*13) 測定試料の保存期間は塩酸(1+11)溶液の場合より多少短くなる。試料溶液の着色は測定には影響しない。

プルトニウムの分析 (海水)

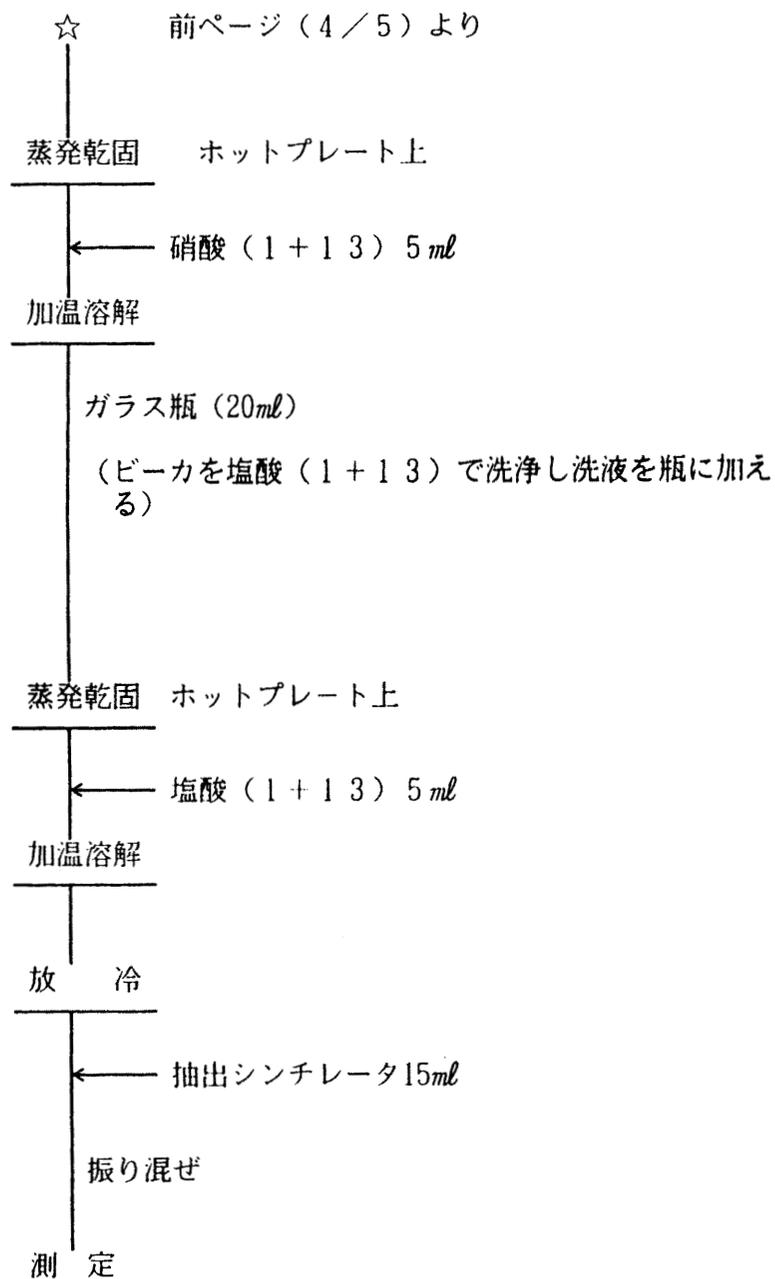








褐色残留物がある場合



### 1.1.3 標準線源の作製 (2.3及び2.4参照)

標準線源は $^{210}\text{Pb}$ あるいは $^{241}\text{Am}$ 標準溶液から作製する。

#### [1] $^{210}\text{Pb}$ 標準線源の作製

$^{210}\text{Pb}$ 標準溶液からミルクした $^{210}\text{Po}$ を用いて標準線源を作製する。

ミルク法にはイオン交換樹脂による方法あるいは溶媒抽出による方法があるが、ここでは短時間で試料調製が可能である溶媒抽出法を用いる。<sup>\*14</sup>

- (1)  $^{210}\text{Pb}$ 標準溶液 ( $100\text{Bq/ml}$ 程度) のおよそ  $2\text{ml}$  を  $50\text{ml}$  分液漏斗に分取する。
- (2) 1%TiO<sub>2</sub>-キシレンを  $20\text{ml}$  加え、5分間振り混ぜる。
- (3) 有機層と水層が分離したら、水層をビーカーに移し、有機層に塩酸  $20\text{ml}$  を加え5分間振り混ぜる。(洗浄操作)
- (4) 有機層と水層が分離したら、水層を(3)のビーカーに移し、再び有機層に塩酸  $20\text{ml}$  を加え5分間振り混ぜる。(洗浄操作)
- (5) 有機層と水層が分離したら、水層を(4)のビーカーと合わせ保存する。<sup>\*15</sup>  
有機層を  $30\text{ml}$  ビーカーに移しホットプレート上で  $10\text{ml}$  程度まで濃縮する。
- (6) ガラス瓶<sup>\*16</sup> ( $20\text{ml}$ ) を5~7本用意し、各々に塩酸 (1+1)  $5\text{ml}$ 、抽出シンチレータ  $1.4\text{ml}$  及び操作(1)~(5) で得られた $^{210}\text{Po}$ 溶液  $1\text{ml}$  を入れる。  
さらにクエンチャとしてアセトフェノンを  $0\sim 0.5\text{v/v\%}$  となるように添加し、振り混ぜた後密栓する。調製(または検定)年月日、放射能などを測定瓶の蓋上に記載する。

#### [2] $^{241}\text{Am}$ 標準線源の作製

- (1) ガラス瓶<sup>\*16</sup> ( $20\text{ml}$ ) を5~7本用意し、 $^{241}\text{Am}$ 標準溶液の一定量 ( $10\text{Bq}$ 程度)<sup>\*17</sup> を入れ、ホットプレート上で蒸発乾固する。
- (2) 乾固物を塩酸 (1+200)  $5\text{ml}$  で溶解する。
- (3) 抽出シンチレータ  $1.5\text{ml}$  を加え、十分に振り混ぜる。
- (4) クエンチャとしてアセトフェノンを  $0\sim 0.5\text{v/v\%}$  となるように添加し、振り混ぜた後密栓する。調製(または検定)年月日、放射能などを測定瓶の蓋上に記載する。

---

(\*14) 回収率は  $60\sim 80\%$  程度である。

(\*15) (株)日本アイソトープ協会 (〒113 東京都文京区本駒込2-28-45) から頒布されている $^{210}\text{Pb}$ 標準溶液の組成(例)

化学形  $\text{Bi}(\text{NO}_3)_3$   $0.1\text{mg/g}$ ,  $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$   $0.1\text{mg/g}$  in  $2\text{M-HNO}_3$

(\*16) 放射能は正確に分かっている必要はない。

(\*17) 水層は保存し、 $^{210}\text{Po}$ の生成を待ち、再利用する。

#### 1.1.4 放射能測定（2.4 参照）

- (1) 使用機器の型式、名称、試料名などを記録する。
- (2) 適当な標準線源を用いて計数装置の動作が正常なことを確認する。
- (3) 外部標準線源を用いて試料の外部標準チャンネル比（E S C R）を求め、ディスクリミネータのLLD及びULDを設定する。<sup>\*18</sup>
- (4) バックグラウンド試料を100分間測定する。
- (5) 試料を100分間測定する。
- (6) 試料の計数率からバックグラウンド計数率を差し引き、正味の計数率及び標準偏差を求める。

#### 1.1.5 計算

##### 〔1〕 海水中のプルトニウムの濃度

1.1.4 で得た放射能の測定結果から次式に従ってプルトニウムの濃度を計算する。

$$A' \pm \Delta' = \frac{\left[ \left( \frac{N_s}{T_s} - \frac{N_b}{T_b} \right) \pm \left( \frac{N_s}{T_s^2} + \frac{N_b}{T_b^2} \right)^{\frac{1}{2}} \right]}{60} \times \frac{1}{W} \times \frac{1}{0.75} \quad *19$$

A' : 海水中のプルトニウム濃度 (Bq/ℓ)

Δ' : 同上誤差

N<sub>s</sub> : 試料の全計数值

T<sub>s</sub> : 試料の測定時間 (単位: 分)

N<sub>b</sub> : バックグラウンドの計数值

T<sub>b</sub> : バックグラウンドの測定時間 (単位: 分)

W : 分析供試量 (ℓ)

##### 〔2〕 減衰補正

<sup>238</sup>Pu、<sup>239</sup>Pu、<sup>240</sup>Pu の半減期は長いので減衰補正の必要はない。

(\*18) 解説Ⅲ - 5 参照。

(\*19) 平均回収率を75%とした場合。解説Ⅲ - 6 参照。

## 1.2 海産生物

海産生物の灰化試料を硝酸に溶かし、プルトニウムを陰イオン交換分離またはTiOA-キシレン溶媒抽出により分離する。分離されたプルトニウムに抽出シンチレータを加え液体シンチレーション測定装置により定量する。

この方法により灰20gを使用した場合、100分間測定でおよそ0.7mBq/g 灰のプルトニウムが分析できる。

### 1.2.1 試薬

#### (1) 酸

硝酸(1+13)、硝酸(1+1)、硝酸(3+2)

塩酸(1+200)、塩酸(1+11)、塩酸(5+1)

フッ化水素酸

過酸化水素水

過塩素酸

#### (2) 有機試薬

TiOA-キシレン溶液(1 v/v%)、TiOA-キシレン溶液(10 v/v%)

抽出シンチレータ(キシレン 200mlにPPO 1gとDMPOPOP 60mgを加えて攪はん振り混ぜ、溶解する。さらにHDEHP 20mlを加え振り混ぜる。)

アセトフェノン

#### (3) 混合溶液

溶離液または逆抽出液

ヨウ化アンモニウム溶液<sup>\*20</sup>(A液-塩酸、B液-ヨウ化アンモニウム10.2gを水に溶解し 200mlとする。使用直前にA液とB液を71:29の割合で混合する。)

#### (4) 陰イオン交換樹脂<sup>\*21</sup>

### 1.2.2 分析操作

#### {1} 溶解・濃縮

(1) 灰化試料20gを500mlビーカーに正確にはかりとる。

硝酸(1+1)50mlを加えてホットプレート上で蒸発乾固する。

(2) 乾固物に過酸化水素水50mlを少量ずつ加えて有機物を分解する。

---

(\*20) ヨウ化水素酸を用いる場合には、ヨウ化水素酸 136mlと塩酸 708mlを使用直前に混合し、水で正確に 1ℓとする。

(\*21) Dowex® 1×8、Amberlite® CG-400、Diaion® SA #100のような強塩基性陰イオン交換樹脂 100~200メッシュを用いる。

コンディショニングした樹脂をイオン交換カラム(内径1~1.5cm、高さ15~20cm、下方コック付ガラスフィルター封じ込みガラス管)に樹脂柱の高さが5cmとなるようにつめる。硝酸(3+2) 100mlを毎分2mlの流速でカラムを通し飽和させる。コンディショニングについては(P.10)参照。

試料が白くなるまでこの操作をくり返す。<sup>\*22</sup>

- (3) 蒸発残分に硝酸(3+2) 150 mlを加え、加温溶解する。放冷後不溶物があれば遠心分離またはろ紙(5種A)を用いてろ別し、上澄み液またはろ液は 300mlビーカーに受け、保存する。
- (4) ろ紙及び不溶物については念のためさらに次の操作を行う。遠心分離の場合は不溶物をそのまま 100 mlテフロンビーカーに少量の硝酸で移す。ろ別した場合はろ紙と不溶物を蒸発皿12cmφに入れ、電気炉で500℃以下で灰化したのち、100 mlテフロンビーカーに移す。フッ化水素酸 5 mlを加えて蒸発乾固する。<sup>\*23</sup>
- (5) 蒸発残留物に硝酸(3+2) 50mlを加えて加温溶解し、ガラス繊維ろ紙(GA-100)<sup>\*21</sup>で吸引ろ過する。ろ紙を少量の硝酸(3+2)で洗い、ろ液、洗液を(3)の300 mlビーカーに合わせる。
- (6) 以下1.1.2 分析操作〔2〕あるいは〔2′〕のいずれかに従って操作する。

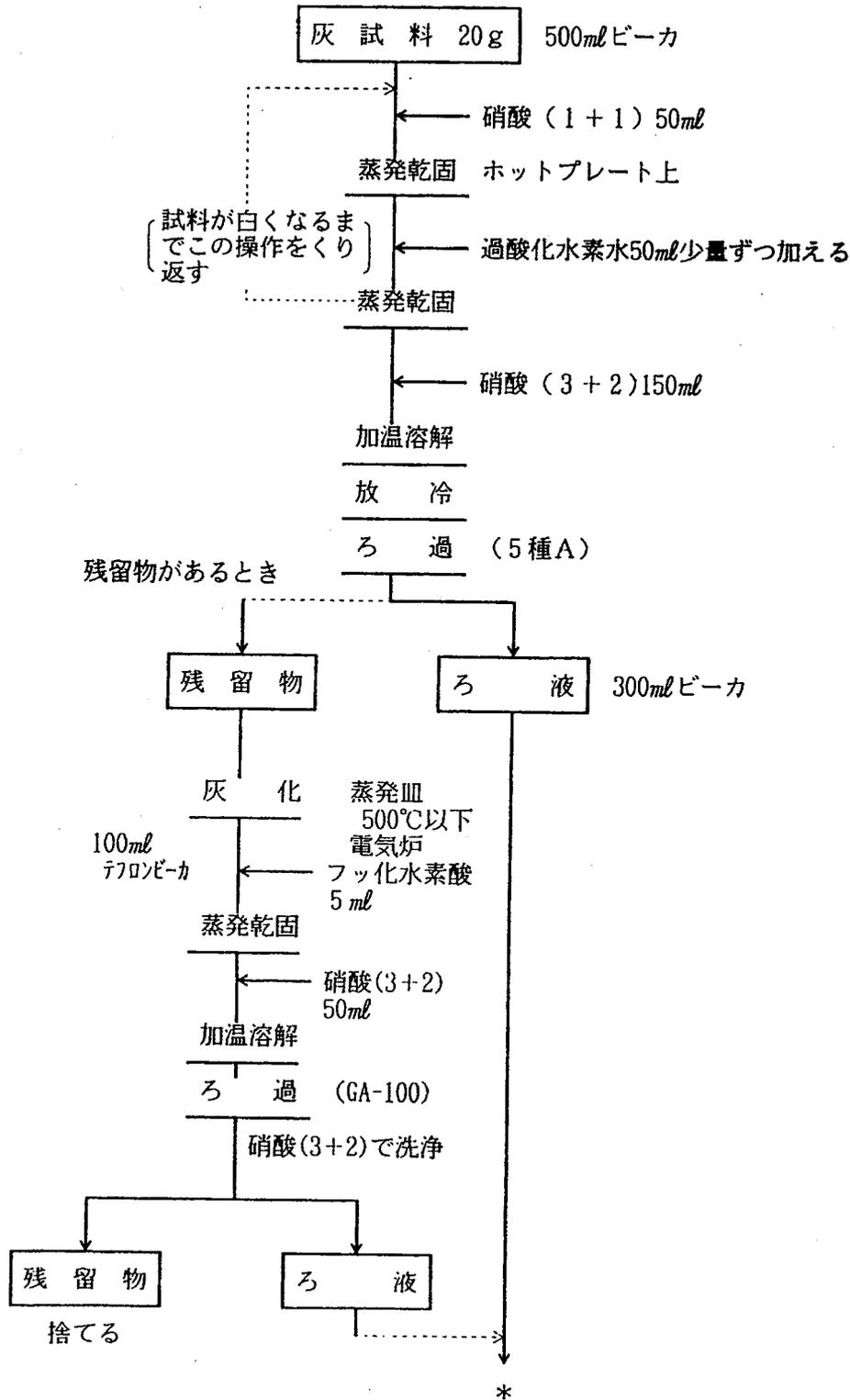
---

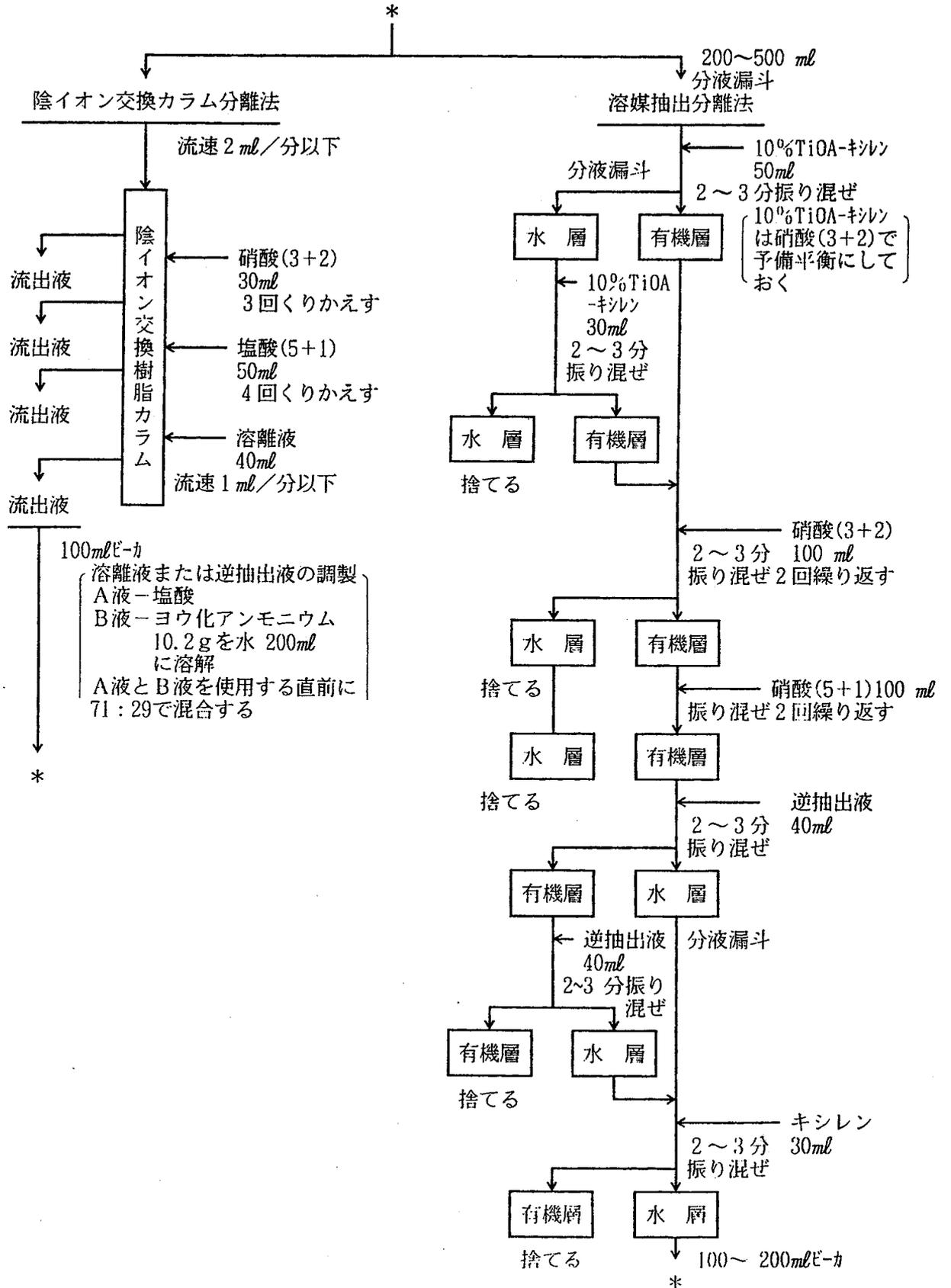
(\*22) 灰分が多くて、よく灰化できない試料については、硝酸100 mlを加えてホットプレート上で蒸発乾固し、過塩素酸を少量滴下して、試料が白くなるまでくり返す。

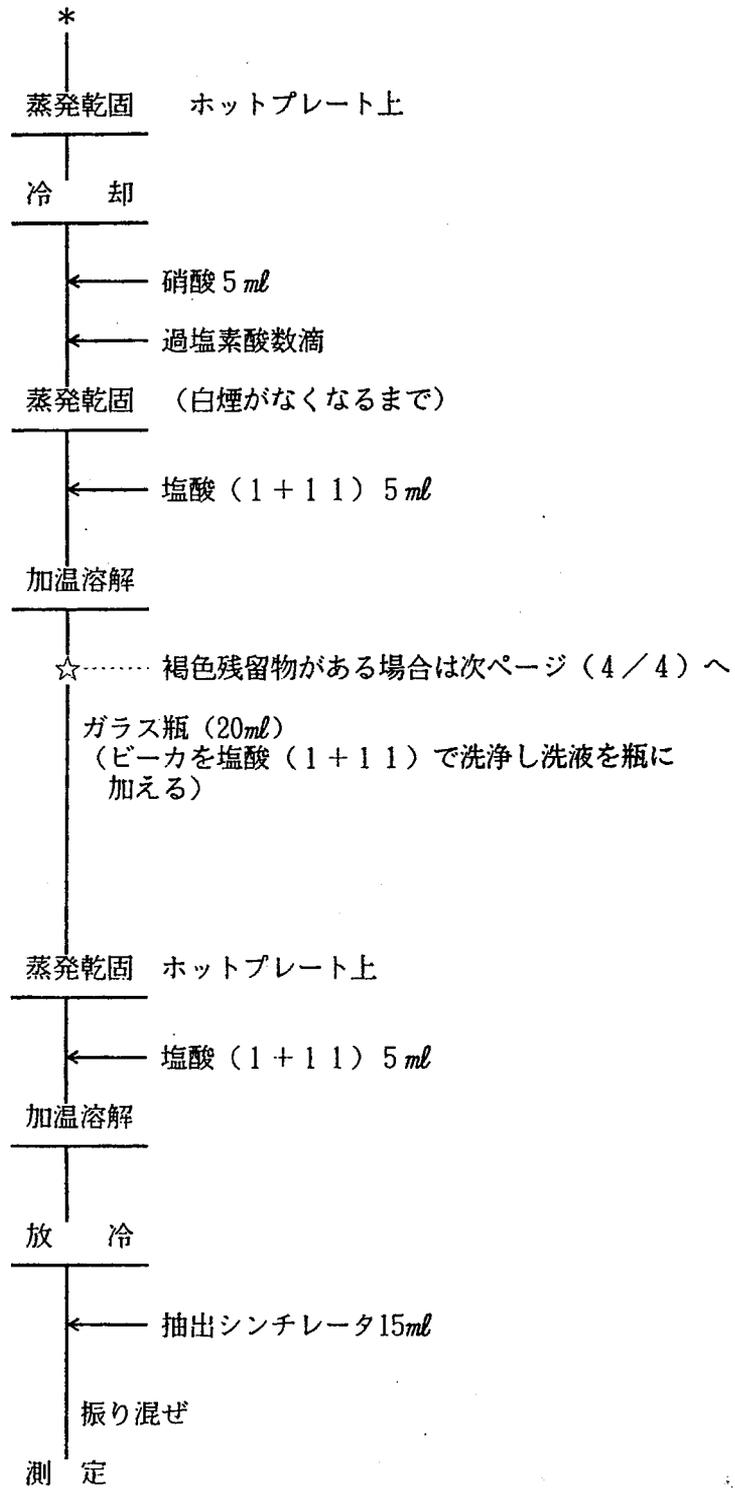
(\*23) 不溶物のフッ化水素酸処理は行わなくても、通常は90%以上のプルトニウムを溶液とすることができる。

(\*24) これが手に入らぬ場合は試料溶液を十分放冷したのち、ろ紙(5種C)を用いてもよい。

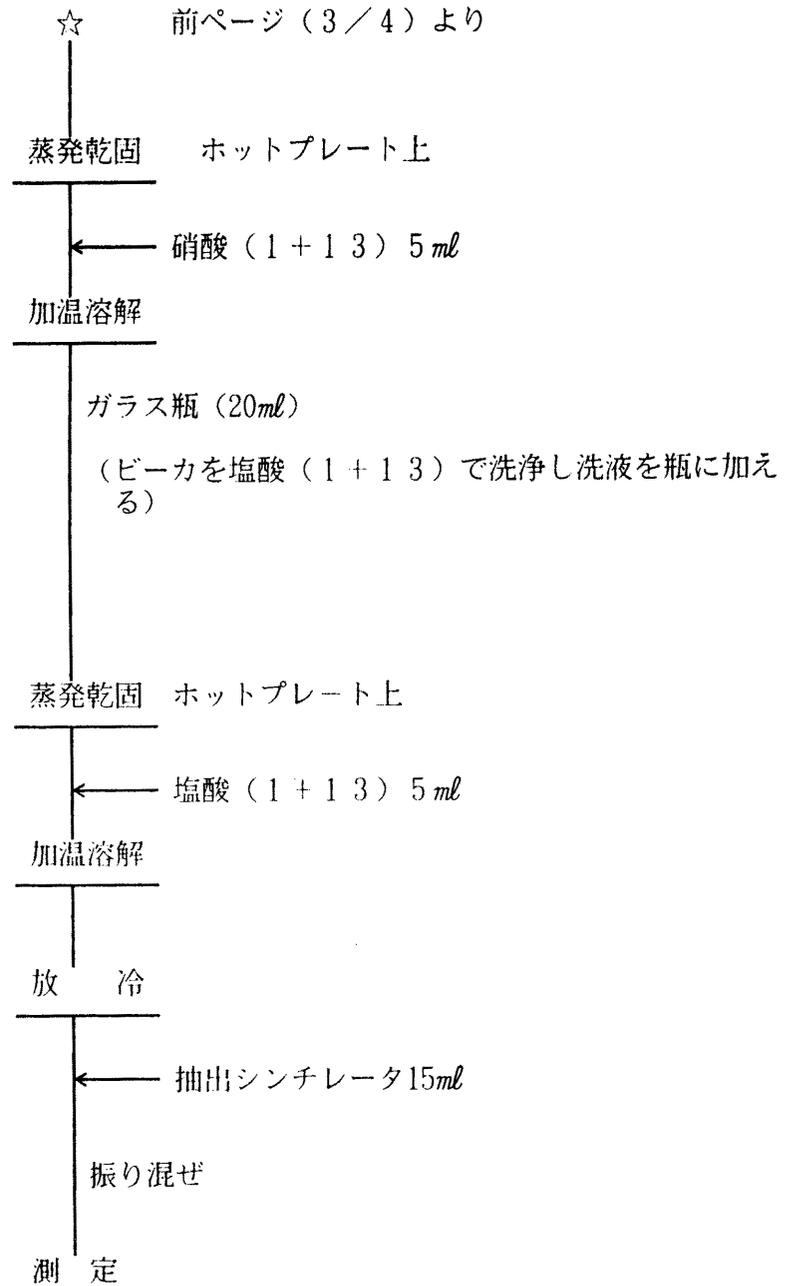
プルトニウムの分析 (海産生物)







褐色残留物がある場合



1.2.3 標準線源の作製 (2.3 および2.4 参照)

1.1.3 に同じ。

1.2.4 放射能測定 (2.4 参照)

1.1.4 に同じ。

1.2.5 計算

〔1〕 海産生物中のプルトニウムの濃度

1.2.4 で得た放射能の測定結果から次式に従ってプルトニウムの濃度を計算する。

$$A' \pm \Delta' = \frac{\left\{ \left( \frac{N_s}{T_s} - \frac{N_b}{T_b} \right) \pm \left( \frac{N_s}{T_s^2} + \frac{N_b}{T_b^2} \right)^{1/2} \right\}}{60} \times \frac{K \times 10}{W} \times \frac{1}{0.75}^{*25}$$

A' : 海産生物中のプルトニウム濃度 (Bq/kg生)

Δ' : 同上誤差

Ns : 試料の全計数值

Ts : 試料の測定時間 (単位: 分)

Nb : バックグラウンドの計数值

Tb : バックグラウンドの測定時間 (単位: 分)

W : 分析供試量 (g)

K : 試料の灰分 (%)

〔2〕 減衰補正

1.1.5 〔2〕 に同じ。

---

(\*25) 平均回収率を75%とした場合。解説Ⅲ-6 参照。

### 1.3 海底堆積物<sup>\*26</sup>

海底堆積物中のプルトニウムを硝酸で煮沸浸出し、陰イオン交換分離またはTiOA-キシレン溶媒抽出により分離する。分離されたプルトニウムを抽出シンチレータと混合して液体シンチレーション測定装置により定量する。

この方法により土壌50gを使用した場合、100分間測定でおよそ 0.3Bq/kg乾土のプルトニウムが分析できる。

#### 1.3.1 試薬

##### (1) 酸

硝酸(1+13)、硝酸(3+2)

塩酸(1+200)、塩酸(1+11)、塩酸(5+1)

過塩素酸

過酸化水素水

##### (2) 有機試薬

オクチルアルコール

TiOA-キシレン溶液(1 v/v%)、TiOA-キシレン溶液(10 v/v%)

抽出シンチレータ (キシレン 200mlにPPO 1gとDMPOPOP 60mgを加えて攪はん振り混ぜる。さらにHDEHP 20mlを加え振り混ぜる。)

アセトフェノン

##### (3) 混合溶液

分離液または逆抽出液

ヨウ化アンモニウム溶液<sup>\*27</sup> [A液-塩酸、B液-ヨウ化アンモニウム10.2gを水に溶解し 200mlとする。(使用直前にA液とB液を71:29の割合で混合する。)]

##### (4) 陰イオン交換樹脂<sup>\*28</sup>

---

(\*26) 本分析法は焼結プルトニウムを含まない試料を対象としている。焼結プルトニウムを含む分析法については科学技術庁放射能測定法シリーズ12「プルトニウム分析法」(平成2年改訂)に準じて行う。

(\*27) ヨウ化水素酸を用いる場合には、ヨウ化水素酸 136mlと塩酸 708mlを使用直前に混合し、水で正確に1ℓとする。

(\*28) Dowex® 1×8、Amberlite® CG-400、Diaion® SA #100のような強塩基性陰イオン交換樹脂 100~200メッシュを用いる。  
コンディショニングした樹脂をイオン交換カラム(内径1~1.5cm、高さ15~20cm、下方コック付ガラスフィルター封じ込みガラス管)に樹脂柱の高さが5cmとなるようにつめる。硝酸(3+2) 100mlを毎分2mlの流速でカラムを通し飽和させる。コンディショニングについては(P.10)参照。

### 1.3.2 分析操作

#### 〔1〕溶解・濃縮

- (1) 乾燥細土試料<sup>\*29</sup> 約50 g (0.1 gまで秤量)を1 ℓコニカルビーカにとる。
- (2) 試料に硝酸(3+2) 300 mlを徐々に加える。発泡が激しく、コニカルビーカからあふれ出る危険性があるときは、オクチルアルコールまたは写真用界面活性剤一滴を加える。
- (3) 時計皿でコニカルビーカの口をおおって、ホットプレート上で加熱する。コニカルビーカの内容物を時々ガラス棒でかき混ぜ、30分間煮沸する。
- (4) 冷えないうちに、ブフナー漏斗付吸引びんを用い、ガラス繊維ろ紙(GA-100)でろ過し、ろ液を1 ℓビーカに受ける。
- (5) 残留物を加温した硝酸(3+2)で3回以上洗浄し、洗液とろ液を合わせる。洗液は1回の洗浄につき約25 ml程度とする。ろ液、洗液をシロップ状になるまで濃縮<sup>\*30</sup>する。
- (6) 蒸発濃縮した溶液に硝酸(3+2) 100~200 mlと過酸化水素水1 mlを加えて、析出した塩を加温溶解する。
- (7) 過酸化水素の発泡が無くなるまで十分加熱し、有機物を分解<sup>\*31</sup>する。不溶物があれば、ガラス繊維ろ紙(GA-100)<sup>\*32</sup>で吸引ろ別し、ろ液は300~500 mlビーカに受ける。ろ紙を少量の硝酸(3+2)で洗浄し、洗液はろ液に合わせる。
- (8) 以下、1.1.2 分析操作〔2〕あるいは〔2'〕のいずれかに従って操作する。

---

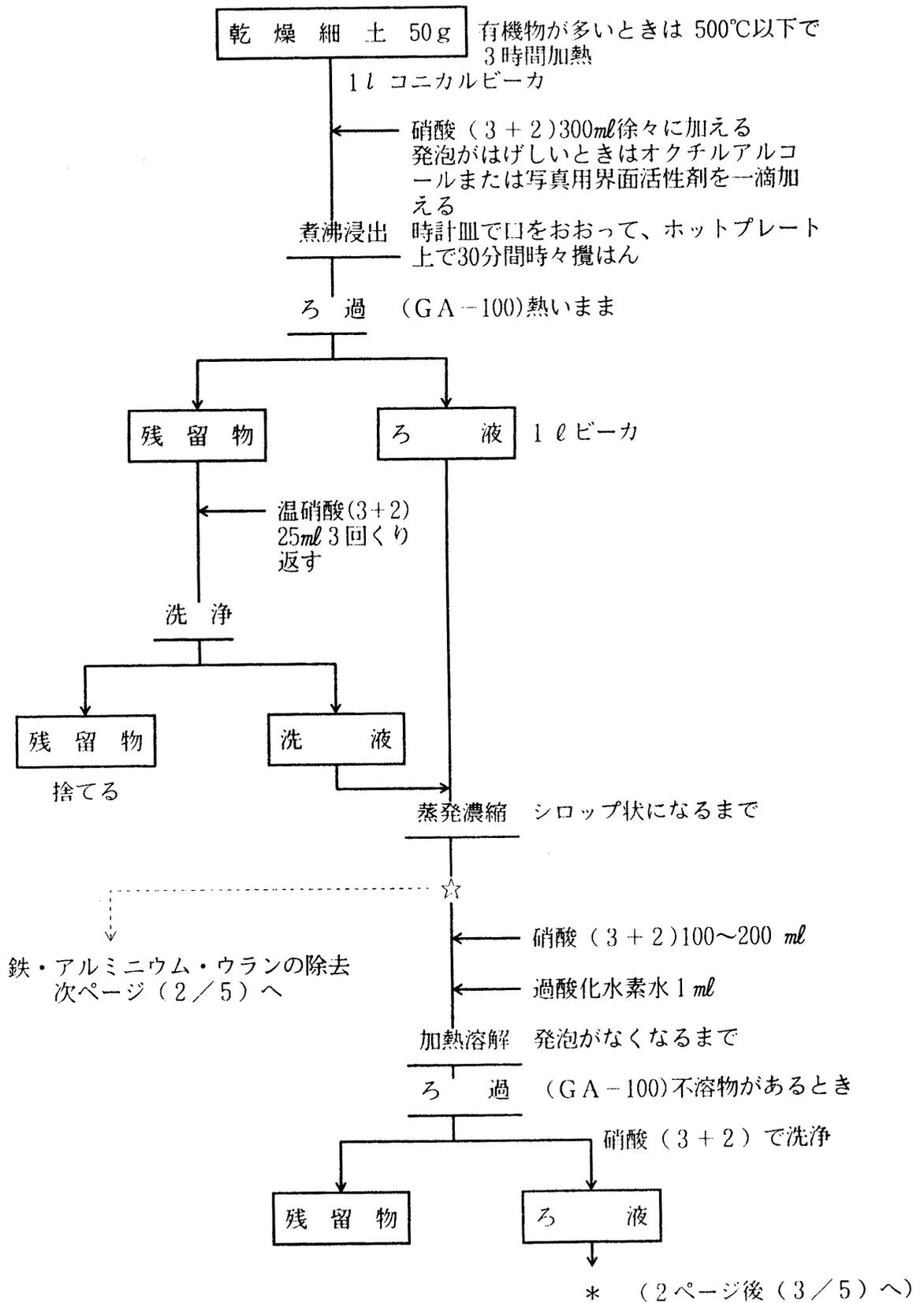
(\*29) 有機物が多い試料は電気炉に入れ500℃を超えないように加熱して有機物を分解しておく。

(\*30) 後の分離操作を容易にする目的で鉄、アルミニウム、ウランを除去する場合は次のような操作を行う。濃縮物を温水に溶かし、アンモニア水を加えアルカリ性として水酸化鉄(Ⅲ)を沈澱させ、次いで炭酸アンモニウムと水酸化ナトリウムを加え、ウランとアルミニウムを溶解したのち水酸化鉄(Ⅲ)の沈澱を遠心分離する。この沈澱を塩酸に溶かし、MIBKで鉄を抽出する。

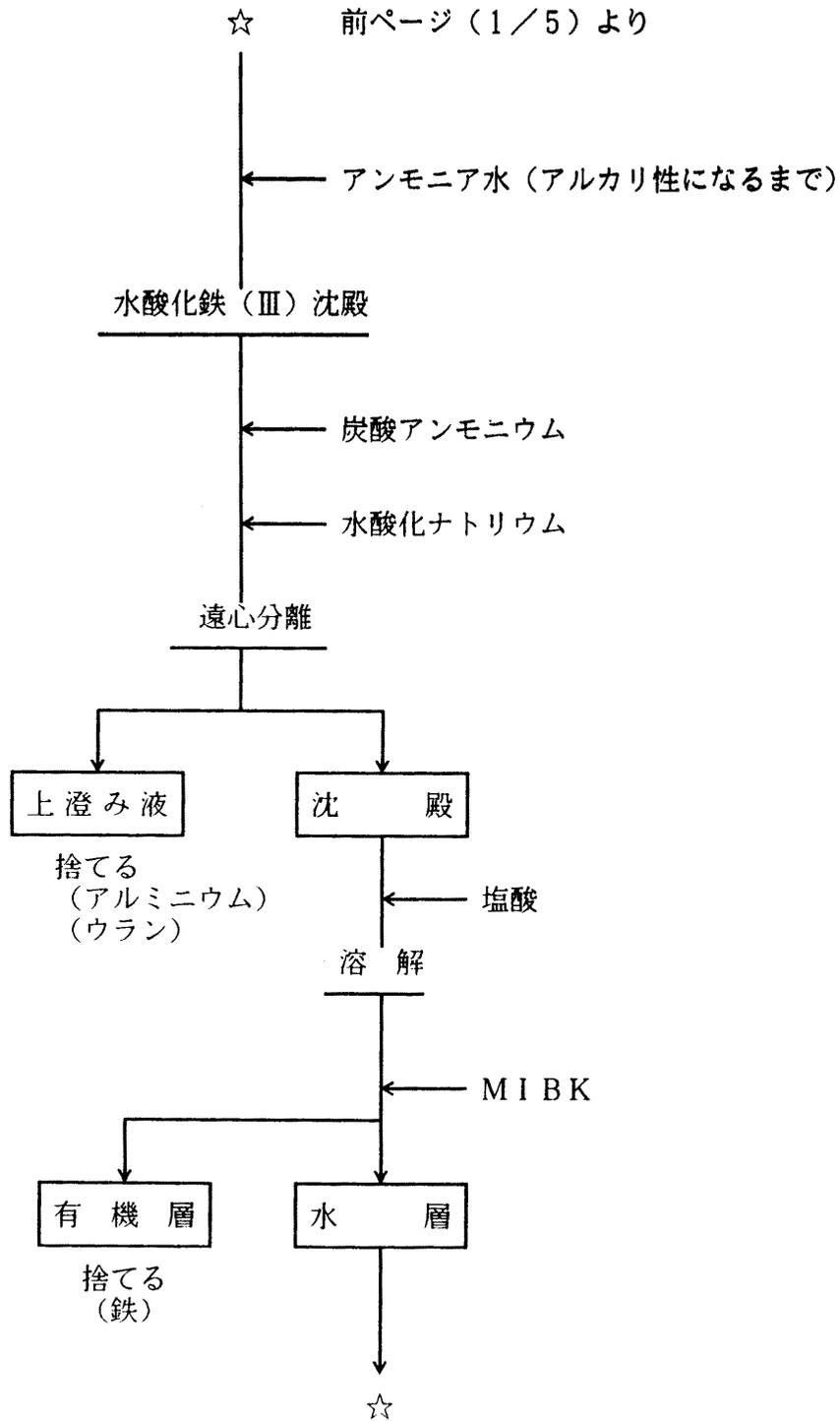
(\*31) 分解が不十分であると、回収率が悪くなる。

(\*32) これが手に入らぬ場合は試料溶液を十分放冷したのち、ろ紙(5種C)を用いてもよい。

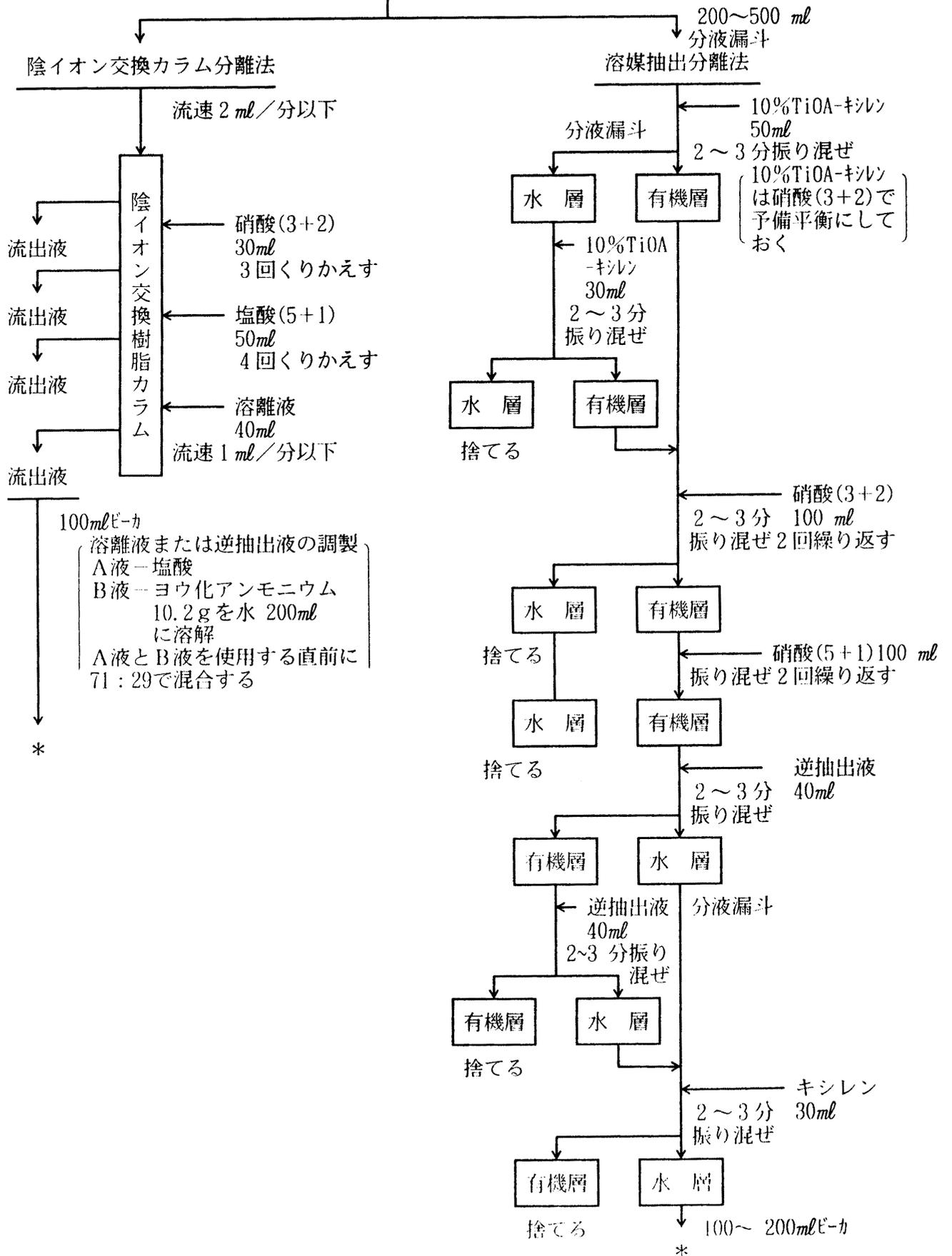
プルトニウムの分析 (海底土)

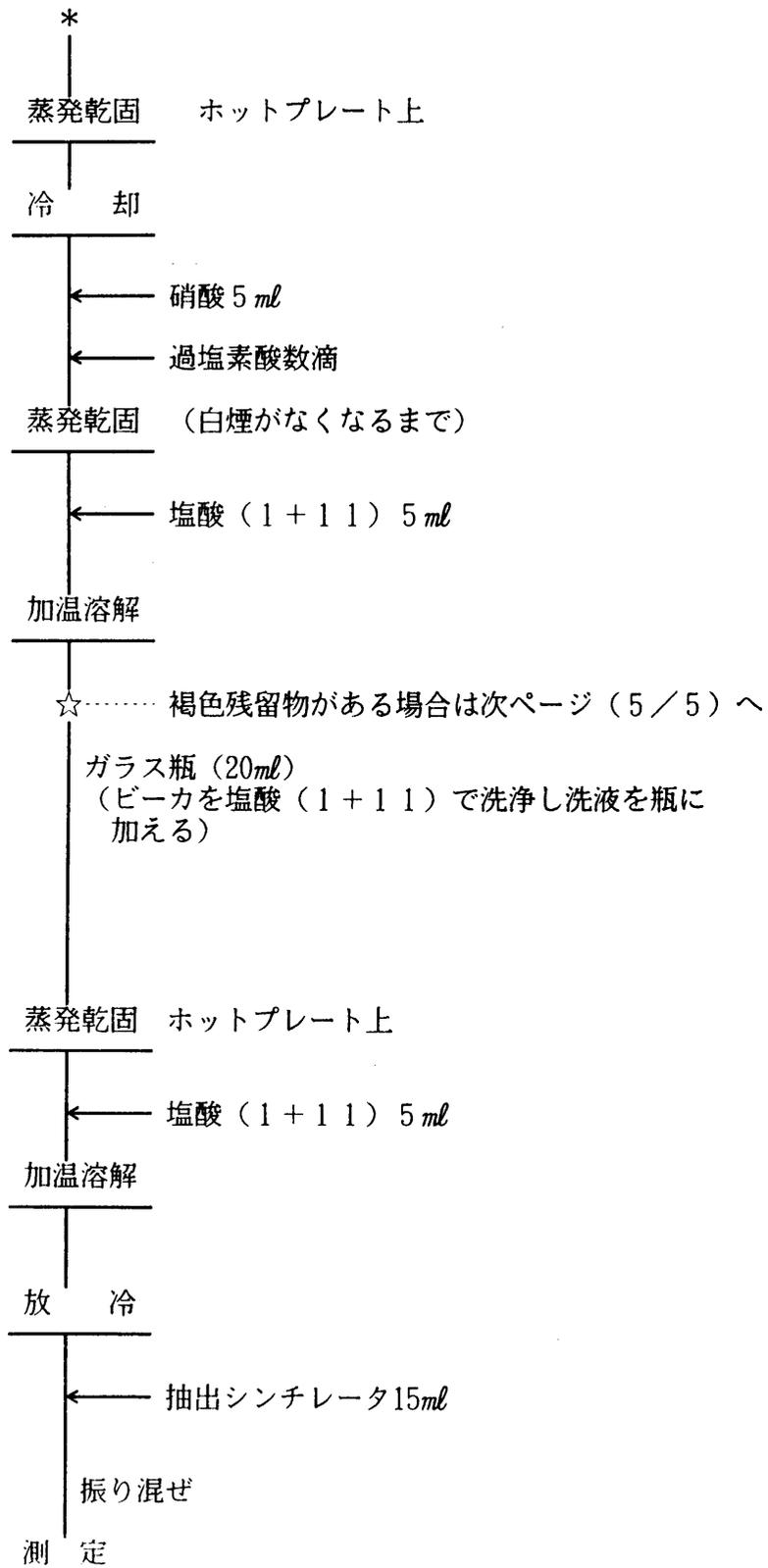


鉄・アルミニウム・ウランの除去

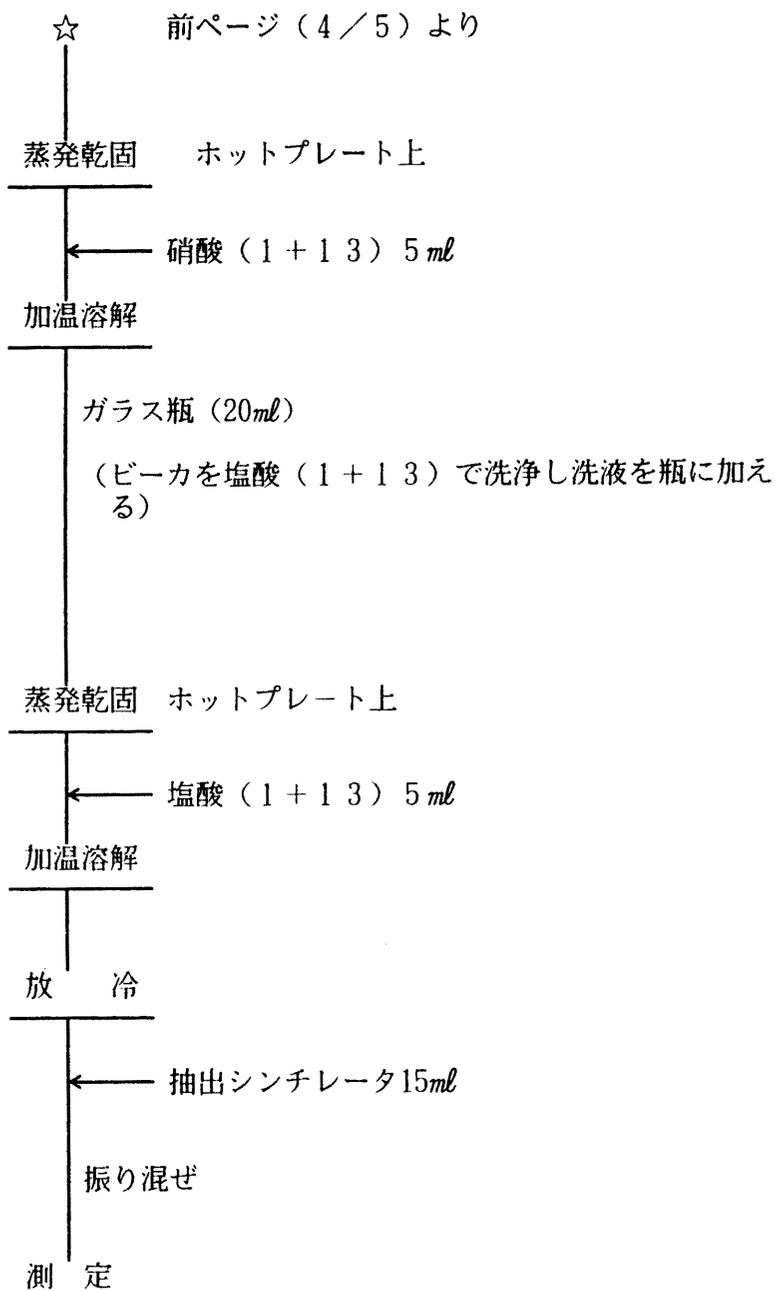


\* (2ページ前(1/5)より)





褐色残留物がある場合



1.3.3 標準線源の作製 (2.3 および2.4 参照)

1.1.3 に同じ。

1.3.4 放射能測定 (2.4 参照)

1.1.4 に同じ。

1.3.5 計算

〔1〕 海底堆積物中のプルトニウムの濃度

1.3.4 で得た放射能の測定結果から次式に従ってプルトニウムの濃度を計算する。

$$A' \pm \Delta' = \frac{\left[ \left( \frac{N_s}{T_s} - \frac{N_b}{T_b} \right) \pm \left( \frac{N_s}{T_s^2} + \frac{N_b}{T_b^2} \right)^{\frac{1}{2}} \right]}{60} \times \frac{10^3}{W} \times \frac{1}{0.75} \quad *33$$

A' : 海底堆積物中のプルトニウム濃度(Bq/kg乾土)

Δ' : 同上誤差

Ns : 試料の全計数値

Ts : 試料の測定時間 (単位:分)

Nb : バックグラウンドの計数値

Tb : バックグラウンドの測定時間 (単位:分)

W : 分析供試量 (g)

〔2〕 減衰補正

1.1.5 〔2〕 に同じ。

---

(\*33) 平均回収率を75%とした場合。解説Ⅲ-6 参照。

## 第2章 液体シンチレータによる $\alpha$ 線測定法

### 2.1 測定機器及び測定法の概要

〔液体シンチレーション測定装置〕

現在、市販されている液体シンチレーション測定装置(LSC)には多くの種類があり、ほとんどのものは $^3\text{H}$ と $^{14}\text{C}$ など特定の核種に重点を置いている。基本的な性能についてはあまり変りはなく、機能的には一層自動化の傾向にあつてクエンチング自動補正機構など便利にはなっているが、反面、応用性・拡張性に欠けるものもある。しかし、多くの機種においては手動による機器の調整および計測が可能であり、本分析法の対象とする核種<sup>\*1</sup>( $\alpha$ 核種およびエネルギーが数100 keV以上の $\beta$ 核種)に十分適用できる。

〔測定法の概要〕

液体シンチレーション測定法においては、クエンチング効果の補正が最も重要な問題である。クエンチング効果の補正を含めて、効率を求めるためのいくつかの方法<sup>\*2</sup>があるが、多試料の測定、微弱な放射能、操作の自動化などの点を考慮すると、環境試料の分析に外部標準チャンネル比法(ESCR法)が最も適した方法であり、市販の多くの機種はこの方法を適用している。

外部標準チャンネル比法については、II.3.4、II.3.5.1、III.2.4、およびII.3.5を参照されたい。

またプルトニウムなどの $\alpha$ 核種の測定において、クエンチング効果は計数効率(ほぼ100%)ほとんど影響しないが、 $\alpha$ ピーク・シフトを生じる。バックグラウンド計数を減少させるためピーク領域をSCA(またはMCA)にて設定して測定するが、そのさいクエンチング効果によるピーク・シフトが問題となる。そのため外部標準チャンネル比法を適用してピーク領域の設定を行う。

---

(\*1) 核データについては表I-2(P.3)参照。

(\*2) II.3.5参照。

## 2.2 液体シンチレータ

Ⅱ. 3.2に同じ。

## 2.3 標準線源とバックグラウンド用試料

Ⅱ. 3.3に同じ。

### 2.3.1 クエンチング標準線源

Ⅱ. 3.3.1に同じ。

## 2.4 プルトニウム $\alpha$ 線の測定

液体シンチレーション測定装置を用いた $\alpha$ 線測定では、測定のFOMを高めるためピーク領域を設定しなければならないが、試料ごとのクエンチング効果によるピーク・シフトが問題となる。しかも、環境試料のような微弱放射能の場合には、スペクトル（試料及びバックグラウンドとも）をみて $\alpha$ ピーク領域を設定することは大変困難である。そこで以下に述べるようにESCR法を応用してピーク中心とFWHMよりピーク領域を決める方法を用いることにする。この方法の概略は次のとおりである。<sup>\*3</sup>

- 1) クエンチング補正曲線（外部 $\gamma$ 線源によるチャンネル比とピーク中心及びFWHMとの関係）を標準 $\alpha$ 線源を用いて作成する。
- 2) 試料及びバックグラウンド試料に対して外部 $\gamma$ 線をあててチャンネル比を求め、上記のクエンチング補正曲線よりピーク中心とFWHMを決定する。
- 3) ピーク領域を設定して、試料とバックグラウンド試料の計数率を求める。

なお、以下にはSCAを用いる場合について述べるが、MCAの場合もこれに準じて行うことができる。

---

( \* 3 ) 解説Ⅲ - 2 参照。

## 2.5 $\alpha$ 線クエンチング補正曲線の作成

- 1)  $\alpha$ 線標準線源<sup>\*4</sup>をLSC検出部に入れる。
- 2) 測定装置の分析用チャンネル(チャンネルAとする)の下限ディスクリミネータ(LLD)を500、上限ディスクリミネータ(ULD)を550に合わせる。  
ただし、ULDとLLDはフルスケール1000目盛とし、リニアで、かつ、両者は1対1の対応関係にあるものとする。
- 3) 増幅器ゲイン(あるいはHV)を加減して、チャンネルAの計数率がほぼ最大の値を示すように調節する。
- 4) 改めて、LLDを450、ULD(=LLD+W)を500に正確に設定し、計数値 $N_1$ を求め<sup>\*5</sup>る。
- 5) LLDを500、ULDを550に正確に設定し、計数値 $N_2$ を求め<sup>\*5</sup>る。
- 6) LLDを550、ULDを600に正確に設定し、計数値 $N_3$ を求め<sup>\*5</sup>る。
- 7)  $\alpha$ 線ピーク中心P及び半値幅FWHMは、ピーク形状をガウス関数と仮定して、次式により計算され<sup>\*6</sup>る。

$$P = D + \frac{W}{2} \left[ 1 - \ln \left( \frac{N_1}{N_3} \right) / \ln \left( \frac{N_2}{N_1 N_3} \right) \right]$$

$$FWHM = W \left\{ 5.55 / \ln \left( \frac{N_2}{N_1 N_3} \right) - 1 \right\}^{1/2}$$

ただし、Dは $N_2$ を求めるとき設定したLLD(上記の場合は $D=500$ )

$$W = ULD - LLD \text{ (上記の場合は } W = 50 \text{ )}^{\ast 5}$$

- 8) 外部標準 $\gamma$ 線源を検出部に送り込み、チャンネルB及びCを下記のように設定する。

$$\text{チャンネルB : LLD} = 20 \quad \text{ULD} = x$$

$$\text{チャンネルC : LLD} = x \quad \text{ULD} = \infty$$

上記の設定において、チャンネルCの計数値 $N_C$ とチャンネルBの計数値 $N_B$ の比

$R = N_C / N_B$ がほぼ1になるようにxを決める。

- (\*4) 標準線源としては $^{210}\text{Po}$ 、プルトニウム、 $^{241}\text{Am}$ などを用いることができる。  
なお、ここでいう標準線源はピーク中心とFWHMを決めるために用いるものであり、その放射能が正確に分っている必要はない。
- (\*5) Wの値は $\alpha$ ピークのFWHMのほぼ半分、そして、 $N_1 < N_2 < N_3$ なる関係で設定するとよい。
- (\*6) 解説III-2参照。

9) 改めて、Rの値を正確に求める。そのさい、標準線源の放射能が数10Bq以上のときは $\alpha$ ピークの寄与を差し引く必要がある。

10) クエンチング標準線源の1つを検出器に入れる。<sup>\*7</sup>

11) 上記の4)、5)、6)、7)に準じて、及びFWHMを求める。

そのさい、 $N_1 < N_2 > N_3$ の関係が成立しないときは、LLDおよびULD (LLD + W)を変えて行う。

12) 外部標準 $\gamma$ 線源を検出部に送り込み、Rを求める。

13) すべてのクエンチング標準線源について、上記の10)、11)、12)を行い、図1のようにP vs. RおよびFWHM vs. Rの関係を図または数式で表わす。

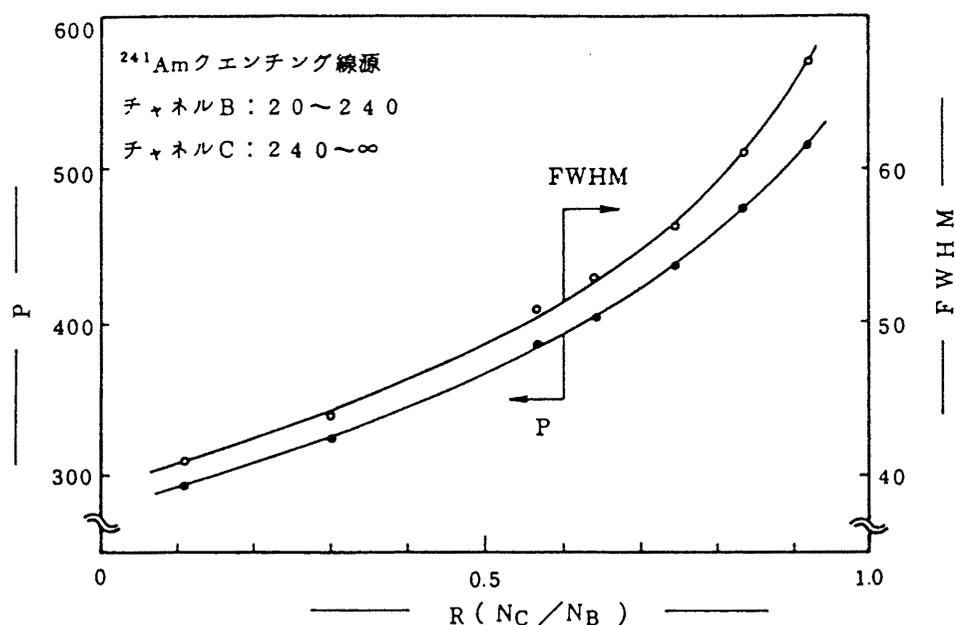


図-1 ESCR法によるR値とピーク中心P及び半値幅FWHMとの関係(例)

(\*7) クエンチング線源を用いる代わりに、1個の線源を用いて、増幅器のゲインやHVを変えて行ってもよい。

## 2.6 プルトニウム( $^{238}\text{Pu}$ + $^{239}\text{Pu}$ + $^{240}\text{Pu}$ )の測定

環境試料中のプルトニウムとして、 $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$ を測定の対象とする。しかし、液体シンチレーション測定法のエネルギー分解能はあまりよくないため、これら3核種を個別に定量することは不可能であり、本分析法では3核種の合計を測定する。

- 1) 測定試料をLSC検出部に入れる。
- 2) 外部標準 $\gamma$ 線源を検出部に送り込む。
- 3) チャンネルBおよびCのLLDとULDを前項(2.5の8)で決めた値に設定する。
- 4) チャンネルBおよびCの計数値( $N_B$ 、 $N_C$ )より $R = N_C / N_B$ を求め、前項で作成したクエンチング校正曲線よりPおよびFWHMを決定する。
- 5) 外部標準 $\gamma$ 線源をとり除き、チャンネルAのLLDとULDを後述の“LLDとULDの設定の仕方”に準じて設定する。
- 6)  $t_s$ 分間測定し、チャンネルAにおける計数率 $n_s$ (cpm)を求める。
- 7) 試料と同程度のクエンチング効果( $R$ の値がほぼ等しい)をもつバックグラウンド用試料を $t_{BG}$ 分間測定し、チャンネルAにおける計数値 $n_{BG}$ (cpm)を求める。<sup>\*8</sup>
- 8) ピーク領域を3FWHMとすると、 $\alpha$ 線計数効率ほぼ100%である。したがって、放射能A(Bq)およびその誤差 $\Delta A$ は次のとおりである。

$$A \pm \Delta A = (n_s - n_{BG}) / 60 \pm (n_s / t_s + n_{BG} / t_{BG})^{1/2} / 60$$

---

(\*8) 低レベル放射能測定において試料とバックグラウンドを交互に測定する場合、計数誤差を最小にする条件は $t_s = t_{BG}$ である。  
分析目標値の算出については解説4参照。

— LLDとULDの設定の仕方 —

$\alpha$ 線ピーク波高値Pと $\alpha$ 線エネルギーE ( MeV )の関係は比例関係にはないので、5 MeVから7 MeV の範囲において次のように近似する。

$$R(E) = 0.37E - 1.04$$

ここで、R(E)はE=5.5 MeVにおいて規準化された相対波高値である。

それゆえ、 $E_s$ なるエネルギーの $\alpha$ 線標準線源のピーク波高値を $P_s$ 、 $E_x$ なるエネルギーの $\alpha$ 線に対する波高値を $P_x$ とすると次の関係が成り立つ。

$$P_x = \frac{R(E_x)}{R(E_s)} \cdot P_s$$

今、プルトニウムの $\alpha$ 線エネルギーのうち最低のものを5.1 MeV、最高のものを5.5 MeVとする。FWHMによるピークの拡がり及び低波高側へのテーリングを考慮してSCAのLLDとULDを次のように決める。

$$LLD = R(5.1) \cdot P_s / R(E_s) - 1.6 \text{ FWHM}$$

$$ULD = R(5.5) \cdot P_s / R(E_s) + 1.4 \text{ FWHM}$$

一 般 解 說

## 解説1 液体シンチレーション測定法（測定機器および測定法の概要）

ここでは、主として環境放射能分析で対象となる核種のうちで液体シンチレーション測定法（チェレンコフ光測定法を含む）に適用できる核種<sup>\*1</sup>のルーチン測定法について述べる。液体シンチレーション測定に関する一般的な事項及び機器の操作などについては後に記す参考文献や機器に付属する操作マニュアルを参照されたい。

### 〔液体シンチレーション測定装置〕

現在市販されている液体シンチレーション測定装置（LSC）の多くは<sup>3</sup>Hや<sup>14</sup>Cなど、特定核種の測定に重点が置かれている。市販のLSCは基本的な性能に大きく変わるところがなく、クエンチング自動補正機構などの自動化の傾向が一層強まり、便利になっている。また、多くの機種では、手動による調整と計測が可能であり、本分析法で対象とする核種（ $\alpha$ 核種及びエネルギーが数100 keV以上の $\beta$ 核種）に十分適用できる。

解図-1に低バックグラウンド液体シンチレーション測定装置の構成の概略図を例示し、その装置の機能と特徴について述べる。

#### 1 サンプルチェンジャ及び恒温槽

低放射能測定の場合は必ずしもサンプルチェンジャや恒温槽を必要としないが、多試料の自動測定においては便利である。しかし、機械的な動作を伴うので故障の原因となる部分でもある。

検出部は室温型と恒温槽内に置かれた冷却型（およそ10℃以下）がある。

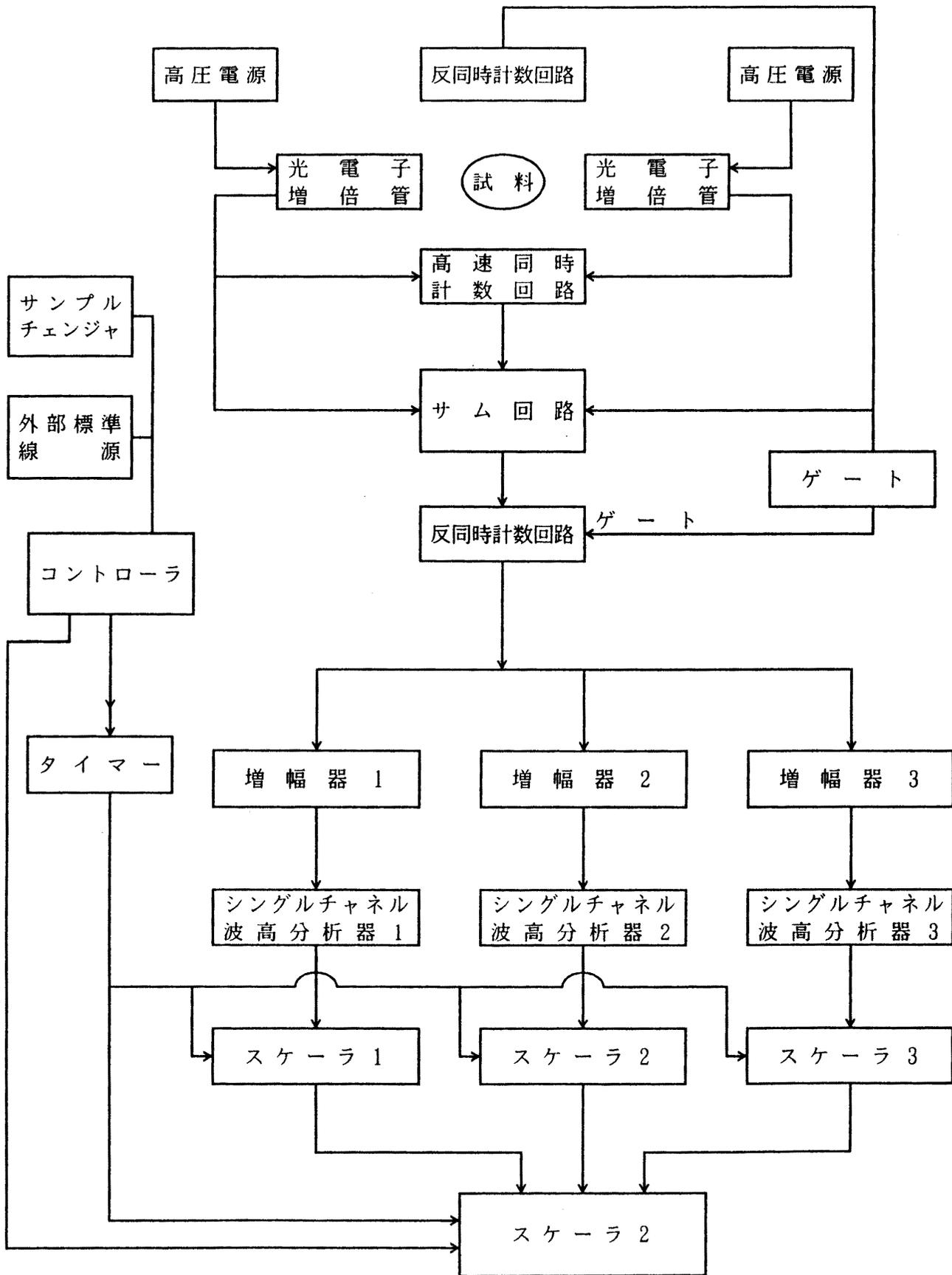
試料を一定温度にして安定な測定を行うことが主な目的である。

#### 2 光電子増倍管（Photo multiplier tube ; PMT）

高い量子効率（光子・光電子変換効率）を得るため、バイアルカリ（例えばSb-Rb-Csなど）光電面をもつものが多い。入射光窓材質としてはホウケイ酸ガラスや石英ガラスが用いられ、後者は短波長光に対して透過度がよいのでチェレンコフ光測定の場合には

---

（\*1） 核データについては表1-2(P3) 参照。



解図-1 低バックグラウンド液体シンチレーション測定装置の回路構成 (例)

有効である。通常の液体シンチレーション測定装置では試料とPMTが離れているので、入射光の全反射を少なくするため乱反射面の表面で、かつ、光電子の走行距離を一定にするため曲面となっているものが使われる。PMTは速い出力信号を必要とするため、10数段のダイノードをもつ高ゲインで、かつアノード出力パルスのライズタイムが短く（10ns以下）、微弱光測定のため暗電流の小さいものが望ましい。その他、安定な動作を必要とするので、温度特性や出力ドリフト（電流依存性など）が小さく、光電面の感度の均一性などが要求される。

### 3 同時計数回路およびサム回路

微弱光を検出するために2本のPMTを対向させて速い同時計数（高速同時計数回路；分解時間はおよそ20ns）によってPMT固有の熱雑音を除去している。2本のPMTの信号パルスはサム回路にてパルス波高が加算され、さらに高速同時計数回路からのゲート信号によって試料からの信号のみが増幅器に送られる。

### 4 シャへい、反同時計数検出器

低放射能測定の場合にはバックグラウンド計数率の大小が最も重要な要素の一つである。

検出器のシャへいとしては、鉛シャへいが主に使われる。解図-1の装置では、宇宙線成分（高エネルギー荷電粒子）を除去するため試料の周囲にプラスチックシンチレータよりなる反同時計数検出器をもっているが<sup>\*2</sup>、市販の液体シンチレーション測定装置はこれをもたないものが多い。

Figure of merit (FOM) として、(効率)<sup>2</sup>/バックグラウンド計数率なる関係が用いられるが、本分析法ではエネルギーの高いβ線核種が多く、効率は機種にはほとんど依存しないので、バックグラウンド計数率がFOMを決める主な要因となる。

### 5 波高分析

検出器からの信号は、複数の波高分析系（増幅器、シングルチャンネルアナライザーSCA及びスケーラ）に入力される。解図-1の例では3チャンネル波高分析器に相当し、

---

(\*2) このような装置で、原子核の励起レベルの寿命が検出器の分解時間（数10nsec）より短いβ-γ線放出核種（例えば<sup>60</sup>Co）を測定する際は、β崩壊に続くγ線がプラスチックシンチレータによって検出されると、反同時計数回路によりその信号は除去されて計数効率が減少する。  
計数効率の減少がバックグラウンド計数値の減少に比べ大きい場合には反同時計数回路を用いない方がよい（解説II-3参照）。

各チャンネルの増幅器ゲイン、SCAの下限ディスクリミネータ（LLD）と上限ディスクリミネータ（ULD）あるいはウインドウ（ $\Delta E$ ）は任意に独立に設定することができる。増幅器としては対数増幅器（波高値が対数変換される）のものもあるが、ここでは直線増幅器を用い、ゲインの可変範囲が広い（数100倍）ものとする。また、LLD、ULDあるいは $\Delta E$ は10回転ヘリポット（1000目盛）で調節でき、各ヘリポットの電圧レベルは相互に1対1の対応があるものとする。チャンネル数は外部標準チャンネル比用として2チャンネル、試料分析用として1チャンネル、計3チャンネル以上必要である。

PMTのアノード出力パルスまたは増幅器出力パルスを外部にとり出すアウトプットコネクタがあると便利ことが多い。最近の液体シンチレーション測定装置は高度に自動化されたものが多いので、本測定法のように多種類の核種および多種類の測定法に適用する場合、誤った使い方をしないとも限らない。これを避ける最良の方法は、パルスの波高分布をみることである。そのためにアナログパルスのアウトプットをマルチチャンネル波高分析器（MCA）につなげて波高分布を確認することが必要となる。とくに $\alpha$ 核種の分析においては、MCAを用いた液体シンチレーション $\alpha$ 線スペクトロメトリが有効である。

## 6 外部標準 $\gamma$ 線源

市販の多くの機種はクエンチング補正のための密封 $\gamma$ 線源を内蔵している。核種としては、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{133}\text{Ba}$ のうち1種類で、数100 KBqのものである。 $\gamma$ 線測定するときには、十分なしゃへい能力をもつ格納容器から試料の近くの一定位置に送られ、試料測定ときは再び格納容器に戻される。

## 7 データ出力、他

各チャンネルごとの計数値を表示する他、プリンタに試料番号、測定時間、チャンネル番号と計数値などを打ち出す。新しい機種ではマイクロコンピュータを内蔵して内部で各種の演算処理や自動計測のコントロールを行うものもある。

また、バックグラウンド自動減算機能、サンプル割込機構、マルチチャンネル分析器などを内蔵したものもある。

外部の小型コンピュータと連結してデータをオンラインで処理するには、入出力インターフェイス（RS-232C、GP-IBなど）を必要とする。しかし、液体シンチレーション測定ではデータ数はあまり多くないので、プリンタに打ち出されたデータを用いて解析する方法で十分である。

### 〔試料容器〕

一般の液体シンチレーション測定では容積が約20mlの容器が多く使われるが、5 mlの容器や環境トリチウム測定用の 100mlの容器もある。測定試料の量は、最終の化学処理において得られる溶液の種類や量によって決まるが、バックグラウンド計数率および測定試料の廃棄処分（または保存）の点からみると少ない方がよい。材質は低カリガラス、石英ガラス、ポリエチレン、テフロンなどで、光（とくに短波長）の透過性とその均一性、測定試料の長期間にわたる保存性、バックグラウンド計数率、機械的強度、耐薬品性などを考慮する必要がある。例えば、ポリエチレン製容器はバックグラウンド計数率は小さいがシンチレータ溶媒に侵されやすく、また容器壁や蓋の隙間を通して溶媒が揮発することがあるので長期間の保存には適当ではない。

### 〔測定法の概要〕

液体シンチレーション測定法においては、クエンチング効果の補正が最も重要な問題である。クエンチング効果の補正を含めて、効率を求めるためのいくつかの方法<sup>\*3</sup>があるが、多試料の測定、微弱な放射能、操作の自動化などの点を考慮すると、環境試料の分析には外部標準チャンネル比法（E S C R法）がもっとも適した方法であり、市販の多くの機種はこの方法を採用している。

外部標準チャンネル比法については、II. 3. 4、II. 3. 5. 1、III. 2. 4およびII. 3. 5を参照されたい。

また $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y} + ^{89}\text{Sr}$ のような複合核種の試料については、連立方程式による方法や、<sup>\*4</sup>娘核種の生成の時間的關係を用いる方法などがある。

高エネルギーβ線核種（ $^{90}\text{Y}$ 、 $^{89}\text{Sr}$ 、 $^{144}\text{Pr}$ ）については、上記の方法の他に水溶液などを直接に測定試料とするチェレンコフ光測定法が有効である。これは出力信号が微弱（液体シンチレータで $^3\text{H}$ を測る程度）で計数効率も液体シンチレーション測定にくらべて低いが、化学クエンチングの影響がないこと、試料調製が容易なこと、試料の再使用ができること等の長所がある。チェレンコフ光測定についてはI. 3. 5およびI. 3. 1を参照されたい。

---

（\*3）II. 3. 5 参照。

（\*4）解説I-7 参照。

プルトニウムなどの $\alpha$ 核種の測定において、クエンチング効果は計数効率（ほぼ100%）にはほとんど影響しないが、 $\alpha$ ピーク・シフトを生じる。バックグラウンド計数を減少させるためピーク領域をSCA（またはMCA）にて設定して測定するが、そのさい、クエンチング効果によるピーク・シフトが問題となる。そのため外部標準チャンネル比法を適用してピーク領域の設定を行う。

## 解説 2 コンピュータによるデータ処理

ルーチン測定には、データの信頼性や迅速処理の点からコンピュータの使用が望まれる。自動測定のためには、測定装置とコンピュータが直結（オンライン）したものがよい。そのためには測定装置等を改造しなければならない。ここでは、従来のデータ出力方式（プリンタ等）で得られたデータをコンピュータのキーボードから入力し、演算処理する方法を用いる。

データ処理について、BASICインタープリンタによるプログラムの一例を示す。このプログラムは、NEC社製PC-9800シリーズ用に書かれたものであり、I/O機器としてはカラーCRTおよびプリンタ（漢字は用いていない）が必要である。

プログラムの概要を述べる。

—ファイル名—	—内 容—
L S C. B A S	自動スタートにより、起動と同時に以下のプログラム・メニューが示される。
A C T. B A S	$^{60}\text{Co}$ , $^{90}\text{Sr}$ — $^{90}\text{Y}$ , $^{89}\text{Sr}$ と $^{90}\text{Sr}$ (チェレンコフ測定)、 $^{95}\text{Nb}$ — $^{95}\text{Zr}$ , $^{131}\text{I}$ , $^{144}\text{Ce}$ — $^{144}\text{Pr}$ およびPuの放射能の算出を行う。なお、計数率としては、1回測定または多数回測定のどちらかのデータを用いることができる。
E S C R. B A S	E S C R曲線（4次以下の多項式）の作成および作成したE S C R曲線より計数効率の算出を行う。
A B S. B A S	ディスクリミネータ・レベルを0に補外する方法、あるいは効率トレーサー法による $\beta$ 線放射能の絶対値を求める。
A L P H A. B A S	$\alpha$ 線スペクトルのピーク中心チャンネルおよび半値幅を3点計数法により求める。 ピーク中心チャンネルおよびFWHMに対するE S C R曲線の作成。
L I M I T. B A S	検出限界放射能の算出プログラム。
L S F. B A S	一般的な多のデータを多項式（5次以下）にフィッティングするプログラム

なお、このプログラムは(財)日本分析センターにおいて8インチあるいは5インチ（2DD、2HD）ディスクで入手することができる。

### 解説 3 計数値の統計処理

測定装置の安定性や雑音パルスの混入を考慮して、微弱放射能の長時間測定には次のように計数値の統計処理を行うことが望ましい。すなわち、試料の予想される放射能に応じて測定時間を設定するさい、長時間一回測定よりも繰り返し多数回測定（ $t$ 分× $J$ 回）の方が良い。

- 1) サンプルチェンジャを動かして測定試料を検出部に送り込む。  $t_s$ 分測定してAチャンネルにおける計数率  $n_{si}$  (cpm) を  $i = J_s$  回求める。
- 2) サンプルチェンジャを動かしてバックグラウンド用試料を検出部に入れ、  $t_B$ 分測定してAチャンネルにおける計数率  $n_{Bgi}$  (cpm) を  $i = J_B$  回求める。
- 3) 以上の計数データが全て得られたならば次のようなデータ処理を行う。

$$\text{平均計数率} \quad \bar{n}_s = \frac{1}{J_s} \sum_i n_{si}, \quad \bar{n}_{BG} = \frac{1}{J_B} \sum_i n_{Bgi}$$

$$\text{同上標準偏差} \quad \sigma_s = \sqrt{\bar{n}_s / t_s} \quad \sigma_{BG} = \sqrt{\bar{n}_{BG} / t_{BG}}$$

$$\text{異常値の棄却} \quad n_{si} > \bar{n}_s + 3\sigma_s \text{ または } n_{si} < \bar{n}_s - 3\sigma_s$$

$$n_{Bgi} > \bar{n}_{BG} + 3\sigma_{BG} \text{ または } n_{Bgi} < \bar{n}_{BG} - 3\sigma_{BG}$$

上記の  $n_{si}$ 、 $n_{Bgi}$  は異常値として以降の計算より除き、改めて  $\bar{n}_s$

および  $\bar{n}_{BG}$  を計算する。

- 4) 正味計数率  $n$  (cpm) およびその標準偏差  $\sigma$  は次のようにして計算される。

$$n = \bar{n}_s - \bar{n}_{BG}$$

$$\sigma = \sqrt{\frac{\bar{n}_s}{k_s t_s} + \frac{\bar{n}_{BG}}{k_{BG} t_{BG}}}$$

ただし、 $k_s$ 、 $k_{BG}$  は棄却検定後の試料およびバックグラウンド測定データ数である。

## 解説 4 分析目標値の算出

分析目標値は分析供試量、測定時間、バックグラウンド計数率などによって決まる。

検出する限界の計数率  $n_{DL}$  (cpm) は、正味計数率に対する計数誤差  $\sigma$  の  $K$  倍であるとする。  
すなわち、

$$n_{DL} = K \sigma \quad (1)$$

正味計数率は全計数率  $n_s$  よりバックグラウンド計数率  $n_b$  を引いた値であるから、 $n_{DL}$  及び  $\sigma$  は次のように表わされる。

$$n_{DL} = n_s - n_b, \quad \sigma^2 = (n_s / t_s) + (n_b / t_b) \quad (2)$$

上式を書き直すと、

$$\sigma^2 = \frac{n_{DL}}{t_s} + n_b \left( \frac{1}{t_s} + \frac{1}{t_b} \right)$$

これを(1)式に代入すると次の2次方程式が得られる。

$$n_{DL}^2 - \frac{K^2}{t_s} n_{DL} - K^2 n_b \left( \frac{1}{t_s} + \frac{1}{t_b} \right) = 0 \quad (3)$$

これを  $n_{DL}$  について解くと次のようになる。

$$n_{DL} = \frac{K}{2} \left\{ \frac{K}{t_s} + \sqrt{\left( \frac{K}{t_s} \right)^2 + 4 n_b \left( \frac{1}{t_s} + \frac{1}{t_b} \right)} \right\} \quad (4)$$

ただし、 $t_s$ 、 $t_b$  はそれぞれ試料とバックグラウンドの測定時間 (分) である。  
従って分析目標値  $A_{DL}$  (Bq) は次式で求められる。

$$A_{DL} = \frac{n_{DL}}{60 \varepsilon Y} \times 10^4 \quad \text{Bq} \quad (5)$$

ただし、 $\varepsilon$  は計数効率 (%)、 $Y$  は回収率 (%) である。

# I の 解 説

## 解説 I - 1 放射性ストロンチウム及び放射性セリウム分析の実例

本分析法を用いて海水、海産生物、海底堆積物等の環境試料を各分析機関で分析した。

なお、すべての試料に分析対象放射性核種の標準溶液を添加し、分析した。

### 1. 試料の調製

用いた試料は次のとおりである。

1.1 海水 : 千葉県勝浦海岸より採水。

#### 1.2 灰試料

##### 1.2.1 海産生物

(1) シロサケ : シロサケ（全体）を105℃で乾燥後、450℃で灰化し、生じた灰を粉碎後、42メッシュのふるいでふるい分け均一に混合した。

(2) サワラ : サワラ（筋肉）を105℃で乾燥後、450℃で灰化し、生じた灰を粉碎後、42メッシュのふるいでふるい分け均一に混合した。

(3) 海藻 : ワカメ、ホンダワラ等の海藻を105℃で乾燥、灰化後100メッシュのふるいでふるい分け均一に混合した。

##### 1.2.2 野菜

(1) ホウレン草 : 105℃で乾燥後、450℃で灰化し、生じた灰を粉碎後、42メッシュのふるいでふるい分け均一に混合した。

1.2.3 ドライミルク : 450℃で灰化し、生じた灰を粉碎後、42メッシュのふるいでふるい分けした。

1.3 海底堆積物 : 450℃に加熱して有機物を分解したのち、42メッシュのふるいでふるい分け均一に混合した。

上記の試料から分析供試量を分取し、対象とする放射能標準溶液を添加した。

## 2. 実施機関

- 動力炉・核燃料開発事業団 (A)
- 茨城県公害技術センター (B)
- (財)日本分析センター (C)

## 3. 結果

結果を解表 I - 1 に示す。

〔参考〕

本報告書の分析法作成過程においては幾つかの検討が行われたが、解表 I - 2 は第 1 次分析法原案についての分析結果とそれに対する改良点を示したものである。

解表 I - 1 分 析 結 果

対象核種	試 料	添 加 放 射 能 (Bq)		分 析 結 果 (Bq)		備 考	分析機関
		<sup>89</sup> Sr	<sup>90</sup> Sr	<sup>89</sup> Sr	<sup>90</sup> Sr		
<sup>89</sup> Sr および	海 水	2.89	17.4	4.30 ± 0.43	19.0 ± 0.2	シュウ酸塩法	A
		2.89	17.4	3.63 ± 0.38	16.7 ± 0.2	シュウ酸塩法	A
		2.89	17.4	2.10 ± 0.54	18.1 ± 0.3	シュウ酸塩法	A
		2.20	5.00	2.49 ± 0.11	4.37 ± 0.11	イオン交換法	C
		2.20	5.00	2.15 ± 0.09	4.37 ± 0.09	イオン交換法	C
<sup>89</sup> Sr	海産生物 (灰)	2.89	17.4	2.26 ± 0.13	16.7 ± 0.1	シュウ酸塩法	A
		2.89	17.4	3.14 ± 0.15	16.3 ± 0.1	シュウ酸塩法	A
		2.89	17.4	3.03 ± 0.16	17.6 ± 0.1	シュウ酸塩法	A
		2.20	5.00	2.42 ± 0.09	4.48 ± 0.09	イオン交換法	C
		2.20	5.00	2.45 ± 0.09	4.33 ± 0.09	イオン交換法	C

解表 I - 1 分 析 結 果

対象核種	試 料	添 加 放 射 能 (Bq)		分 析 結 果 (Bq)		備 考	分析機関
<sup>90</sup> Sr	ホウレン草	—	17.8	—	23.5 ± 0.1	<sup>89</sup> Sr無添加 シュウ酸塩法	A
		—	17.8	—	21.3 ± 0.1	<sup>89</sup> Sr無添加 シュウ酸塩法	A
		—	17.8	—	22.2 ± 0.1	<sup>89</sup> Sr無添加 シュウ酸塩法	A
および <sup>89</sup> Sr	海底堆積物	3.58	17.3	3.57 ± 0.09	16.4 ± 0.1	シュウ酸塩法	A
		3.58	17.3	3.78 ± 0.08	17.0 ± 0.1	シュウ酸塩法	A
		3.58	17.3	3.52 ± 0.09	16.8 ± 0.1	シュウ酸塩法	A
		2.20	5.00	1.88 ± 0.10	3.85 ± 0.10	イオン交換法	C
		2.20	5.00	2.25 ± 0.11	4.26 ± 0.10	イオン交換法	C
<sup>90</sup> Sr	ドライミルク	17.8		18.2 ± 0.1			A
		17.8		18.3 ± 0.1			A
<sup>144</sup> Ce	海水	6.68		7.08 ± 0.1			C
	海産生物(灰)	6.68		6.67 ± 0.1			C
	海底堆積物	6.68		6.50 ± 0.1			C

解表 I - 2 第 1 次分析法原案の分析結果とその改良点

対象核種	試料	添加放射能 (Bq)	分析法原案による 分析結果 (Bq)	改良点	分析機関
$^{90}\text{Sr}$	ドライミルク	25.6	$22.8 \pm 0.2$	添加値に対して結果が低目に出ている。これは回収されたイットリウム中にストロンチウム担体が混入したため、化学回収率補正が正確に行われなかったことによるものである。本文1.2.C. 2(3)中塩酸(1+11)による洗浄操作を加えることとした。	B
		25.6	$21.6 \pm 0.2$		B
		25.6	$22.6 \pm 0.2$		B

## 解説 I - 2 放射性ストロンチウムの分析法の選択

低バックグラウンド液体シンチレーション測定装置を用いた $^{89}\text{Sr}$ 及び $^{90}\text{Sr}$ の測定には、シンチレーション測定とチェレンコフ光測定を組み合わせることにより次表に示すいくつかの方法が考えられる。また、単チャンネル測定ばかりでなく、多チャンネル測定を行うことにより、さらに多くのバリエーションが考えられる。本分析法は、このうちチェレンコフ光測定を利用したA法及びE法（いずれも単チャンネル測定）を採用した。

A法： $^{89}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) が混在する試料について、 $^{90}\text{Y}$ をスカベンジした直後にチェレンコフ光を測定（主として $^{89}\text{Sr}$ が測定される）する。さらにt日後（2週間以上が望ましい）に再びチェレンコフ光を測定（ $^{89}\text{Sr}$ と $^{90}\text{Y}$ が測定される）する。両者の計数率から $^{89}\text{Sr}$ 及び $^{90}\text{Sr}$ の放射能を求める。

E法：平衡状態にある $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) を含む牛乳等の灰試料から溶媒抽出法により $^{90}\text{Y}$ をミルキングし、チェレンコフ光を測定する。得られた計数率から放射能を求める。

チェレンコフ光は、おもに液体シンチレーション測定における $^3\text{H}$ 測定領域で測定され、その発光に要する荷電粒子のエネルギーはしきい値が存在する。たとえば、水（屈折率=1.33）が媒体の場合、0.26MeV以下の $\beta$ 線では発光しない。

したがって、 $\beta$ 線の最大エネルギーが0.55MeV（平均エネルギー約0.2MeV）の $^{90}\text{Sr}$ の計数効率是非常に小さく、 $^{90}\text{Sr}$ を弁別した測定チャンネルで $^{89}\text{Sr}$ （ $\beta$ 線最大エネルギー1.46MeV）及び $^{90}\text{Y}$ （ $\beta$ 線最大エネルギー2.27MeV）を測定することにより放射性ストロンチウムを定量することができる。

解表 I - 3 液体シンチレーション測定装置を用いた放射性ストロンチウムの分析

対象核種	方法	前処理・化学分離	測定	特徴	
				長所	短所
$^{88}\text{Sr}$ +	A	イオン交換法 — Srフラクション → $^{90}\text{Y}$ スカベンジ シュウ酸塩法 → Sr水溶液 (0.3 ~ 0.5M HCl)	$^{88}\text{Sr}$ : チェレンコフ 生成 $^{90}\text{Y}$ + $^{88}\text{Sr}$ : チェレンコフ ( $^{90}\text{Sr}$ をカット)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Sr水溶液のまま測定するので、操作手数省ける</li> <li>• 再測定可能</li> <li>• ケンダグの影響少ない</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• シンチレーションに比べ計数効率低い</li> <li>• <math>^{90}\text{Y}</math> の生成に時間要す</li> </ul>
	$^{90}\text{Sr}$ ( $^{90}\text{Y}$ )	B	イオン交換法 — Srフラクション → $^{90}\text{Y}$ スカベンジ シュウ酸塩法 → Sr水溶液 → 測定 → シンチレータ → 測定	$^{88}\text{Sr}$ : チェレンコフ $^{88}\text{Sr}$ : シンチレーション + $^{90}\text{Sr}$ (一部 $^{90}\text{Y}$ )	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 計数効率が若干高い</li> <li>• <math>^{90}\text{Y}</math> の生成を待たなくてもよい</li> </ul>
混在	C	イオン交換法 — Srフラクション → $^{90}\text{Y}$ スカベンジ シュウ酸塩法 → Sr水溶液 → シンチレータ (SrをDNP + シンチレータで抽出も可)	$^{88}\text{Sr}$ + $^{90}\text{Sr}$ : シンチレーション $^{88}\text{Sr}$ + $^{90}\text{Sr}$ + $^{90}\text{Y}$ : シンチレーション	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 計数効率高い</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 3核種の計数効率必要</li> <li>• 計算誤差大きい</li> <li>• 再測定できない</li> </ul>
$^{90}\text{Sr}$ ( $^{90}\text{Y}$ ) の み	D	イオン交換法 — Srフラクション → Sr水溶液 シュウ酸塩法 → $^{90}\text{Y}$ 生成	$^{90}\text{Y}$ : チェレンコフ	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Aに同じ</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Aに同じ (但し、計数効率は若干高い)</li> </ul>
	E	イオン交換法 — Srフラクション → $^{90}\text{Y}$ ミルキング シュウ酸塩法 — (Y(OH) <sub>3</sub> 又は HDEHP抽出) → Y水溶液 溶媒抽出法 (0.3 ~ 0.5M HCl)	$^{90}\text{Y}$ : チェレンコフ	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Aに同じ</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Dに同じ</li> </ul>
	F	イオン交換法 — Srフラクション → $^{90}\text{Y}$ ミルキング シュウ酸塩法 — (Y(OH) <sub>3</sub> 又は HDEHP抽出) → シンチレータ 溶媒抽出法	$^{90}\text{Y}$ : シンチレーション	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 計数効率高い</li> <li>• 比較的操作短い</li> <li>• どの分離方法にも適用できる</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Bに同じ</li> </ul>
	G	イオン交換法 — Srフラクション → $^{90}\text{Y}$ スカベンジ シュウ酸塩法 → シンチレータ	$^{90}\text{Sr}$ : シンチレーション	<ul style="list-style-type: none"> <li>• <math>^{90}\text{Y}</math> の生成を持たなくてもよい</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 迅速に測定する必要あり</li> <li>• 再測定できない</li> </ul>

### 解説 I - 3 カルシウムを多量に含む試料に対する

#### $^{89}\text{Sr}$ 及び $^{90}\text{Sr}$ の標準線源

海底堆積物や海産生物などには多量のカルシウムが含まれている。 $^{89}\text{Sr}$  及び  $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) のチェレンコフ光測定において、カルシウムが及ぼす影響について検討した結果を解説 I - 4 に示すが、ほとんど影響しないことがわかる。

本分析法では、以上の結果から測定試料に含まれるカルシウムの影響を無視したが、骨試料のように特に多量のカルシウムを含む試料に対する標準線源を作成する場合には、次に示す手順に従うとよい。

#### [1] $^{90}\text{Sr}$ ( $^{90}\text{Y}$ ) 標準線源の作製

- (1) ストロンチウム担体溶液 ( $10\text{ mg Sr}^{2+}/\text{ml}$ )  $5\text{ ml}$  とイットリウム担体溶液 ( $1\text{ mg Y}^{3+}/\text{ml}$ )  $10\text{ ml}$  を 2~3 個の  $100\text{ ml}$  メスフラスコに取る。
- (2) 測定用試料に含まれるカルシウムに見あう量の炭酸カルシウムを  $500\text{ ml}$  コニカルビーカーに取る。
- (3) 炭酸カルシウムと当量の塩酸を加えて溶解した後、加熱して炭酸ガスを追い出す。全量を(1)のメスフラスコに合わせる。

カルシウム量 (g)	炭酸カルシウム量 (g)	塩	酸
6	1.5	6 M 塩酸	$50\text{ ml}$
8	2.0	8 M 塩酸	$50\text{ ml}$
10	2.5	10 M 塩酸	$50\text{ ml}$
12	3.0	12 M 塩酸	$50\text{ ml}$

- (4)  $^{90}\text{Sr}$  標準溶液 (2 週間以上放置したもの) から、およそ  $10\text{ Bq}$  を正確に分取してメスフラスコに加え、塩酸 (1 + 11) で標線に合わせる。
- (5) 全量をポリエチレン (またはテフロン) 瓶 ( $100\text{ ml}$ ) に移す。
- (6) バックグラウンド測定用試料を上記の(1)~(5)に準じて作製する。

#### [2] $^{89}\text{Sr}$ 標準線源の作製

- (1) [1] の(1)~(3)に同じ。
- (2)  $^{89}\text{Sr}$  標準溶液から、およそ  $10\text{ Bq}$  を正確に分取してメスフラスコに加え、塩酸 (1 + 11) で標線に合わせる。
- (3) [1] の(5)、(6)に同じ。

解説 I - 4  $^{89}\text{Sr}$  及び  $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) のチェレンコフ光測定における  
カルシウムの影響

解表 I - 4  $^{89}\text{Sr}$  と  $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) の計数効率 (%) <sup>(1)</sup>

(2) 溶媒 No.	カルシウム量 (g)	ディスクリミネータ:100~ $\infty$		ディスクリミネータ:150~ $\infty$	
		$^{90}\text{Sr}$ (3)	$^{89}\text{Sr}$ (4)	$^{90}\text{Sr}$ (3)	$^{89}\text{Sr}$ (4)
1	0.0	53.1	23.2	45.4	16.8
2	1.0	52.0	-	44.7	-
3	2.0	53.0	23.8	45.4	17.3
4	4.0	51.3	23.9	43.5	17.1
5	6.0	51.8	-	44.0	-
6	8.0	51.5	23.7	43.4	16.7

(1) 使用機器：アロカ社製 LSC-LB1

測定条件：Hチャンネル ゲイン0.3、ディスクリミネータ L- $\infty$

テフロンバイアル (100ml)

(2) 液性 (全量 100ml)

No.1: (Sr50mg + Y10mg) + 0.1M HCl

No.2: (Sr50mg + Y10mg) + (CaCO<sub>3</sub> 2.5g) + 1M HCl 150ml + 1M HCl

No.3: (Sr50mg + Y10mg) + (CaCO<sub>3</sub> 5.0g) + 2M HCl 150ml + 1M HCl

No.4: (Sr50mg + Y10mg) + (CaCO<sub>3</sub> 10.0g) + 4M HCl 150ml + 1M HCl

No.5: (Sr50mg + Y10mg) + (CaCO<sub>3</sub> 15.0g) + 6M HCl 150ml + 1M HCl

No.6: (Sr50mg + Y10mg) + (CaCO<sub>3</sub> 20.0g) + 8M HCl 150ml + 1M HCl

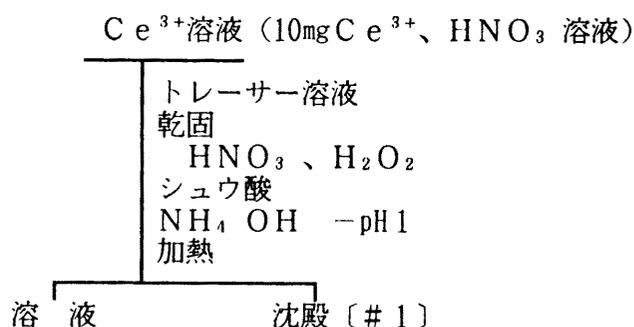
(3)  $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) : 10700 dpm

(4)  $^{89}\text{Sr}$  : 68600 dpm

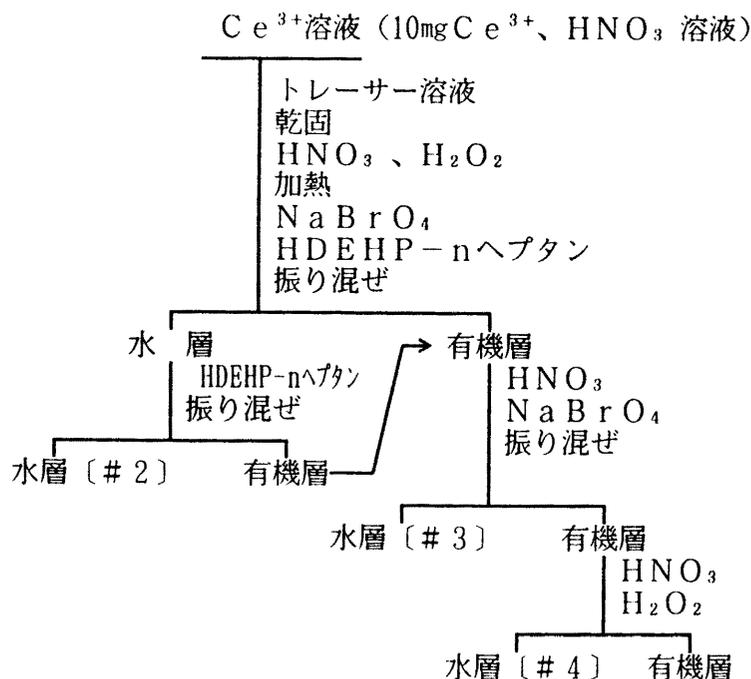
解説 I - 5 放射性セリウムの分析における回収率と除染係数について

1. シュウ酸塩沈殿操作（解図 I - 1）及び溶媒抽出-逆抽出操作（解図 I - 2）における  $^{144}\text{Ce}$  の回収率及び除染係数を求めた。

使用したトレーサーは、 $^{144}\text{Ce}$ 、 $^{59}\text{Fe}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{65}\text{Zn}$ 、 $^{106}\text{Ru}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{85}\text{Sr}$  である。



解図 I - 1 シュウ酸塩沈殿操作（実験1）



解図 I - 2 溶媒抽出-逆抽出操作（実験2）

結果：結果を解表 I - 5 に示す。表中の番号（#）は図に対応している。

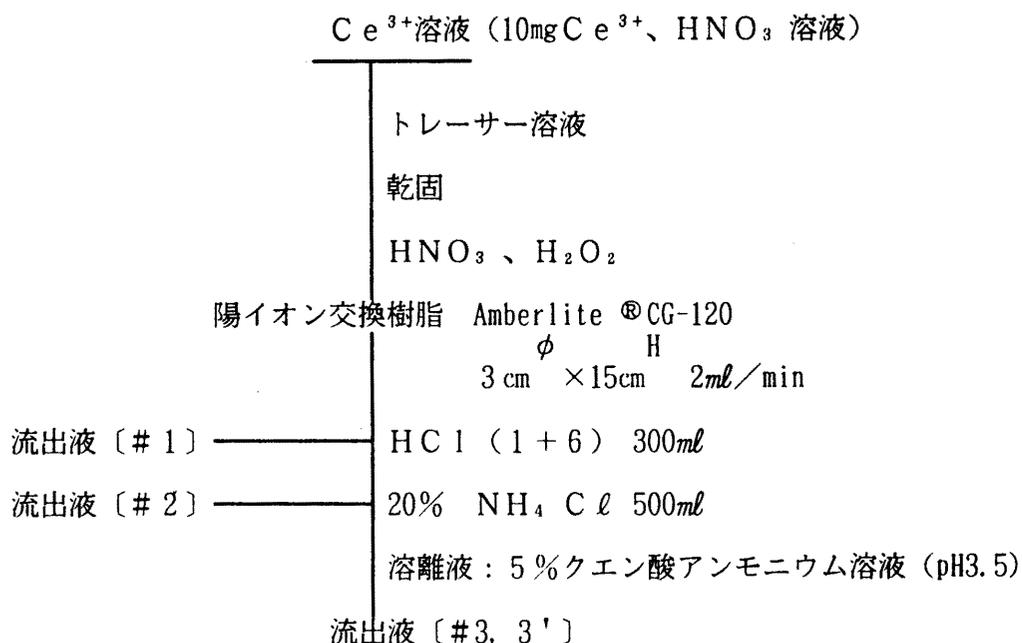
実験 1 及び 2 の操作を通して測定試料を調製することにより、 $^{59}\text{Fe}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{65}\text{Zn}$ 、 $^{106}\text{Ru}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  の除染係数は満足出来る値を得られるものと思われる。 $^{54}\text{Mn}$  の除染係数は小さいが、 $^{144}\text{Ce}$  測定条件下における  $^{54}\text{Mn}$  の計数効率は低いので測定結果には影響しない。

解表 I - 5 回収率と除染係数

	$^{59}\text{Fe}$	$^{60}\text{Co}$	$^{54}\text{Mn}$	$^{65}\text{Zn}$	$^{106}\text{Ru}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{85}\text{Sr}$	$^{144}\text{Ce}$
# 1 沈殿中のトレーサ(%)	0.2	0.6	0.4	1.2	0.5	0.3	16	100
# 2 水層中のトレーサ(%)	0	97	8	97	95	97	—	0
# 3 水層中のトレーサ(%)	0	3	5	3	0.4	3	—	0.1
# 4 逆抽出された 水溶液中の $^{144}\text{Ce}$ (%)と除染係数	=2E2	>1E3	=1	=4E2	=20	=6E2	—	100

(1 E 3 は  $1 \times 10^3$  を表す)

2. セリウムの分析法の作成過程において、セリウムを精製する手段としてイオン交換樹脂カラム分離による方法が検討された（解図 I - 3）。この方法により得られた回収率と除染係数を解表 I - 6 に示す。



解図 I - 3 イオン交換樹脂カラム操作

解表 I - 6 回収率と除染係数

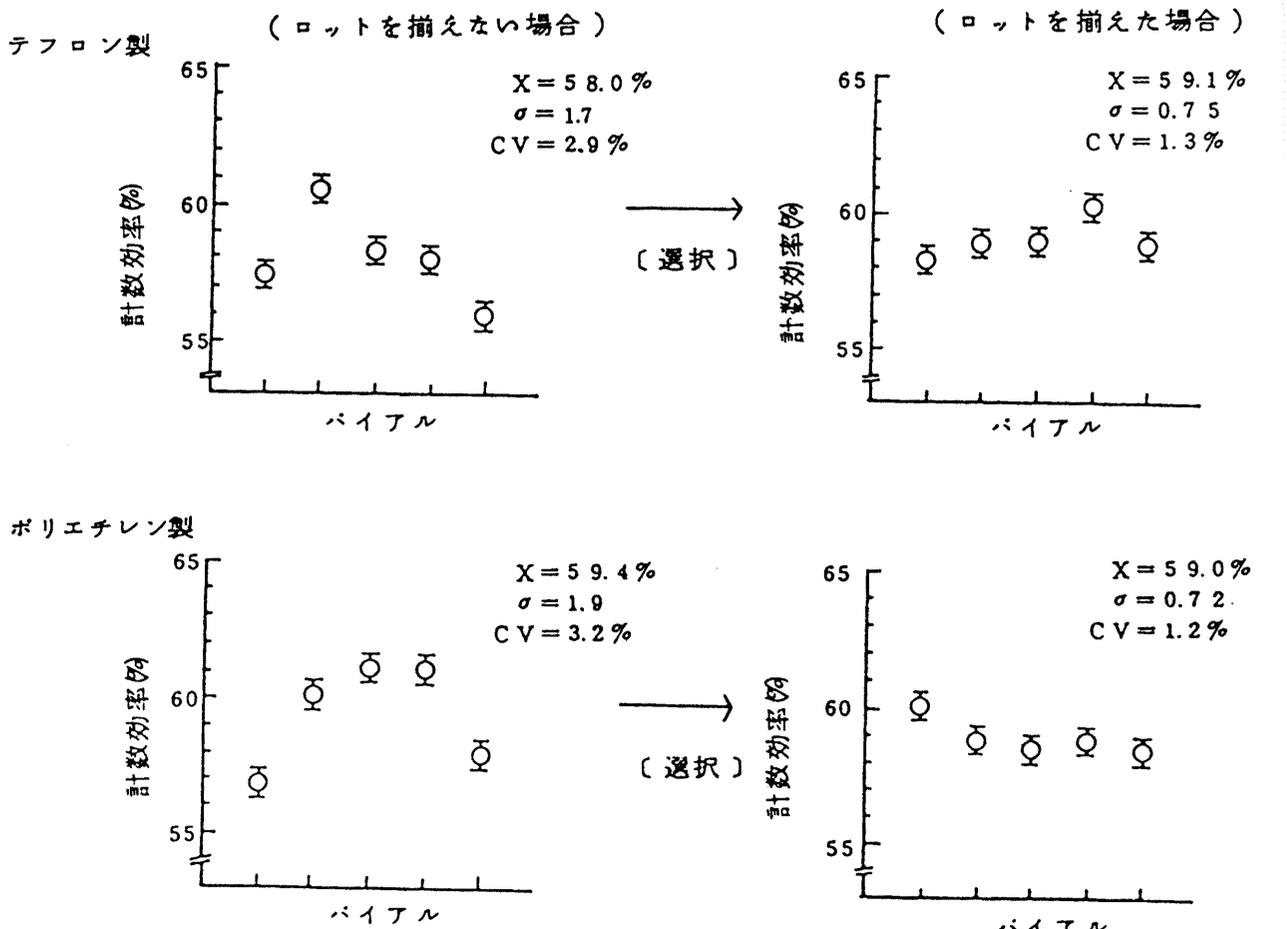
	<sup>59</sup> Fe	<sup>60</sup> Co	<sup>54</sup> Mn	<sup>65</sup> Zn	<sup>106</sup> Ru	<sup>137</sup> Cs	<sup>85</sup> Sr	<sup>144</sup> Ce
#1 塩酸 (1+6) で溶離されたトレーサー (%)	0	0	0	13	57	0	0	0
#2 塩化アンモニウム溶液で溶離されたトレーサー (%)	100	100	100	87	42	100	100	0
#3 クエン酸アンモニウム溶液で溶離されたトレーサー (%)	0	0	0	0	1	0	0	100
#3' 40-140ml のフラクション中の <sup>144</sup> Ce の回収率 (%) と除染係数	>1E4	>1E4	>2E4	>3E4	=5E2	>1E4	>9E4	100

(1E4 は  $1 \times 10^4$  を表す)

1. 測定瓶の選択

測定瓶は一般に、市販されているポリエチレン製あるいはテフロン製の100 ml容器が利用される。そのような市販の容器を測定瓶に転用する場合、チェレンコフ光が微弱光であることから、容器間の肉厚等のばらつきが計数効率のばらつきとなって表れる。

解図 I - 4 はポリエチレン製及びテフロン製瓶のロットを揃えた場合と揃えない場合の計数効率である。ロットを揃えない場合のばらつき(変動係数CV)は大きい、ロットを揃えた場合のばらつきは小さい。このように、使用する容器のロットは統一する必要がある。また、業者から納入された容器は重量を測定するなどして同一ロットであることをさらに確認した後に使用する方が望ましい。

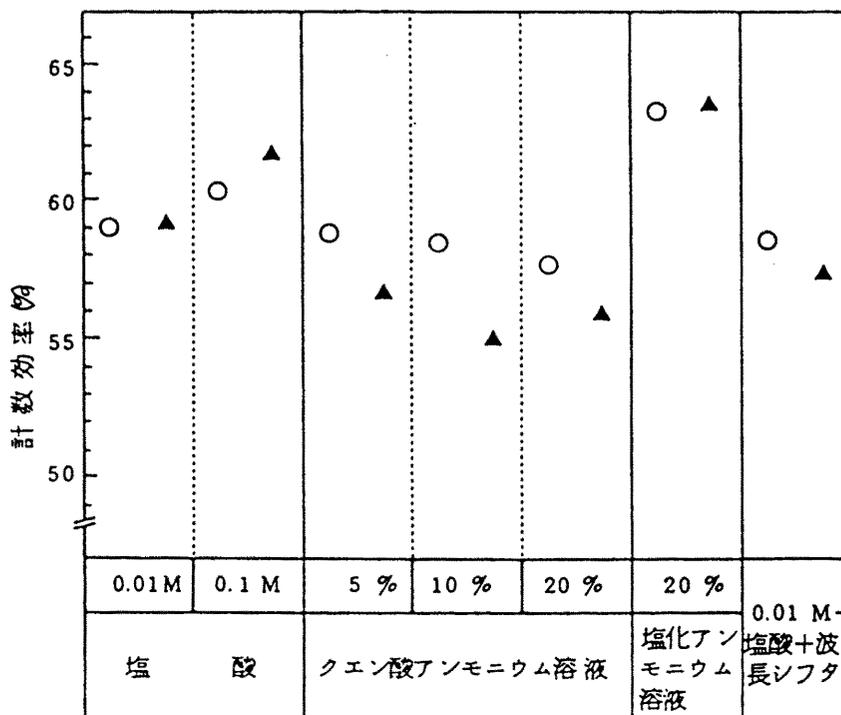


測定装置：アロカ社製LSC-LB1  
 測定条件：Hチャンネル ゲイン0.3 ディスクリミネータ100~∞

解図 I - 4 計数効率

## 2. 液性と計数効率

測定試料の液性は塩酸溶液であるが、参考として、解図 I - 5 にクエン酸アンモニウム溶液、塩化アンモニウム溶液の各濃度における計数効率を示した。



測定装置：アロカ社製 LSC-LB1

解図 I - 5 液性と計数効率

## 3. 波長シフトの添加

チェレンコフ光測定の計数効率を高める方法に、波長シフトを添加する方法がある。報告されている波長シフトは幾つかあるが、ここでは、 $\alpha$ -ナフチルアミンを用いて検討した。 $\alpha$ -ナフチルアミン 20 mg を試料に添加し、その前後における計数効率を測定した。結果を解表 I - 7 に示す。表のように、添加する前後で計数効率の変化はみられなかったため、本分析操作では波長シフトを加えないこととした。

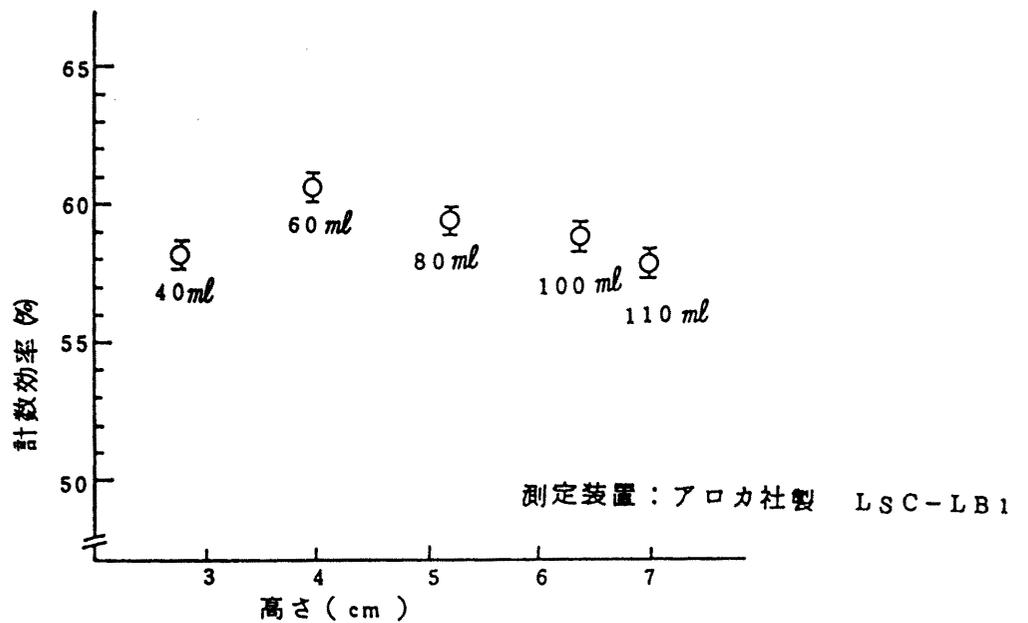
解表 I - 7 波長シフトの添加前後の計数効率

	添加前の計数効率(%)A	添加後の計数効率(%)B	A/B × 100 (%)
テフロン製	58.4 ± 0.3	57.1 ± 0.3	98 ± 1
ポリエチレン製	59.3 ± 0.3	58.5 ± 0.3	99 ± 1

測定装置：アロカ社製 LSC-LB1

#### 4. 試料高さ と 計数効率

解図 I - 6 に試料の高さと計数効率との関係を示した。測定試料の液量は 100 ml であるが、図から判断するとその前後 10 ml 程度の誤差は計数効率に殆ど影響しないことが判る。なお、高さ 4 cm (液量約 60 ml) のところが高い計数効率を示しているように見える。



解図 I - 6 試料高さ と 計数効率

解説 I - 7 連立方程式による複合核種の同時定量法

分析対象核種のうち、 $^{89}\text{Sr} + ^{90}\text{Sr} (+ ^{90}\text{Y})$  のように化学分離が不可能な場合、あるいは娘核種が生成する場合<sup>\*</sup>には、 $\beta$ 線波高分布の違いを利用して、異なるチャンネルにおける効率よりそれぞれ個別に放射能を決める方法が用いられる。ここでは、上記3核種の組み合わせを想定して3連立方程式による3核種の同時定量法について述べる。そのさい、測定試料および標準試料のすべてに対するクエンチング効果は等しいことを前提とするが、そうでないときは、外部 $\gamma$ 線照射によってチャンネル比がすべての試料において等しくなるように増幅器ゲインを微調整する必要ある。

——測定条件の設定——

- 1)  $^{89}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Y}$ をそれぞれ単独に含む標準線源（およそ10 Bq）及びバックグラウンド用試料をサンプルチェンジャにセットする。
- 2) A、B、Cの各チャンネルのLLDを950、ULDを1000（または $\Delta E$ を50）に設定する。
- 3)  $^{90}\text{Y}$ 標準線源を検出部に入れる。
- 4) A、B、Cの各チャンネルについて、増幅器ゲインを最小値から順次増やし、そのつど計数率を求める。計数率が $^{90}\text{Y}$ 標準線源の放射能のおよそ1%を示す増幅器ゲインを見出し、そこに固定する。<sup>\*\*</sup>
- 5) A、B、Cの各チャンネルのLLDとULDを次のように設定する。<sup>\*\*\*</sup>

	A	B	C
LLD	20	250	500
ULD	250	600	1000

- 6) バックグラウンド用試料を測定し、A、B、C各チャンネルにおける計数率を求める。
- 7)  $^{90}\text{Sr}$ 標準線源を測定し、A、B、C各チャンネルにおける正味計数率 $n_{11}$ 、 $n_{21}$ 、 $n_{31}$ (cpm)を求める。それらを $^{90}\text{Sr}$ 放射能 $N$ (60×Bq)で除して計数効率 $\epsilon_{11}$ 、 $\epsilon_{21}$ 、 $\epsilon_{31}$ を求める。
- 8)  $^{89}\text{Sr}$ 標準線源を測定し、同様にA、B、C各チャンネルにおける計数効率 $\epsilon_{12}$ 、 $\epsilon_{22}$ 、 $\epsilon_{32}$ を求める。
- 9)  $^{90}\text{Y}$ 標準線源を測定し、同様にA、B、C各チャンネルにおける計数効率 $\epsilon_{13}$ 、 $\epsilon_{23}$ 、 $\epsilon_{33}$ を求める。

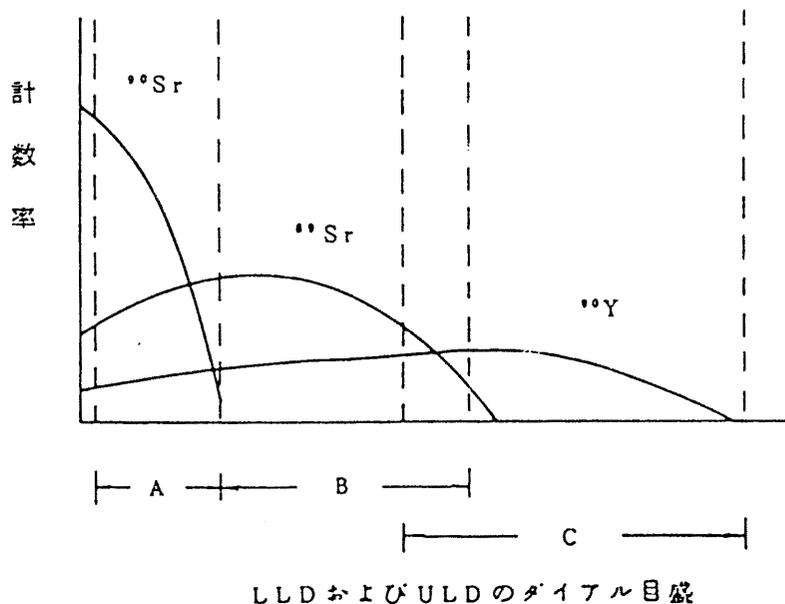
10)  $i$  チャンネルにおける  $j$  核種に対する計数効率  $\epsilon_{ij}$  の逆マトリックス要素  $\epsilon_{ij}^{-1}$  を計算する。

\*  $^{90}\text{Sr}$  は  $^{90}\text{Y}$  (半減期64時間) を生成するので、化学分離後数時間が経過した場合には、 $^{90}\text{Y}$  による A および B チャンネルにおける計数率の寄与が無視できない。それ故、 $n_{11}$  としては測定時に生成された  $^{90}\text{Y}$  の放射能に  $\epsilon_{11}$  を乗じた値を各々  $n_i$  から差し引く。

\*\* A、B、C 各チャンネルの増幅器ゲインが相互に 1 対 1 の対応にあるならば、1 つのチャンネルについてのみ増幅器ゲインを求め、他のチャンネルについては同一のゲインを設定してもよい。

\*\*\* 基本的には、 $i$  チャンネルにおける  $j$  核種に対する計数効率  $\epsilon_{ij}$  において、主領域 ( $i = j$ ) の効率  $\epsilon_{i=i}$  ができるだけ大きく、しかも副領域 ( $i \neq j$ ) の効率  $\epsilon_{i \neq j}$  ができるだけ小さくなるように決めることが望ましい。

$^{90}\text{Sr}$ 、 $^{89}\text{Sr}$ 、  
 $^{90}\text{Y}$  の  $\beta$  線エネルギーおよび平均エネルギー  
 (表 1-2 (P.3) 参照) をもとに  
 右図のように設定する。



解図 I-7  $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{89}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Y}$  における LLD 及び ULD の設定例

----- 試料の測定 -----

- 1) 測定試料及びバックグラウンド試料をサンプルチェンジャにセットする。
- 2) バックグラウンド試料を検出部に入れ、 $t_B$  分測定して A、B、C の各チャンネルにおける計数率  $n_{1B}$ 、 $n_{2B}$ 、 $n_{3B}$  (cpm) を求める。
- 3) 測定試料を検出部に入れ、 $t_S$  分測定して A、B、C の各チャンネルにおける計数率  $n_{1S}$ 、 $n_{2S}$ 、 $n_{3S}$  (cpm) を求める。
- 4) 正味計数率および計数誤差はそれぞれ次のようになる。

$$n_1 = n_{1S} - n_{1B}, \sigma_1 = \sqrt{n_{1S}/t_S + n_{1B}/t_B}$$

$$n_2 = n_{2S} - n_{2B}, \sigma_2 = \sqrt{n_{2S}/t_S + n_{2B}/t_B}$$

$$n_3 = n_{3S} - n_{3B}, \sigma_3 = \sqrt{n_{3S}/t_S + n_{3B}/t_B}$$

5)  $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{89}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Y}$ の各放射能 $N$  (dpm)およびその誤差 $\Delta$ は次のようになる。

$$^{90}\text{Sr} : N_1 = \varepsilon_{11} \cdot n_1 + \varepsilon_{12} \cdot n_2 + \varepsilon_{13} \cdot n_3$$

$$^{89}\text{Sr} : N_2 = \varepsilon_{21} \cdot n_1 + \varepsilon_{22} \cdot n_2 + \varepsilon_{23} \cdot n_3$$

$$^{90}\text{Y} : N_3 = \varepsilon_{31} \cdot n_1 + \varepsilon_{32} \cdot n_2 + \varepsilon_{33} \cdot n_3$$

$$\Delta_i = \sqrt{(\varepsilon_{i1} \cdot \sigma_1)^2 + (\varepsilon_{i2} \cdot \sigma_2)^2 + (\varepsilon_{i3} \cdot \sigma_3)^2}$$

ただし、 $i=1、2、3。$

解説 I - 8  $^{89}\text{Sr}$  及び  $^{90}\text{Sr}$  の分析目標値の算出

検出する限界計数率は、試料とバックグラウンドの測定時間を等しく ( $t_s = t_b = t$ ) すると、解説 4. (4)式から

$$n_{DL} = \frac{K}{2} \left\{ \frac{K}{t} + \sqrt{\left(\frac{K}{t}\right)^2 + \frac{8n_b}{t}} \right\}$$

となる。

(1)  $^{89}\text{Sr}$  の分析目標値

$^{89}\text{Sr}$  は、 $^{90}\text{Y}$  をスカベンジした直後に測定する。しかし測定するまでの時間、あるいは測定時間が長い場合は成長してくる  $^{90}\text{Y}$  の影響が無視できなくなる。そこで、第 1 回目の測定 (主に  $^{89}\text{Sr}$  を測定する) でのバックグラウンド計数値を

$$n_{b1} = n_b + 60A_{90} \epsilon_{90} Y \{1 - \exp(-\lambda_{90} t_1)\} / 10^4$$

とすると、 $^{89}\text{Sr}$  の分析目標値、 $a_{89}$  (Bq) は次式によって求めることができる。

$$a_{89} = \frac{K/2 \left\{ K/t + \sqrt{(K/t)^2 + 8 \left[ n_b + 60A_{90} \epsilon_{90} Y \{1 - \exp(-\lambda_{90} t_1)\} / 10^4 \right] / t} \right\}}{60 \epsilon_{89} / 100}$$

ここで

$a_{89}$  :  $^{89}\text{Sr}$  の分析目標値 (Bq)

$A_{90}$  : 測定試料に含まれる  $^{90}\text{Sr}$  (Bq)

$\epsilon_{89}$  :  $^{89}\text{Sr}$  の計数効率 (%)

$\epsilon_{90}$  :  $^{90}\text{Y}$  の計数効率 (%)

$\lambda_{90}$  :  $^{90}\text{Y}$  の壊変定数 (=0.260 日<sup>-1</sup>)

$t$  : 試料の測定時間 (=バックグラウンドの測定時間) (単位: 分)

$t_1$  :  $^{90}\text{Y}$  スカベンジから第 1 回目の測定開始までの時間 (単位: 日)

$Y$  : ストロンチウムの回収率 (%)

〔2〕  $^{90}\text{Sr}$  の分析目標値

$^{90}\text{Y}$  をスカベンジした数日後に、新たに成長してくる  $^{90}\text{Y}$  を測定して  $^{90}\text{Sr}$  を定量するが、この場合、試料に含まれる  $^{89}\text{Sr}$  もバックグラウンド計数となる。そこで、この時のバックグラウンド計数値を

$$n_{bi} = n_b + 60 A_{89}^0 \varepsilon_{89} Y \exp(-\lambda_{89} t_2) / 10^4$$

とすると、 $^{90}\text{Sr}$  の分析目標値、 $a_{90}$  (Bq) は次式で求めることができる。

$$a_{90} = \frac{K/2 \left[ K/t + \sqrt{(K/t)^2 + 8 \left[ n_b + 60 A_{89}^0 \varepsilon_{89} Y \exp(-\lambda_{89} t_2) \right] / 10^4} \right] / t}{60 \varepsilon_{90} / 100}$$

ここで

$a_{90}$  :  $^{90}\text{Sr}$  の分析目標値 (Bq)

$A_{89}^0$  : 測定試料に含まれる  $^{89}\text{Sr}$  (Bq)

$\varepsilon_{89}$  :  $^{89}\text{Sr}$  の計数効率 (%)

$\varepsilon_{90}$  :  $^{90}\text{Y}$  の計数効率 (%)

$\lambda_{89}$  :  $^{89}\text{Sr}$  の壊変定数 ( $=0.0137 \text{ 日}^{-1}$ )

$t$  : 試料の測定時間 (=バックグラウンドの測定時間) (単位: 分)

$t_2$  :  $^{90}\text{Y}$  スカベンジから第2回目の測定開始までの時間 (単位: 日)

$Y$  : ストロンチウムの回収率 (%)

〔3〕 計算例

次に示す条件で  $^{89}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Sr}$  の分析目標値を計算する。

$$K = 3$$

$$n_b = 5.0 \text{ (cpm)}$$

$$t = 100 \text{ (分)}$$

$$t_1 = 1 \sim 6 \text{ (時)}$$

$$t_2 = 5, 10, 14 \text{ (日)}$$

$$A_{89}^0, A_{90}^0 = 0 \sim 100 \text{ pCi}$$

$$Y = 100\%$$

$$\varepsilon_{89} = 17\%$$

$$\varepsilon_{90} = 45\%$$

解表 I - 8  $^{89}\text{Sr}$  の分析目標値 (Bq/試料)

$A_{90}^{\circ}$ ( $^{90}\text{Sr}$ ) \diagdown $t_1$	1 時間	2 時間	3 時間	4 時間	5 時間	6 時間
3.7 Bq	0.11	0.11	0.12	0.13	0.14	0.14
1.9 Bq	0.10	0.11	0.11	0.11	0.12	0.12
0.74 Bq	0.10	0.10	0.10	0.10	0.11	0.11
0.037 Bq	0.096	0.096	0.096	0.10	0.10	0.10
0	0.096	-	-	-	-	-

解表 I - 9  $^{89}\text{Sr}$  の分析目標値 (Bq/試料)

$A_{89}^{\circ}$ ( $^{89}\text{Sr}$ ) \diagdown $t_2$	5 日	10 日	14 日
1.9 Bq	0.078	0.074	0.074
0.74 Bq	0.056	0.056	0.056
0.37 Bq	0.048	0.048	0.048
0.037 Bq	0.037	0.037	0.037
0	0.037	-	-

Ⅱ の 解 説

## 解説Ⅱ－１ 放射性コバルト及び放射性ヨウ素分析の実例

本分析法を用いて海水、海産生物、海底堆積物等の環境試料を各分析機関で分析した。

なお、環境試料の放射能レベルは非常に低いのですべての試料に分析対象放射性核種の標準溶液を添加し、分析した。

### 1. 試料の調製

用いた試料は次のとおりである。

1.1 海水 : 千葉県勝浦海岸より採水。

#### 1.2 灰試料

##### 1.2.1 海産生物

- (1) シロサケ : シロサケ(全体)を105℃で乾燥後、450℃で灰化し、生じた灰を粉碎後、42メッシュのふるいでふるい分け均一に混合した。
- (2) サワラ : サワラ(筋肉)を105℃で乾燥後、450℃で灰化し、生じた灰を粉碎後、42メッシュのふるいでふるい分け均一に混合した。
- (3) 海藻 : ワカメ、ホンダワラ等の海藻を105℃で乾燥、灰化後100メッシュのふるいでふるい分け均一に混合した。

##### 1.2.2 野菜

- (1) ホウレン草 : 105℃で乾燥後、450℃で灰化し、生じた灰を粉碎後、42メッシュのふるいでふるい分け均一に混合した。

1.3 原乳 : 千葉県および福井県の牧場から購入。

1.4 海底堆積物 : 450℃に加熱して有機物を分解したのち、42メッシュのふるいでふるい分け均一に混合した。

上記の試料から分析供試量を分取し、対象とする放射能標準溶液を添加した。

## 2. 実施機関

福井県衛生研究所 (A)

茨城県公害技術センター (B)

(財)日本分析センター (C)

## 3. 結果

結果を解表Ⅱ－1に示す。

### [参考]

本報告書の分析法作成過程においては幾つかの検討が行われたが、表2は第1次分析法原案についての分析結果とそれに対する改良点を示したものである。

解表Ⅱ-1 分析結果

対象核種	試料	添加放射能 (Bq)	分析結果 (Bq)	備考	分析機関
$^{60}\text{Co}$	海水	18.0	$17.0 \pm 0.05$		C
		18.0	$16.7 \pm 0.05$		C
		17.8	$16.6 \pm 0.05$		C
		17.8	$17.3 \pm 0.05$		C
		17.8	$17.3 \pm 0.05$		C
	海産生物(灰)	17.2	$16.0 \pm 0.08$		A
		18.0	$17.7 \pm 0.05$		C
		18.0	$17.6 \pm 0.05$		C
		18.0	$17.8 \pm 0.05$		C
	海底堆積物	17.2	$15.9 \pm 0.08$		A
		17.2	$15.4 \pm 0.08$		A
		17.8	$17.6 \pm 0.05$		C
		17.8	$17.8 \pm 0.05$		C
		17.8	$17.3 \pm 0.05$		C
	$^{131}\text{I}$	原乳	24.4	$22.8 \pm 0.2$	
24.4			$22.2 \pm 0.2$		A

解表Ⅱ-2 第1次分析法原案の分析結果とその改良点

対象核種	試料	添加放射能 (Bq)	分析法原案による 分析結果 (Bq)	改良点	分析機関
$^{60}\text{Co}$	シロサケ	19.9	19.4±0.1	分析法原案はイオン交換分離後TiOA（あるいはTOA）-キシレン溶液を用いた溶媒抽出操作により測定試料を調製する方法であった。結果は添加値に対して良く一致していたが、分析時間短縮のため溶媒抽出操作を省き、カラム溶出液を蒸発乾固後、塩酸に溶解し、さらに乳化シンチレータを加えて測定試料とすることとした。	A
		19.9	19.6±0.1		A
		19.9	18.8±0.1		A
		19.5	20.0±0.1		B
		19.5	20.0±0.1		B
$^{131}\text{I}$	原乳	28.3	17.3±0.3	回収率が一定でない。また、測定試料に着色が消えないものがあつた。溶媒抽出に用いる溶媒量を多くすること、及び次亜塩素酸ナトリウムを分解する際、加熱処理を十分に行うこととした。（解説Ⅱ-11 参照）	A
		28.3	15.6±0.3		A
		28.3	20.4±0.3		A
		23.3	17.8±0.1	上記操作を行った場合にもかかわらず回収率が低かつた。検討の結果（解説Ⅱ-11 の1）、ホルマリンの添加によることがわかつた。ホルマリンを添加せずに分析することとした。左欄の実験結果はホルマリン添加後1日経過したものである。	B
		23.3	19.8±0.1		B
		23.3	20.4±0.1		B
		23.3	20.4±0.1		B



解表Ⅱ-3 コバルトの回収率および除染係数

	<sup>60</sup> Co	<sup>59</sup> Fe	<sup>54</sup> Mn	<sup>65</sup> Zn	<sup>106</sup> Ru	<sup>137</sup> Cs	<sup>144</sup> Ce
# 1 樹脂に吸着しているトレーサー(%)	100	100	4	100	80	0	0
# 2 塩酸で溶離されるトレーサー(%)	100	0	4	0	2	0	0
# 3 混液Aで溶離されるトレーサー(%)	0	0	0	0	2	0	0
# 4 混液B中のコバルト(%)および除染係数	100	>1E3	>7E3	>8E2	>7E2	>8E2	>8E2

(1 E 3は $1 \times 10^3$ を表す)

### 解説Ⅱ－３ 放射性コバルトの測定における反同時計数回路を用いた時と用いない時のFOMの比較

宇宙線等によるバックグラウンド計数を低減させるために、低バックグラウンド液体シンチレーション測定装置には鉛の遮蔽に加えてプラスチックシンチレータを用いた反同時計数回路が組み込まれている。

$^{60}\text{Co}$ のような原子核の励起レベルの寿命が検出器の分解時間より短い $\beta-\gamma$ 線放出核種を測定する場合には、反同時計数回路の採用によりFOM〔(効率)<sup>2</sup>/バックグラウンド計数率〕が反同時計数回路を用いない場合に比べて小さくなる恐れがあるので、測定条件の設定の際には注意をしなければならない。

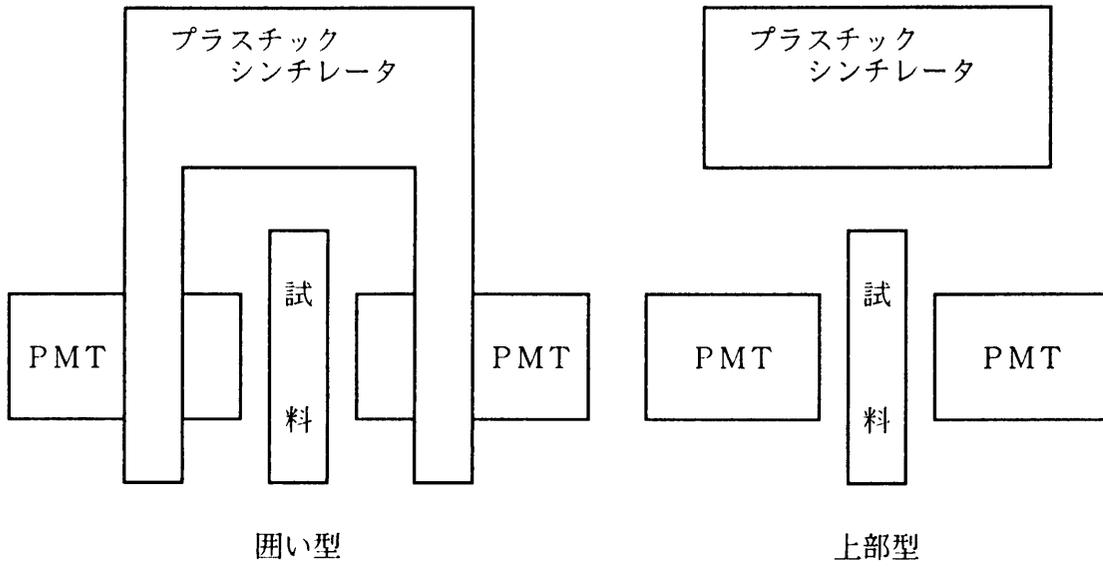
解表Ⅱ－４は反同時計数回路を用いた時と用いない時のFOMの比較である。表中、“囲い型”とはプラスチックシンチレータが測定試料を囲んでいるもの、“上部型”とはプラスチックシンチレータが測定試料の上にある装置を表す(解図Ⅱ－２)。このように、低バックグラウンド液体シンチレーション測定装置には新旧の型によりプラスチックシンチレータの形状の異なる2機種があり、“上部型”は旧型の測定装置に見られ、“囲い型”は最近市販されている測定装置に見られる。

解表Ⅱ－４ FOMの比較

測定装置	反同時計数回路を用いた時			反同時計数回路を用いない時			FOMの比較 [A]/[B]
	Eff (%)	BKG (cpm)	FOM [A]	Eff (%)	BKG (cpm)	FOM [B]	
囲い型	45.3	16.2	127	71.0	32.0	158	0.80
上部型	72.1	18.1	287	72.1	30.7	169	1.70

測定装置：アロカ社製LSC-LB1

測定条件：Cチャンネル ゲイン0.3 ディスクリミネータ30-500



解図Ⅱ-2 プラスチックシンチレータの形状

## 解説Ⅱ - 4 放射性コバルトの分析における酸化剤の種類について

昭和49年版のマニュアルではコバルトを水酸化物として共沈分離したのち、ペルオキシ二硫酸カリウム ( $K_2S_2O_8$ ) と過ヨウ素酸ナトリウム ( $NaIO_4$ ) 溶液を加えてルテニウムを水に可溶性な化学形にして分離している。本分析操作では海水中の有機物を酸化分解するとともに、ルテニウムを可溶性な化学形に変えるためにペルオキシ二硫酸カリウムと過ヨウ素酸ナトリウムを加えたのち、コバルトを水酸化物に共沈させた。この方法ではルテニウムの除去とコバルトの捕集が同時に行えるので分析時間が短縮できる。またこの方法ではpH4付近よりかさ高の白色沈殿が生成しはじめ、pH6.5付近では沈殿生成が明瞭に分かる。上記の酸化剤の代わりに次亜塩素酸ナトリウムを用いるとルテニウムの共沈率が高く、かつ沈殿の量が非常に少なくコバルトの損失が多くなる。

海水中に存在するコバルトは化学形ははっきりしていないが、多くの部分が有機形であるとする報告がある。有機形コバルトの一例として化学構造のはっきりしているビタミン $B_{12}$  (シアノコバラミン) を用いて次の1) ~ 3) の実験を行った。

$^{57}C$  で標識したビタミン $B_{12}$  を海水 (塩酸酸性、pH1.5) 1 ℓ に添加して

- 1) コバルト 1 mg、ペルオキシ二硫酸カリウム 0.1 g、過ヨウ素酸ナトリウム溶液 (4.6w/v%) 5 ml を加え、水酸化ナトリウム溶液 (10%) でpH 6.5としたのち、水浴上で70℃以上、30分間加熱
- 2) 水浴上で70℃以上、2時間加熱したのちコバルト 1 mg、ペルオキシ二硫酸カリウム 0.1 g、過ヨウ素酸ナトリウム溶液 5 ml を加え、水酸化ナトリウム溶液でpH 6.5とし、さらに70℃以上で30分間加熱
- 3) コバルト 1 mg、ペルオキシ二硫酸カリウム 0.1 g、過ヨウ素酸ナトリウム溶液 5 ml を加えたのち水浴上で70℃以上、2時間加熱してから水酸化ナトリウム溶液でpH 6.5とし、さらに70℃以上で30分間加熱。

一夜放置したのち生成した沈殿を遠心分離したところ、1) 30%、2) 62%、3) 91% の $^{57}C$  が共沈した。

また各種のアミノ酸によって有機錯体にした $^{60}C$  では、ペルオキシ二硫酸カリウムを加えて70℃以上に加熱すると90%以上が分解したという報告もある。

以上のことから海水に酸化剤を加え、加熱して有機物を酸化分解してからpHを6.5にすることにした。

## 解説Ⅱ－５ 放射性コバルトの分析における添加する担体と回収率について

### 1 海 水

昭和49年版のマニュアルではランタン及びコバルト担体を加え、コバルトを水酸化物として共沈させたのち、ルテニウムを加えて放射性ルテニウムを除去した。本分析法ではコバルト担体だけを加えてpH 6.5で共沈分離した。コバルトの沈殿率は約100%、ルテニウムの共沈率は約4%であった。またこの条件で担体としてルテニウムを添加するとルテニウムの共沈率はかえって高くなった。またランタンを添加すると沈殿の量が増加して取扱いにくくなる。そして解説Ⅱ－6に示したようにランタンを添加しなくともコバルトは定量的に沈殿する。

以上のことから本報告書では担体としてコバルト10mgだけを添加することにした。また全操作を通してコバルトの回収率は95%以上なので回収率の補正は必要ない。

### 2 海産生物

安定コバルトの濃度は海産生物の種類や部位によってかなり異なるが、多くても数百 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 程度である(解表Ⅱ－5)。したがって担体として加えたコバルト10mgに比べて、試料から入るコバルトの量は少ないのでクエンチング効果にはほとんど影響がない。しかし分析供試料を多くしたり、特にコバルトの濃縮係数の大きい試料、また、銅を多量に含む試料についてはクエンチングの補正をしなければならない。また全操作を通してコバルトの回収率は95%以上なので、回収率の補正は必要ない。

### 3 海底堆積物

海底堆積物に含まれる安定コバルトの濃度は数多く報告されており、通常は数 $\text{mg}/\text{kg}$ 以下であるが、まれに数十 $\text{mg}/\text{kg}$ を超える堆積物もある。

本報告書の塩酸抽出による処理では堆積物の表面に付着していると考えられる放射性コバルトはほとんど抽出されるが(解説Ⅱ－9)、堆積物中の安定コバルトの全量が抽出されることはなく、一部が抽出される。担体として加えたコバルト10mgに比べて試料から抽出されるコバルトの量が多くなるような試料についてはクエンチングの補正をしなければならない。

また全操作を通してコバルトの回収率は95%以上なので回収率の補正は必要ない。

解表Ⅱ-5 安定コバルトの濃度

試料		コバルト濃度
海水		0.03 ~ 0.05 $\mu\text{g}/\ell$
海産生物	魚類(全体)	10 ~ 40 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 生
	いか(内臓)	50 ~ 400 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 生
	貝類(軟体部)	50 ~ 500 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 生
	海藻類	10 ~ 150 $\mu\text{g}/\text{kg}$ 生
海底堆積物		1 ~ 100 $\text{mg}/\text{kg}$

## 解説Ⅱ-6 放射性コバルトの分析における沈殿生成時のpHについて

昭和49年版マニュアルではpH10.5でコバルトを水酸化物沈殿に共沈分離していた。

この方法では海水中のマグネシウムやカルシウムが大量に沈殿し、その後の操作が煩雑になる。そこでマグネシウムやカルシウムの沈殿生成をなるべく抑えて、コバルトが定量的に沈殿する条件を求めた。

### 実験1. コバルト、マグネシウム、カルシウムの沈殿量

海水10ℓにランタン50mgとコバルト担体10mgを、酸化剤としてペルオキソ二硫酸カリウム1g、過ヨウ素酸ナトリウム溶液(4.6w/v%) 50mlを加えたのち、水酸化ナトリウム溶液を加えて沈殿を生成させてコバルト、マグネシウムおよびカルシウムの沈殿量を調べた。その結果は解表Ⅱ-6に示すとおり、pH5~8の間ではコバルトは定量的に沈殿し、マグネシウム、カルシウムの沈殿量はpHが低いほど少なかった。しかしpH5~6付近では一夜放置しても微量の沈殿が浮遊して完全に沈降しないために、傾斜法による上澄み液の除去ではかなり注意して操作しないとコバルトを損失する。またランタンを添加しないときも同様の結果が得られた。pH8を超えると解表Ⅱ-7に示すように過ヨウ素酸ナトリウムの影響でコバルトが陰イオン交換樹脂に残り、完全に溶離できなかつた。

解表Ⅱ-6 溶液のpHとコバルト、マグネシウム、カルシウムの沈殿量

pH	酸化剤添加量	コバルト回収率(%)	マグネシウム沈殿量(mg)	カルシウム沈殿量(mg)
5.1	K <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>8</sub> 1g NaIO <sub>4</sub> 50ml	99	1	6
5.5	K <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>8</sub> 1g NaIO <sub>4</sub> 50ml	99	1	7
6.0	K <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>8</sub> 1g NaIO <sub>4</sub> 50ml	99	3	26
6.5	K <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>8</sub> 1g NaIO <sub>4</sub> 50ml	99	10	120
7.0	K <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>8</sub> 1g NaIO <sub>4</sub> 50ml	99	45	450
8.0	K <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>8</sub> 1g NaIO <sub>4</sub> 50ml	99	60	500
8.0	K <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>8</sub> 1g NaIO <sub>4</sub> 10ml	99	20	100

解表Ⅱ-7 陰イオン交換分離におよぼす過ヨウ素酸ナトリウムの影響

コバルト 添加量 (mg)	マグネシウム カルシウム 添加量 (mg)		pH	沈殿量 (mg)			イオン交換後のコバルト (mg)	
				コバルト	マグネシウム	カルシウム	溶出液	樹脂に残留
10	Mg	500	8.0	9.76	290	—	9.39	0.35
10	Mg	1,000	8.0	9.88	408	—	9.18	0.49
10	Ca	500	8.0	9.98	—	480	9.80	0.18
10	Ca	1,000	8.0	9.76	—	679	8.37	1.16

実験条件：水 1 ℓ にコバルト、マグネシウム、カルシウムおよび過ヨウ素酸ナトリウム溶液 (4.6w/v%) 50 ml を加えたのち、pH 8 として本分析法に従った操作を行った。

以上の結果からコバルトの沈殿分離の最適 pH は 6.5 とした。この pH では過ヨウ素酸イオンが陰イオン交換樹脂に影響をおよぼすことはないはずであるが、沈殿を塩酸に溶解して黄～橙色溶液が得られたときは本文の脚注に従い加熱して過ヨウ素酸イオンを分解したのちに次の操作に移る必要がある。

## 解説Ⅱ－7 放射性コバルトの分析におけるイオン交換分離について

昭和49年版のマニュアルでは海水、海産生物については陰イオン交換樹脂だけで、海底堆積物は陰イオン交換樹脂と陽イオン交換樹脂を用いてコバルトを分離していた。

本分析法では分析供試量を多くした関係でイオン交換樹脂カラムを大きくし、さらに海産生物についても陰イオン交換樹脂と陽イオン交換樹脂分離の2段処理を行うこととした。なお海水については、溶存する妨害元素が微量なためにコバルトの分離は陰イオン交換樹脂だけで十分である。

### 1 陰イオン交換樹脂

ここでは主に試料溶液中に溶存する大量の鉄からコバルトを分離することを目的としている。塩酸(2+1)では多くの元素が樹脂に吸着されるが、塩酸(1+1)で洗浄したのちに塩酸(1+2)で溶離されるのは主にコバルトと多少の銅などである。またここで多少の鉄が溶出しても、次の陽イオン交換樹脂によって分離されるので支障はない。

#### (1) 海水

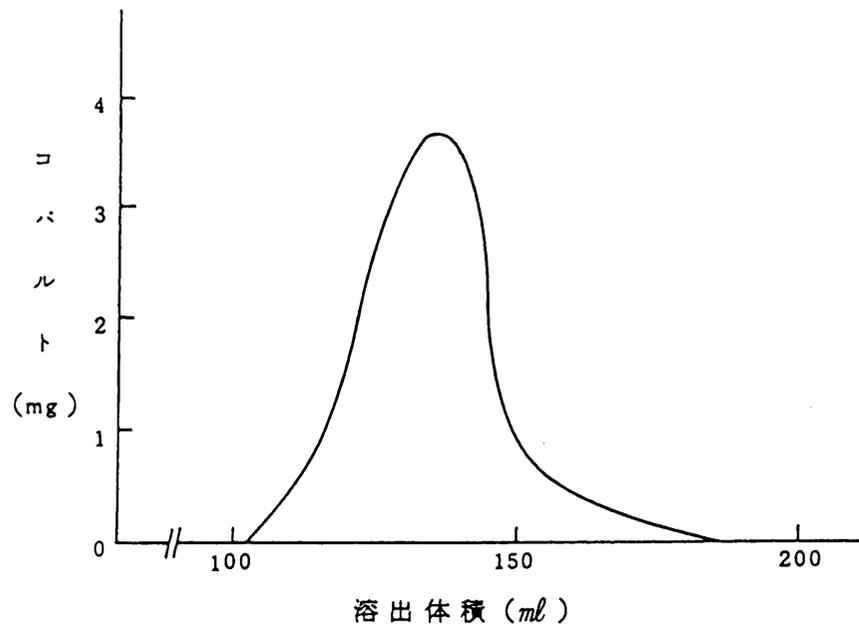
試料溶液を樹脂に流すとコバルトは緑色の吸着帯としてはっきり視認することができる。カラムの形状が1 cm φ × 14 H cmと小さいために流速は毎分1 mlと遅くした方が吸着帯の広がりを小さくすることができる。

#### (2) 海産生物、海底堆積物

試料溶液を樹脂に流すとコバルトは緑色の吸着帯としてはっきり視認することができる。試料溶液を流したあと塩酸(2+1)および塩酸(1+1)の洗浄でコバルトの吸着帯は少しずつ広がってくるが、本文の脚注に示したように樹脂柱に広がりが認められるようならば洗浄は適当な所で打ち切らなければならない。

コバルトの溶出曲線を解図Ⅱ－3に示す。塩酸(1+2)を流すとコバルトの吸着帯は徐々に下がり、約100 mlでコバルトが溶出しはじめ、180 ml程度でほぼ100%溶出しきっている。

しかし実際の試料では吸着帯の広がりなどを考慮して、最初の流出液50 ml程度を捨ててからコバルトの吸着帯を見ながら溶出液を捕集すればよい。また洗浄段階で吸着帯が大きく広がった時には、もっと早くから溶出液の捕集をはじめなければならない。



陰イオン交換樹脂：Amberlite CG-400  
 $3\text{ cm}^{\phi} \times 20\text{ cm}^{\text{H}}$

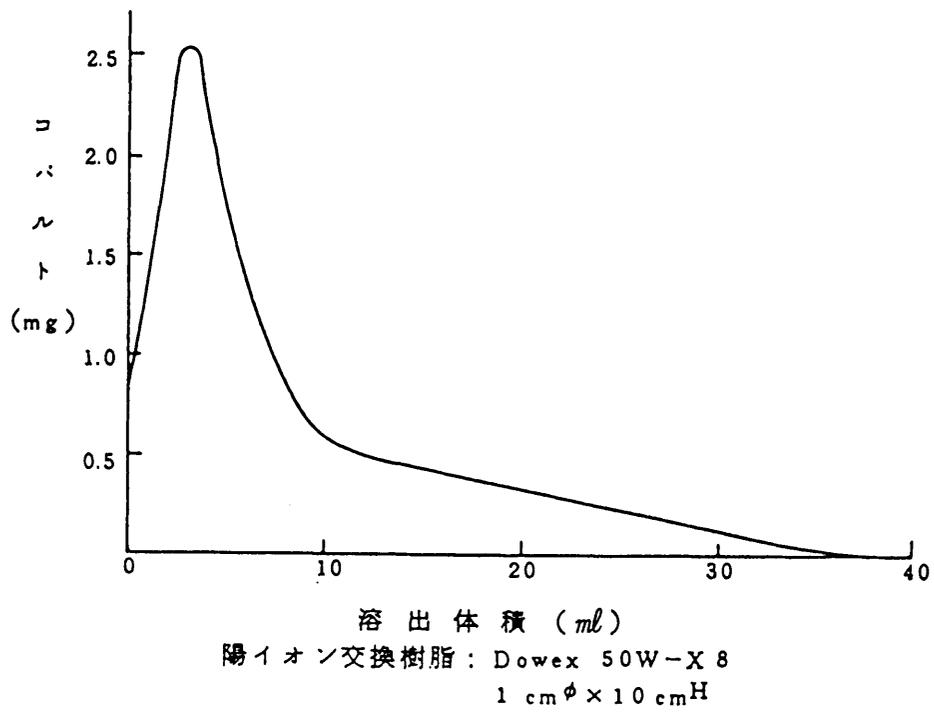
解図Ⅱ-3 コバルト溶出曲線

## 2 陽イオン交換樹脂

陽イオン交換樹脂を用いてコバルトと共存する鉄や銅などを分離するには塩酸-アセトン、塩酸-テトラヒドロフランなどを用いる方法がある。これらを比較検討した結果、本分析法では分離がよい塩酸-アセトンの混合溶液を用いることとした。

### (1) 海産生物、海底堆積物

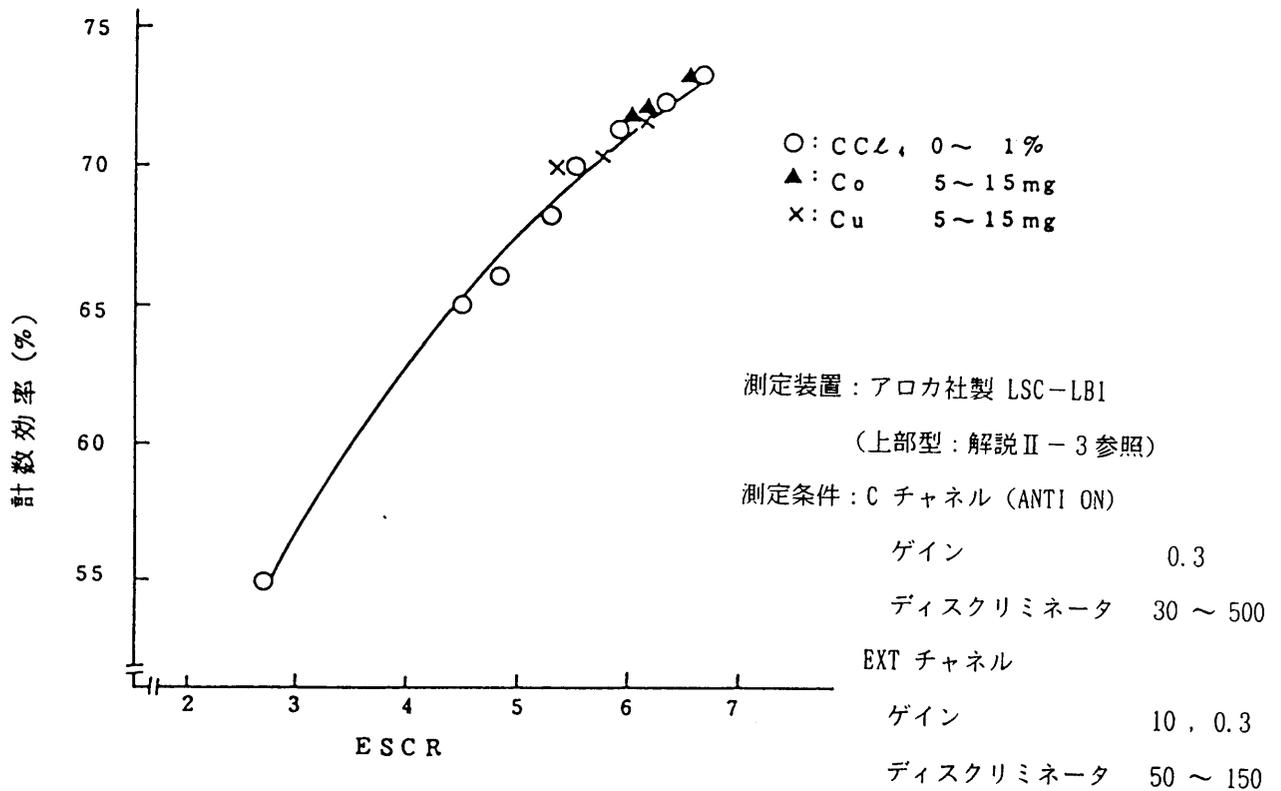
コバルトを含む塩酸-アセトン混液Aを樹脂に流すとコバルトは赤色の吸着帯としてはっきり視認することができる。次に10%塩酸(1+1)-90%アセトン混液Bを流すとコバルトが溶離される。溶出曲線を解図Ⅱ-4に示す。ただちにコバルトを含んだ青色溶液が流出してくるために、混液Bを流すと同時に溶出液を捕集しなければならない。また、この溶離はテーリングするので、溶出液は50 ml以上捕集しなければならないが、溶出液の着色がなくなるのを目安とする。



解図II-4 コバルト溶出曲線

解説Ⅱ - 8  $^{60}\text{Co}$  のクエンチング補正曲線

$^{60}\text{Co}$  のクエンチング補正曲線の一例を解図Ⅱ - 5 に示す。本分析操作では、コバルトと銅は完全に分離することは出来ないので、分析試料中のコバルト及び銅は、分析の際、添加するコバルト担体による色クエンチングの影響に加えて、さらに計数効率を低くする要因となる。しかし、コバルト及び銅の色のクエンチングの影響は、図のように四塩化炭素をクエンチャとした補正曲線により補正することが出来る。なお、図ではクエンチャとして四塩化炭素を用いたが、オゾン層保護のため同様の結果が得られるアセトフェノンを用いること。



解図Ⅱ - 5 クエンチング補正曲線 (例)

## 解説Ⅱ - 9 放射性コバルトの分析における海底堆積物の処理について

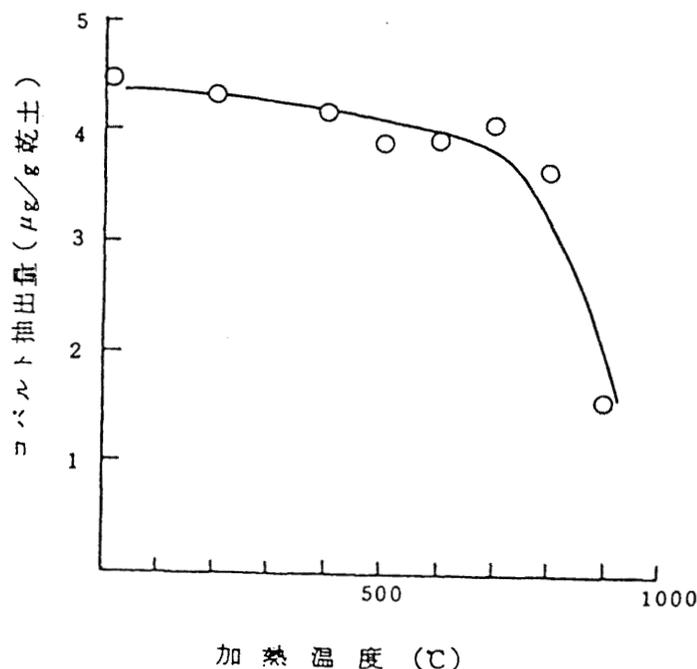
### 1 海底堆積物の加熱処理

沿岸域の海底堆積物の多くは多量の有機物を含み、放射性コバルトはこれらの有機物にとり込まれたり、有機錯体として存在している場合がある。これらの有機物質は放射化学分析の前に分解する必要がある。

昭和49年版のマニュアルでは試料(10g)に含まれる有機物を次亜塩素酸ナトリウムで分解したのち塩酸抽出を行っていた。本分析法では試料を100gとしたので、次亜塩素酸ナトリウムを用いると多量の塩化ナトリウムが生成する。それゆえ試料を電気炉で加熱処理して有機物を分解することとした。

試料の加熱温度とコバルトの塩酸抽出量の間を解図Ⅱ-6に示したが、700℃以上になるとコバルトの抽出量は急激に低下する。この結果から本分析法では650℃以下で加熱して有機物を分解することにした。

なお他の放射性核種の分析も同一試料で行う時には、それぞれの元素の性質を十分に理解した上で加熱温度を決めなければならない。



解図Ⅱ - 6 加熱温度とコバルト抽出量の変化

## 2 海底堆積物の塩酸抽出

海底堆積物を加熱して有機物を分解したあと塩酸（2 + 1）でコバルトを抽出するが、この抽出時間は1時間の加熱を2回繰り返せば十分に抽出される（解表Ⅱ-8）。

解表Ⅱ-8 塩酸による海底堆積物中の $^{60}\text{Co}$ 抽出率

試料番号	性状	供試料 (g)	抽出時間 (h)		抽出前の $^{60}\text{Co}$ (Bq)	抽出残留物中の $^{60}\text{Co}$ (Bq)	抽出率 (%)
			1回目	2回目			
1	泥質	74.5	1	1	1.44 ± 0.093	< 0.093	> 93.6
2	泥質	98.8	1	1	26.7 ± 0.2	0.16 ± 0.03	99.4
3	泥質	98.8	8	4	25.9 ± 0.48	0.11 ± 0.026	99.6
4	砂質	99.6	1	1	29.2 ± 0.37	0.41 ± 0.04	98.6
5	砂質	99.8	8	4	31.7 ± 0.37	0.44 ± 0.04	98.6

・Ge(Li)半導体検出器にて測定

・試料番号1は施設稼働後10年以上経過した堆積物

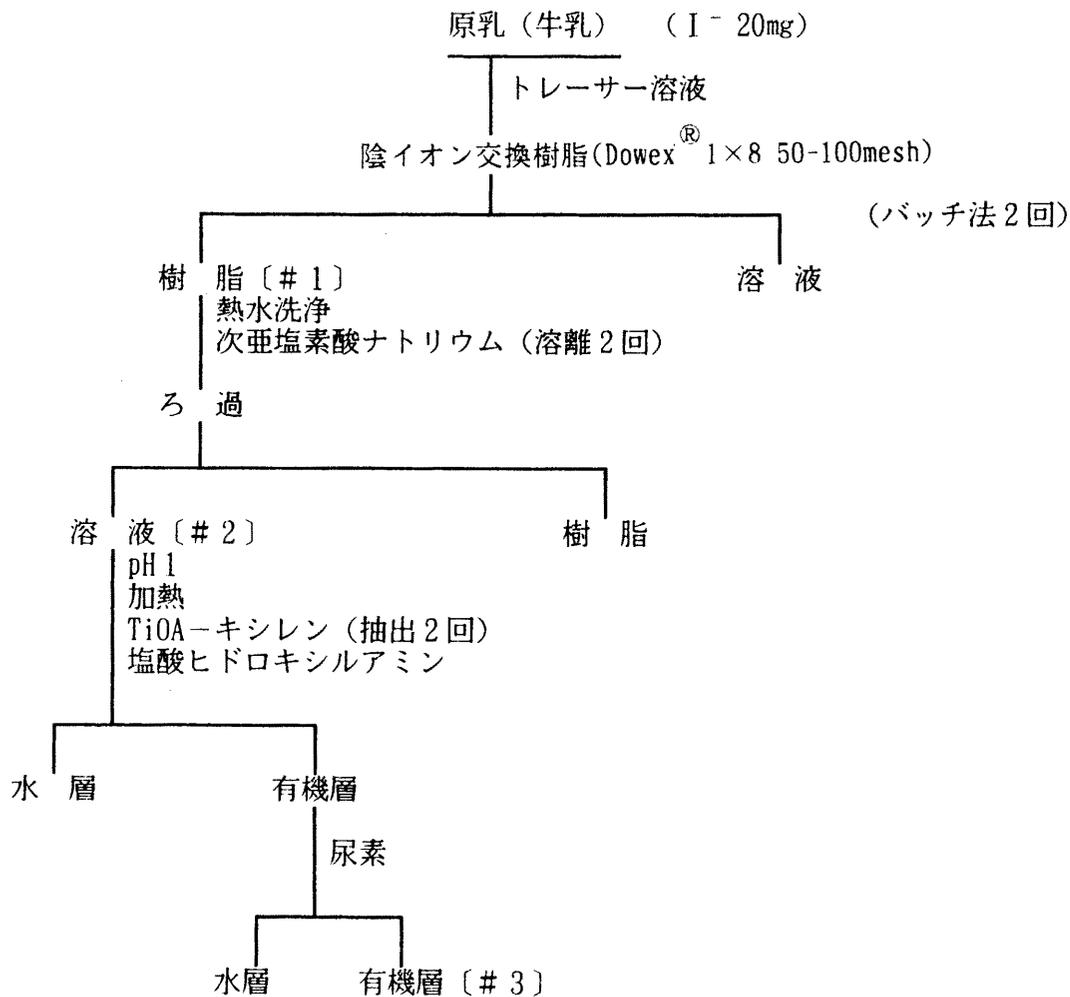
2～5は6カ月以上経過した堆積物

また抽出液はガラス繊維ろ紙を用いてろ過したのち、微細な粒子や遊離したケイ酸などがろ液中に混在していると、次のイオン交換樹脂カラムに流すときに樹脂柱の上部に詰って流速が遅くなる。液に濁りや沈殿が認められる場合には目の細かいろ紙でろ過したのち、次の操作に移るのがよい。

解説 II - 10 放射性ヨウ素の分析における回収率と除染係数について

実験：原乳及び牛乳 4 l に回収率及び除染係数検討用トレーサーを加え、解図 II - 7 に示した分析操作に従い実験した。

使用したトレーサーは  $^{131}\text{I}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{59}\text{Fe}$ 、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{65}\text{Zn}$ 、 $^{106}\text{Ru}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  及び  $^{14}\text{C}$  e である。



解図 II - 7 ヨウ素の分析操作

結果：結果を解表 II - 9 に示す。表中の番号 (#) は解図 II - 7 に対応している。

$^{131}\text{I}$  の回収率は原乳で 9.1%、牛乳で 9.6%であった。また、 $^{131}\text{I}$  の回収率は数回の実験においても 9.0%以上得られ満足出来るものであった。本分析法は高い回収率を一定に得られるので、回収率の補正をする必要はない。

除染係数は、いずれの核種に対しても満足出来る値であった。

解表Ⅱ-9 回収率と除染係数

	<sup>59</sup> Fe	<sup>60</sup> Co	<sup>54</sup> Mn	<sup>65</sup> Zn	<sup>106</sup> Ru	<sup>137</sup> Cs	<sup>144</sup> Ce	<sup>131</sup> I
#1 樹脂に吸着しているトレーサー (%)	75	100	60	30	65	0	1	96
	60	100	15	20	60	0	1	100
#2 次亜塩素酸ナトリウムで溶離されたトレーサー (%)	40	100	30	0	10	0	0	94
	40	100	5	0	10	0	0	97
#3 有機層中の除染係数および <sup>131</sup> Iの回収率 (%)	>3E4	>2E4	>3E4	>5E4	=2E2	>2E4	>2E3	91
	>3E4	>2E4	>3E4	>3E4	=2E2	>2E4	>2E3	96

(上欄は原乳、下欄は牛乳試料に対する値である。また、3 E 4 は  $\times 10^4$  を表す)

## 解説Ⅱ-11 放射性ヨウ素の分析操作について

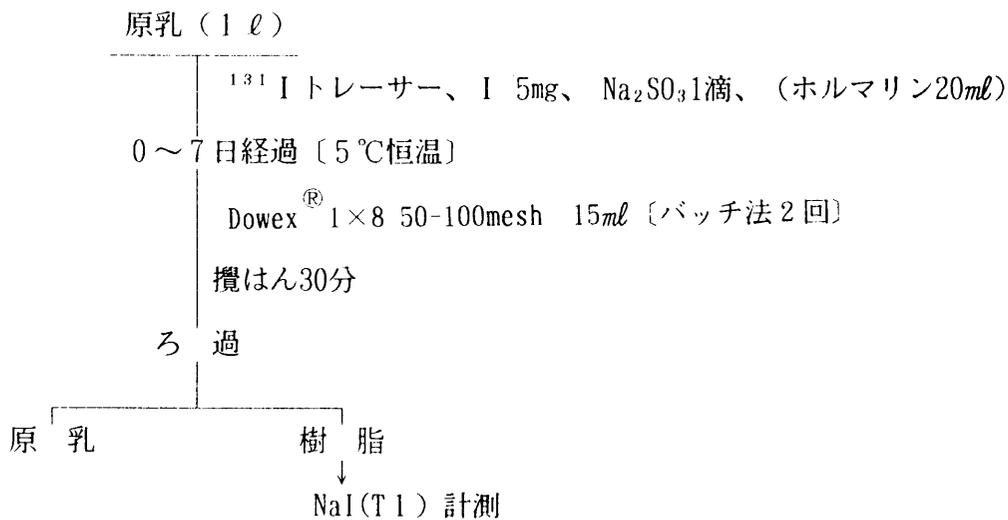
### 1. 試料調製について

昭和52年に制定された放射性ヨウ素分析法（科学技術庁）では、原乳（牛乳）試料は採取直後に防腐剤としてホルマリンを添加することとなっている。しかし、最近の文献ではホルマリンは原乳（牛乳）中に存在するI<sup>-</sup>とタンパク質との結合を促進させ、その結果、ヨウ素の陰イオン交換樹脂への吸着率を減少させ、回収率を低下させる原因となることが報告されている。（文献番号31 Kar-Chun To, Anal. Chem., 57, 1490(1985)など）

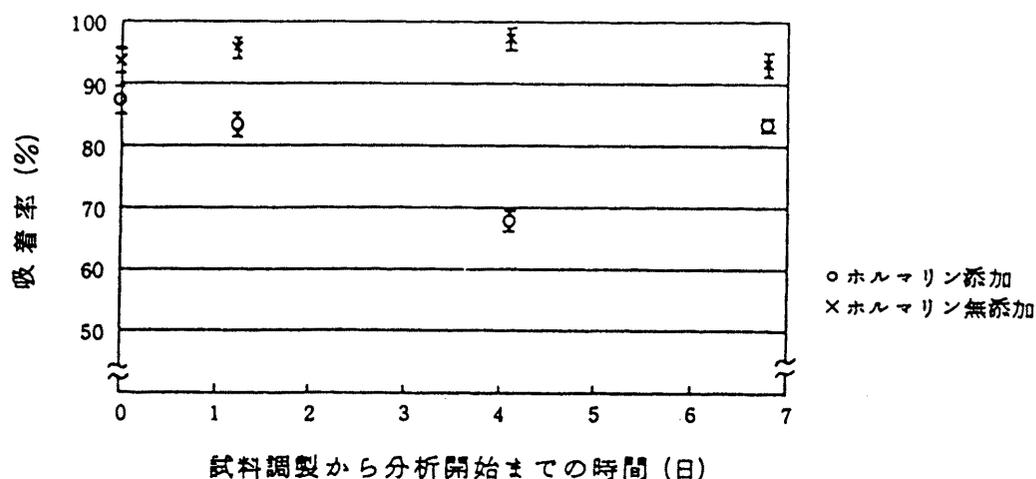
本分析法における分析法作成の際にもそのような現象が確認されたので、本法ではホルマリンを添加せずに行うこととした。以下は、ホルマリン添加後の経過時間によるヨウ素の樹脂への吸着率の変化を調べた実験である。

実験：分析操作を解図Ⅱ-8に、またその結果を解図Ⅱ-9に示す。

ホルマリンを添加して1日以上経過すると、回収率はホルマリン無添加に比べ10～30%程度減少し、しかも、ばらつきがみられた。ホルマリンを添加しない場合及びホルマリン添加後、直ちに分析した場合はいずれも90%以上の回収率が得られた。



解図Ⅱ-8 分析操作



解図Ⅱ-9 樹脂への吸着率の変化

## 2. 陰イオン交換樹脂のバッチ操作回数について

1回のバッチ操作により原乳及び牛乳4ℓに添加した<sup>131</sup>Iの回収率はおよそ85%であった。バッチ操作を2回繰り返すことにより回収率はほぼ100%となった。本法ではバッチ操作回数を2回とした。

## 3. 加熱する操作

次亜塩素酸ナトリウムを分解する際、塩酸を用いるが、その際多量の塩素ガスが発生する。溶液を攪はんし、さらに加熱して塩素ガスを十分に取り除く操作を行う必要がある。その操作が十分でないと、次の溶媒抽出操作、また測定試料が黄色となり定量に支障をきたす。

## 4. 溶媒抽出に用いる溶質の選択

溶質にTiOA及びTOAを用いた場合について比較した。結果を解表Ⅱ-10に示す。ヨウ素の抽出率及びクエンチングの程度を示すESCRに変化はなかったが、TiOAに比べTOAの方がバックグラウンド計数値が高い結果が得られた。そこで、本法ではTiOAを用いることとした。

解表Ⅱ-10 バックグラウンド計数率

1%TiOA-キシレン60ml+ Aquasol-2 40ml				1%TOA-キシレン60ml+ Aquasol-2 40ml			
用いたTiOA A社*		用いたTiOA A社*		用いたTOA A社		用いたTOA B社	
BKG(cpm)	ESCR	BKG(cpm)	ESCR	BKG(cpm)	ESCR	BKG(cpm)	ESCR
24.6±0.4	14.5	24.3±0.3	13.7	30.2±0.4	14.2	30.6±0.4	14.3

キシレン60ml+ Aquasol-2 40ml		Aquasol-2 100ml	
BKG(cpm)	ESCR	BKG(cpm)	ESCR
25.7±0.5	15.2	25.3±0.5	14.8

\*異なるロット

(測定装置：アロカ社製LSC-LB1 Cチャンネル ゲイン 0.5

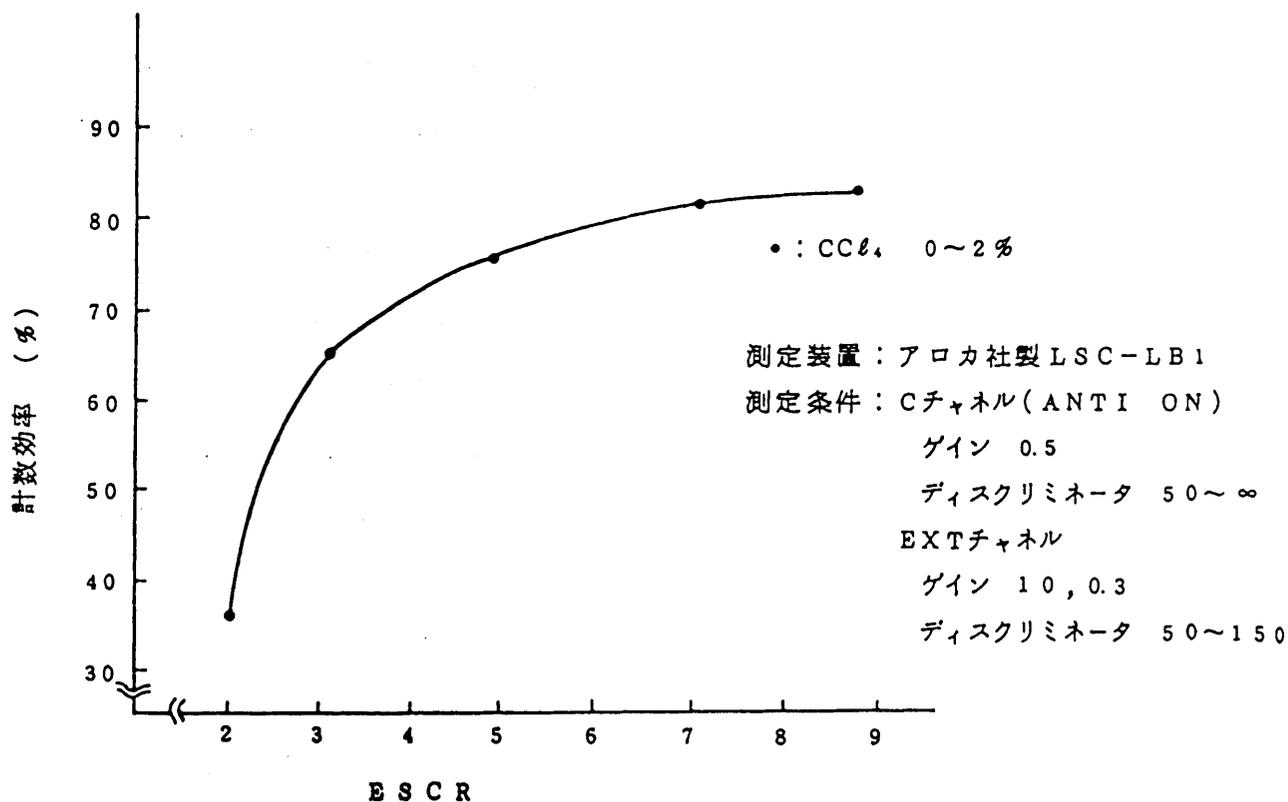
ディスクリミネータ 50-∞)

#### 5. 溶媒抽出に用いる溶媒量

溶媒量を抽出の1回目に10ml、2回目に5mlの計15mlを用いて実験を行った結果、多くは回収率が85%以上得られたものの、時には60%あるいはそれ以下を示す事もあり、ばらつきがみられた。そこで、溶媒量を1回目40ml、2回目20mlに増加させて繰り返し実験したところ、回収率は90%以上で安定した値が得られた。

解説Ⅱ-12  $^{131}\text{I}$  のクエンチング補正曲線

$^{131}\text{I}$  のクエンチング補正曲線の一例を解図Ⅱ-10に示す。なお、図ではクエンチャとして四塩化炭素を用いたが、オゾン層保護のため同様の結果が得られるアセトフェノンを用いること。



解図Ⅱ-10 クエンチング補正曲線 (例)

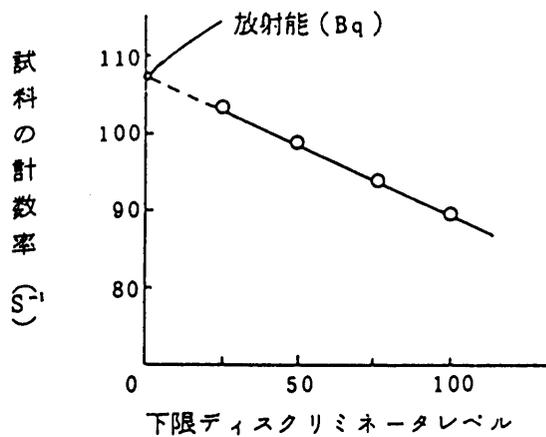
## 解説Ⅱ - 13 $\beta$ 線放射能絶対測定

液体シンチレーション測定法では試料はシンチレータ中に均一に分散しているため、自己吸収がなく、ほぼ $4\pi$ の幾何学的条件を実現しうる。そのため、次のような方法で $\beta$ 線放射能の絶対測定が可能となる。

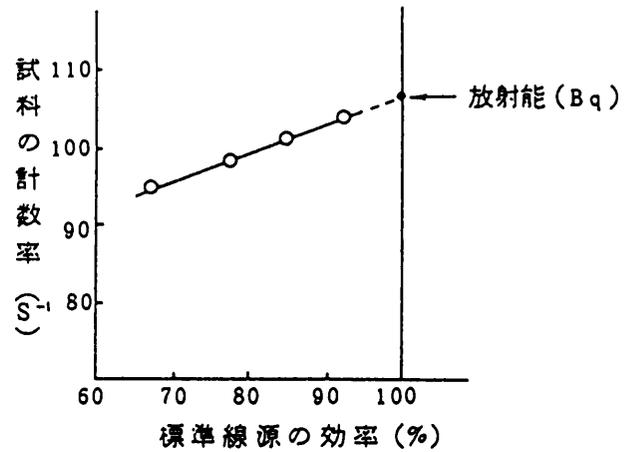
1) 積分バイアス曲線補外法： $\beta$ 線波高分布（スペクトル）の低波高領域において、下限ディスクリミネータレベル（LLD）から最大波高値までの積算計数値は、LLDの低い領域においてLLDに対してほぼ直線関係を示す。それ故、LLDのゼロがエネルギーのゼロに一致していると仮定して、LLDのゼロへ補外した計数率は $\beta$ 放射能を与える。この方法は、それほど高い精度（誤差1%以下）を必要としないならば、 $\beta$ 線エネルギーが数100keV以上の核種に対して簡便な絶対測定法となる。次に述べる効率トレーサー法の手順4)において計数率をLLDに対してプロットし、LLD=0に補外すると積分バイアス曲線補外法による放射能を求めることができる（解図Ⅱ-11参照）。あるいは、最小二乗法<sup>\*</sup>によって放射能を求めることができる。

2) 効率トレーサー法：同じ測定条件の下で、トレーサーとなる標準線源<sup>\*\*</sup>の計数効率が100%であるならば、測定試料の計数効率も100%になる、というのがこの方法の原理である。実際には標準線源の効率が100%にはならないので、同一測定条件の下で標準線源と測定試料を計り、標準線源に対する効率と測定試料の計数率の関係を求める。そして、標準線源の効率が100%になる点へ補外した測定試料の計数率<sup>\*\*\*</sup>がその放射能となる（解図Ⅱ-12参照）。以下にその手順を示す。

- 1) チャンネルAのLLDを500、ULDを $\infty$ に設定する。
- 2) 標準線源<sup>\*\*</sup>を検出部に送り込み、増幅器ゲインを順次上げる。大まかに計数効率をしらべ、50%を超えた値に固定する。
- 3) LLDを500、450、400、……のように順次下げて、そのつど標準線源の計数効率<sup>\*\*\*</sup>を求める。
- 4) 測定試料を検出部に送り込み、3)と同様にLLDを500、450、400、……のように順次下げて、そのつど測定試料の計数率を求める。
- 5) リニアグラフ用紙の横軸を標準線源の効率、縦軸を測定試料の計数率としてプロットし、各点を直線と仮定して、標準線源の効率100%へ補外した値が測定試料の放射能である。あるいは、最小二乗法<sup>\*</sup>によって放射能を求める。



解図Ⅱ-11 積分バイアス曲線補外法



解図Ⅱ-12 効率トレーサー法の原理

- \* 例えば、解説2のプログラムABS. BASを用いるかあるいはLSF. BASで、“Order of Polynomial”に1（一次式）または2（二次式）をインプットする。積分バイアス曲線補外法の場合はXにLLDを、Yに計数率をインプットすると、得られる式の $A_0$ 値が放射能となる。
- \*\* 標準線源の核種は測定試料と同一のものである必要はない。補外の精度を考えてプロットができるだけ直線に近いこと、 $\beta$ 線エネルギーが測定試料の $\beta$ 線エネルギーにくらべてあまり高くないこと、という条件を満たす核種が望ましい。 $^{90}\text{Sr}$ ( $E=0.318\text{ MeV}$ 、100%)は本報告書の対象核種に対して標準線源として使いやすい核種である。測定試料のエネルギーが標準線源のエネルギーよりかなり高いときは、標準線源に適切な光学フィルタ（半透明の紙など）をかけて用いることもできる。また標準線源と測定試料には必ずしも同じシンチレータを用いる必要はない。
- \*\*\* LLDを変える代りに、増幅器ゲインを変える方式でもよい。また、一つの条件で、標準線源と測定試料を図り、次に条件を変えて……というように交互に行ってもよい。いずれにしても、補外の精度を高めるためには効率ができるだけ100%に近い点で測定することが大切である。

Ⅲ の 解 説

## 解説Ⅲ－１ プルトニウム分析（ $\alpha$ 線）の実例

本分析法を用いて海水、海産生物、海底堆積物等の環境試料を各分析機関で分析した。

なお、環境試料の放射能レベルは非常に低いので土壌試料を除き、すべての試料に分析対象放射性核種の標準溶液を添加し、分析した。

### 1. 試料の調製

用いた試料は次のとおりである。

1.1 海水 : 千葉県勝浦海岸より採水。

#### 1.2 灰試料

##### 1.2.1 海産生物

(1) シロサケ : シロサケ（全体）を105℃で乾燥後、450℃で灰化し、生じた灰を粉碎後、42メッシュのふるいでふるい分け均一に混合した。

(2) サワラ : サワラ（筋肉）を105℃で乾燥後、450℃で灰化し、生じた灰を粉碎後、42メッシュのふるいでふるい分け均一に混合した。

(3) 海藻 : ワカメ、ホンダワラ等の海藻を105℃で乾燥、灰化後100メッシュのふるいでふるい分け均一に混合した。

1.3 土壌 : 福井県冠山から採取。105℃で乾燥後、450℃に加熱して有機物を分解したのち、42メッシュのふるいでふるい分け均一に混合した。

上記の試料から分析供試量を分取し、対象とする放射能標準溶液を添加した。

## 2. 実施機関

動力炉・核燃料開発事業団 (A)

茨城県公害技術センター (B)

(財)日本分析センター (C)

## 3. 結果

結果を解表Ⅲ－1に示す。

解表Ⅲ-1 分析結果

対象核種	試料	添加放射能 (Bq)	分析結果 (Bq)	備考	分析機関	
$^{238+239+}$ $^{240}\text{Pu}$	海 水	0.258	0.282 ± 0.010 *4	イオン交換法	A	
		0.258	0.278 ± 0.010	イオン交換法	A	
		0.258	0.253 ± 0.010	イオン交換法	A	
		0.258	0.280 ± 0.005	イオン交換法	B	
		0.258	0.265 ± 0.005	イオン交換法	B	
		0.258	0.270 ± 0.005	イオン交換法	B	
		0.258	0.258 ± 0.004	イオン交換法	C	
		0.258	0.253 ± 0.004	溶媒抽出法	C	
$^{238+239+}$ $^{240}\text{Pu}$	海産生物 (灰)	0.271 *1	0.262 ± 0.010 *4	イオン交換法	A	
		0.271	0.193 ± 0.008	イオン交換法	A	
		0.271	0.208 ± 0.008	イオン交換法	A	
		0.271	0.304 ± 0.005	イオン交換法	B	
		0.271	0.278 ± 0.005	イオン交換法	B	
		0.271	0.271 ± 0.005	イオン交換法	B	
		0.272	0.264 ± 0.004	イオン交換法	C	
		0.272	0.273 ± 0.004	イオン交換法	C	
		0.271	0.282 ± 0.004	溶媒抽出法	C	
	0.271	0.255 ± 0.004	溶媒抽出法	C		
	サ ワ ラ	0.258 *2	0.213 ± 0.010 *4	イオン交換法	C	
		0.258	0.225 ± 0.010	イオン交換法	C	
	土 壤	0.237 *3	0.238 ± 0.009 *4	土壌約10gを正確に分取し分析した	イオン交換法	A
		0.246	0.244 ± 0.009	土壌約10gを正確に分取し分析した	イオン交換法	A
		0.236	0.232 ± 0.009	土壌約10gを正確に分取し分析した	イオン交換法	A
0.232		0.205 ± 0.004	土壌約10gを正確に分取し分析した	イオン交換法	B	
0.232		0.195 ± 0.004	土壌約10gを正確に分取し分析した	イオン交換法	B	
0.229		0.219 ± 0.005	土壌約10gを正確に分取し分析した	イオン交換法	B	
0.237		0.231 ± 0.004	土壌約10gを正確に分取し分析した	イオン交換法	C	
0.235		0.242 ± 0.004	土壌約10gを正確に分取し分析した	溶媒抽出法	C	

- \*1 標準溶液を添加する前の海産生物を $\alpha$ 線スペクトロメトリーにより分析した結果、 $0.644 \pm 0.073 \text{ B q/kg}$ 灰であった。
- \*2 標準溶液を添加する前のサワラを $\alpha$ 線スペクトロメトリーにより分析した結果、分析目標値以下であった。
- \*3  $\alpha$ 線スペクトロメトリーにより分析した結果、 $0.0235 \pm 0.0010 \text{ B q/g}$ であった。
- \*4 平均回収率を75%とした。

### 解説Ⅲ - 2 SCA 3点計数法による $\alpha$ ピーク中心とFWHMの算出

$\alpha$ ピークの中心およびFWHMはMCAを用いる場合はスペクトルより容易に求められるが、SCAを用いる場合はウインドウ幅を狭くして多くの測定を行わなければならない。そこで、より簡便な方法として以下に述べる方法が代用できる。

$\alpha$ ピークの形状は次のようなガウス関数で表わされると仮定する。

$$F(X) = A e^{B(X-P)^2}, \quad B = -2.773/\text{FWHM}^2 \quad (1)$$

ただし、Aはピーク中心pにおける高さ、FWHMはピークの半値幅である。

右図のように、ピーク中心付近を一定のウインドウ幅Wをもった3領域に分け、2番目の領域の下限レベルをDとする。計算を容易にするため、

$$X = D + \frac{W}{2} - P$$

とすると、3領域における計数值( $N_1$ 、 $N_2$ 、 $N_3$ )は次のように表わされる。

$$N_1 = A e^{B(X-W)^2}, \quad N_2 = A e^{BX^2}, \quad N_3 = A e^{B(X+W)^2} \quad (2)$$

$$\text{これより、} \ln\left(\frac{N_1}{N_3}\right) = -4BW(X-P), \quad \ln\left(\frac{N_2}{N_1 N_3}\right) = -2BW^2 \quad (3)$$

$$\text{従って、} P = D + \frac{W}{2} \left\{ 1 - \frac{\ln\left(\frac{N_1}{N_3}\right)}{\ln\left(\frac{N_2}{N_1 N_3}\right)} \right\} \quad (4)$$

すなわち、SCAの下限ディスクリミネータのレベル(LLD)および上限ディスクリミネータのレベル(ULD=LLD+W)を上図のように設定して、得られる3個の計数值を(4)式に代入することによりピーク中心が求められる。

一方、(3)式より計算されるFWHM<sub>obs</sub>は $\alpha$ ピークの真の広がりFWHMとウインドウ幅Wとの合成と考え、次の式を仮定する。すなわち、

$$\text{FWHM} = \left\{ (\text{FWHM}_{\text{obs}})^2 - W^2 \right\}^{1/2} \quad (5)$$

$$B = -2.773 / (\text{FWHM}_{\text{obs}})^2 = -\frac{1}{2W^2} \ln\left(\frac{N_2}{N_1 N_3}\right)$$

$$\text{従って、FWHM} = W \left\{ 5.55 / \ln \left( \frac{N_2^2}{N_1 N_3} \right) - 1 \right\}^{1/2} \quad (6)$$

この方法では、DおよびWの設定値が結果の良否に影響する。設定値としては、 $w = \frac{1}{2} \text{FWHM}$ とし、 $N_1 < N_2 > N_3$ とすることが望ましい。wが上記の関係より大きすぎると(5)式の近似が成り立たなくなる。

### 解説Ⅲ - 3 $\alpha - \beta$ 線波形弁別法について

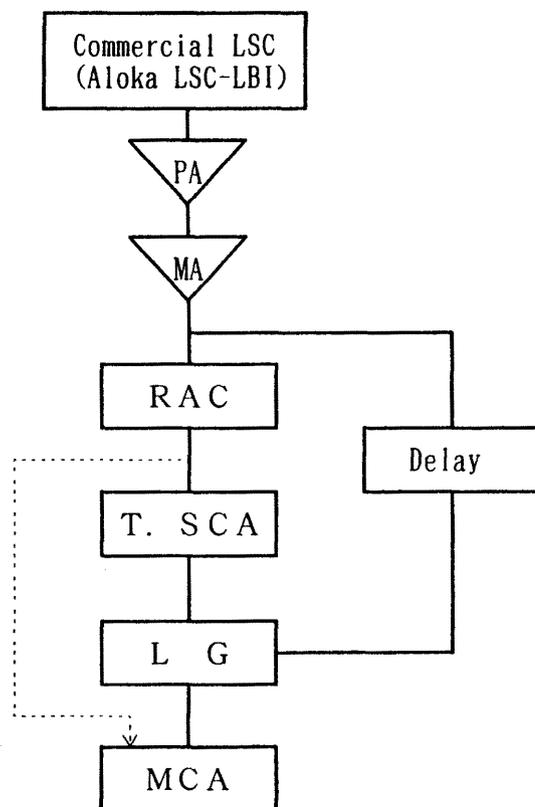
放射線の種類（比電離能の違い）により液体シンチレータの発光波形が異なることを利用した波形弁別法(Pulse Shape Discrimination Method)は、もともと、中性子と $\gamma$ 線を区別して測定する方法として開発されたものであるが、ここでは、目的とする $\alpha$ 線とバックグラウンド計数の原因となる $\gamma$ 線を区別し、バックグラウンド計数を低減させる方法（ $\alpha - \beta$  PSD法）として利用する。

#### 1. 測定システム

測定システムとしては、時間-波高変換回路を用いる方法（TACシステム）、ライズタイム波高変換回路\*を用いる方法（RACシステム）、あるいはフォールタイム波高変換回路を用いる方法などがある。ここでは、回路調整が容易であるRACシステムによる方法を取り上げる。回路構成を解図Ⅲ-1に示す。

低バックグラウンド液体シンチレーション測定装置の裏面にある光電子増倍管からの出力信号（2本のうちどちらか一方）をプリアンプ（PA）を通し主増幅器に加え、PSDに適するように波形整形する。このとき、主増幅器（MA）はRACへの最適な入力パ

ルスを得るため、立ち上り及び立ち下がり時間を調整できるものを用意する。RACにてピクオフレベルが10-90%程度のライズタイムを分析し、その出力信号をシングルチャンネルアナライザ（SCA）により $\alpha$ パルスのゲート信号としてリニアゲート（LG）に加える。一方、MAからの信号を遅延回路（Delay）を通してLGに加え、その出力信号である $\alpha$ パルスをMCAに入力して $\alpha$ 線のみエネルギースペクトルを得る。なお、図中の破線は



解図Ⅲ-1 回路構成

時間スペクトルを得るための接続方法である。

\*市販品としては応用光研製723-1Cがある。

## 2. PSD用シンチレータの調製

すでに調製されたPSD用シンチレータが市販されている\*\*が、自作する場合には、PPO 5 g、DMPOPOP 0.3 g、ナフタレン 100 gをキシレン 1 lに溶解する。

また、プルトニウム分析用シンチレータの調製は、上記シンチレータにHDEHPを濃度が10%となるように添加する。

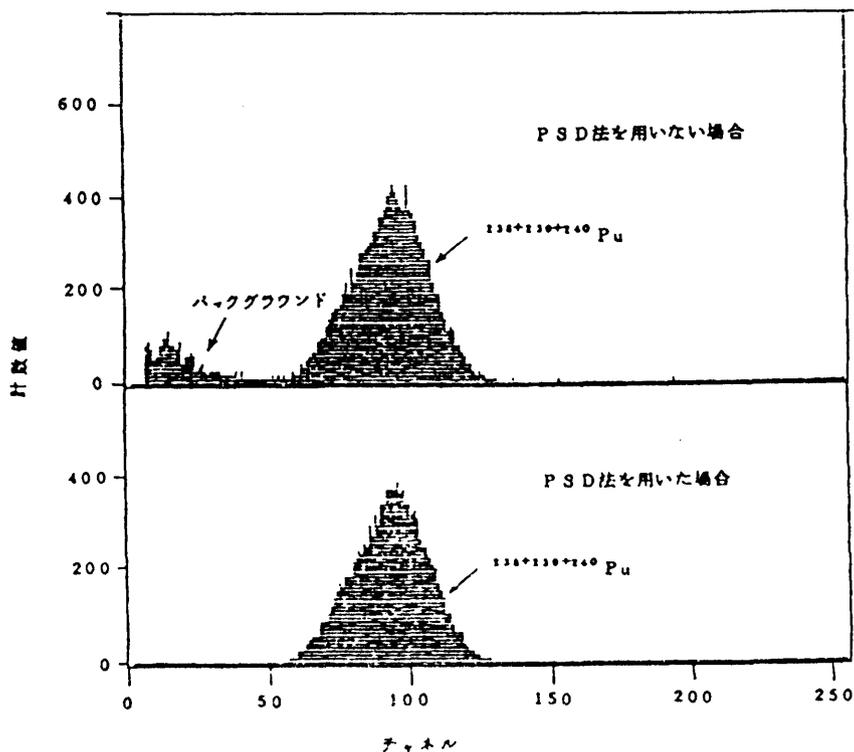
\*\*NEN社製 NE-213等がある。

## 3. プルトニウム測定試料の調製

Ⅲ. 第1章 1.1.2〔3〕測定試料の調製に従い操作する。そのとき用いるシンチレータは上記2のように調製したプルトニウム分析用シンチレータとする。

クエンチャとなる溶存酸素を除去するため、窒素ガスにて4～5分間バブリングした後、密封し、接着剤でシールする。さらに、振りまぜてプルトニウムをHDEHPを含むシンチレータ層に抽出し、測定試料とする。

PSD法を用いた場合と用いない場合のエネルギースペクトルを解図Ⅲ-2に示す。



解図Ⅲ-2 エネルギースペクトル

#### 4. バックグラウンド計数率と分析目標値

PSD法を用いた場合のバックグラウンド計数率は0.1cpm、用いない場合は1.4cpmであった。PSD法を用いた場合のプルトニウムの分析目標値は平均回収率を75%、測定時間を100分、バックグラウンド計数の計数誤差の3倍以上を有意とした場合、およそ4mBq/試料（海水 0.04 mBq/ℓ、海産生物（灰）0.2mBq/g 灰、海底堆積物 70mBq/kg乾土）である。

解説Ⅲ－４ プルトニウムの分析におけるシンチレータについて

シンチレータは原則として抽出シンチレータを用いるが、抽出シンチレータに使用するHDEHP試薬の品質の良いものが得られない場合は乳化シンチレータを用いる。両シンチレータの比較を解表Ⅲ-2に示す。

解表Ⅲ－２ シンチレータの比較

	乳化シンチレータ	抽出シンチレータ
シンチレータの調製	市 販 品	自製:HDEHPの品質に注意
測定試料調製法	加温し良く振りまぜる	良く振りまぜる
調製－測定までの時間	ゲルが安定するまで(1hr)	二層分離まで(10min)
測定試料の保存性(推定期間)	1年程度	1年程度
出力波高値	低 い	高 い
クエンチャによる影響	比較的受けやすい	受けにくい
廃 棄	困難(出来ない)	逆抽出して排水基準以下に
シンチレータの価格	130円/20ml	50円/20ml
そ の 他	—————	PSD法へ応用出来る

### 解説Ⅲ－５ プルトニウム、 $^{210}\text{Po}$ 及び $^{241}\text{Am}$ の エネルギースペクトルとディスクリミネータの設定

アロカ社製LSC-LB1により得られたプルトニウム、 $^{210}\text{Po}$ 及び $^{241}\text{Am}$ のエネルギースペクトルの例を解図Ⅲ－3に示す。

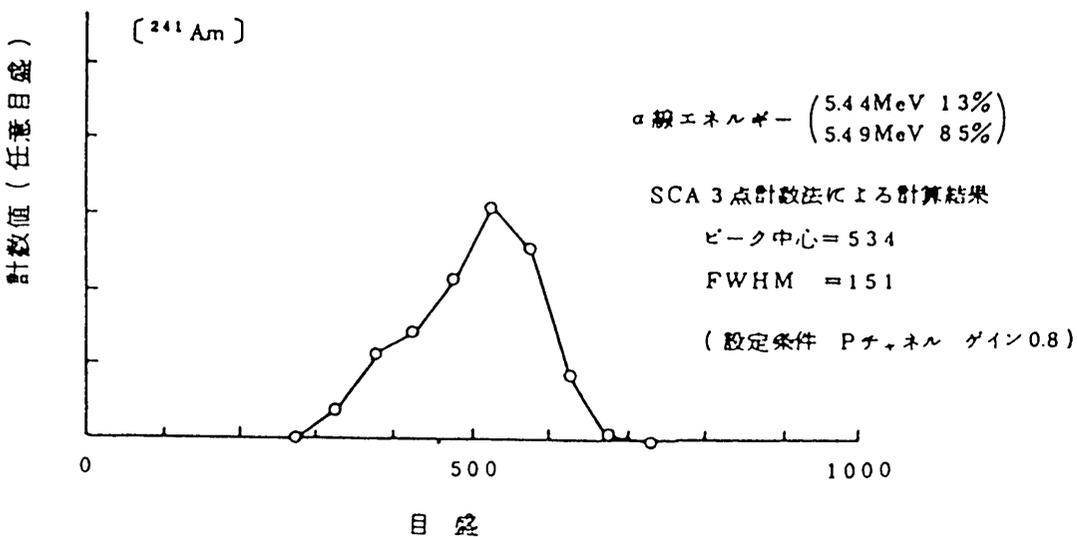
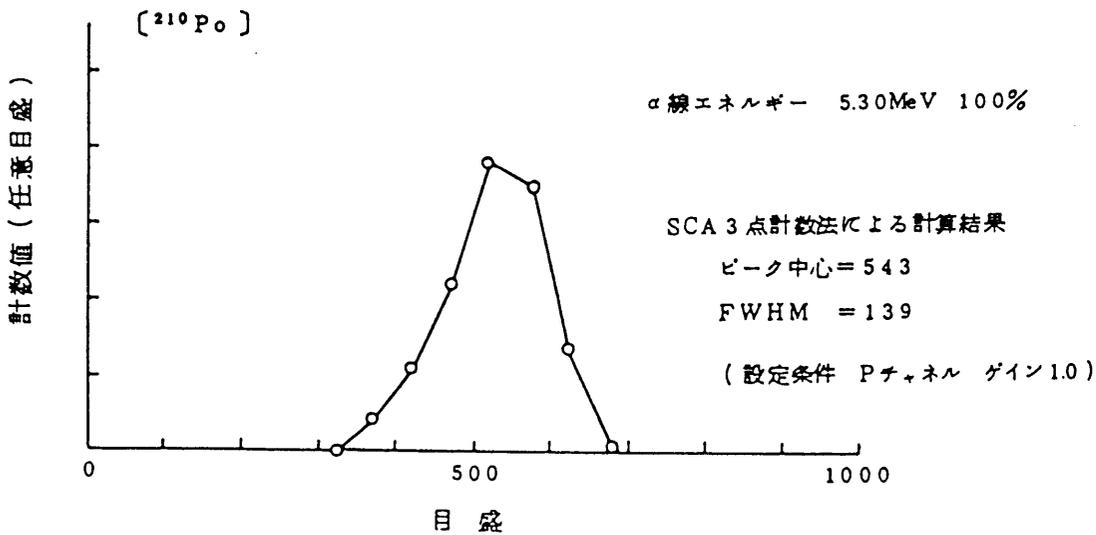
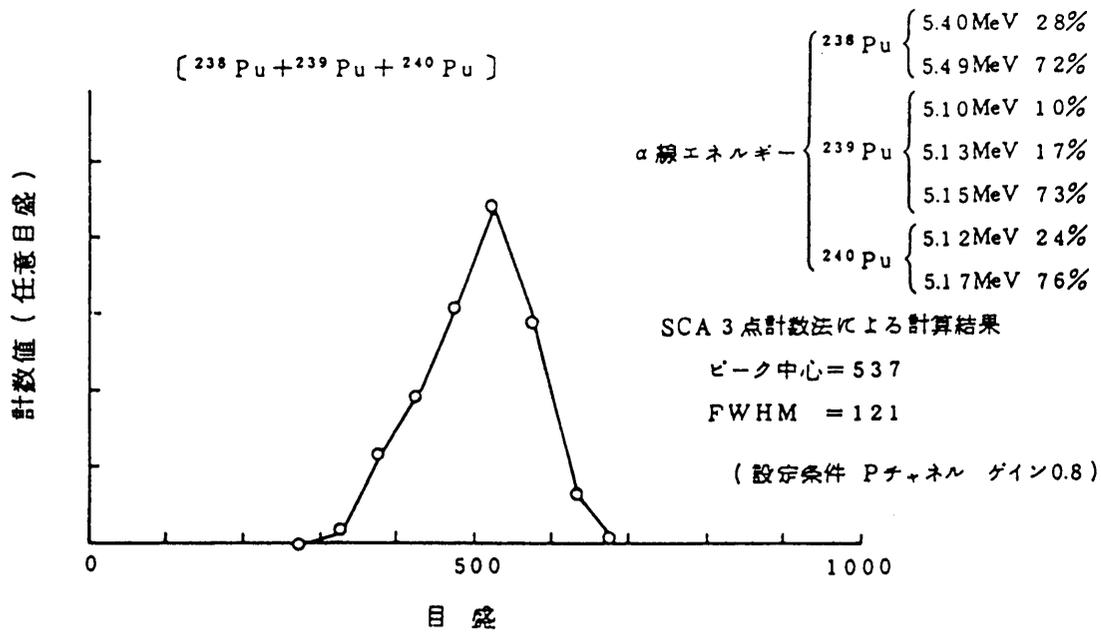
スペクトルはいずれの核種もピーク中心より低エネルギー側にテーリングがみられた。このように $\alpha$ ピークの形状がガウス分析を示さない場合には、ガウス分布を仮定したSCA3点計数法により計算されたディスクリミネータレベルよりLLDをより小さめに設定する必要がある。

クエンチャとして四塩化炭素を添加した場合の $^{241}\text{Am}$ の $\alpha$ ピークの変位は解図Ⅲ－4のようになる。(なお、オゾン層保護のため同様の結果が得られるアセトフェノンを用いること。)

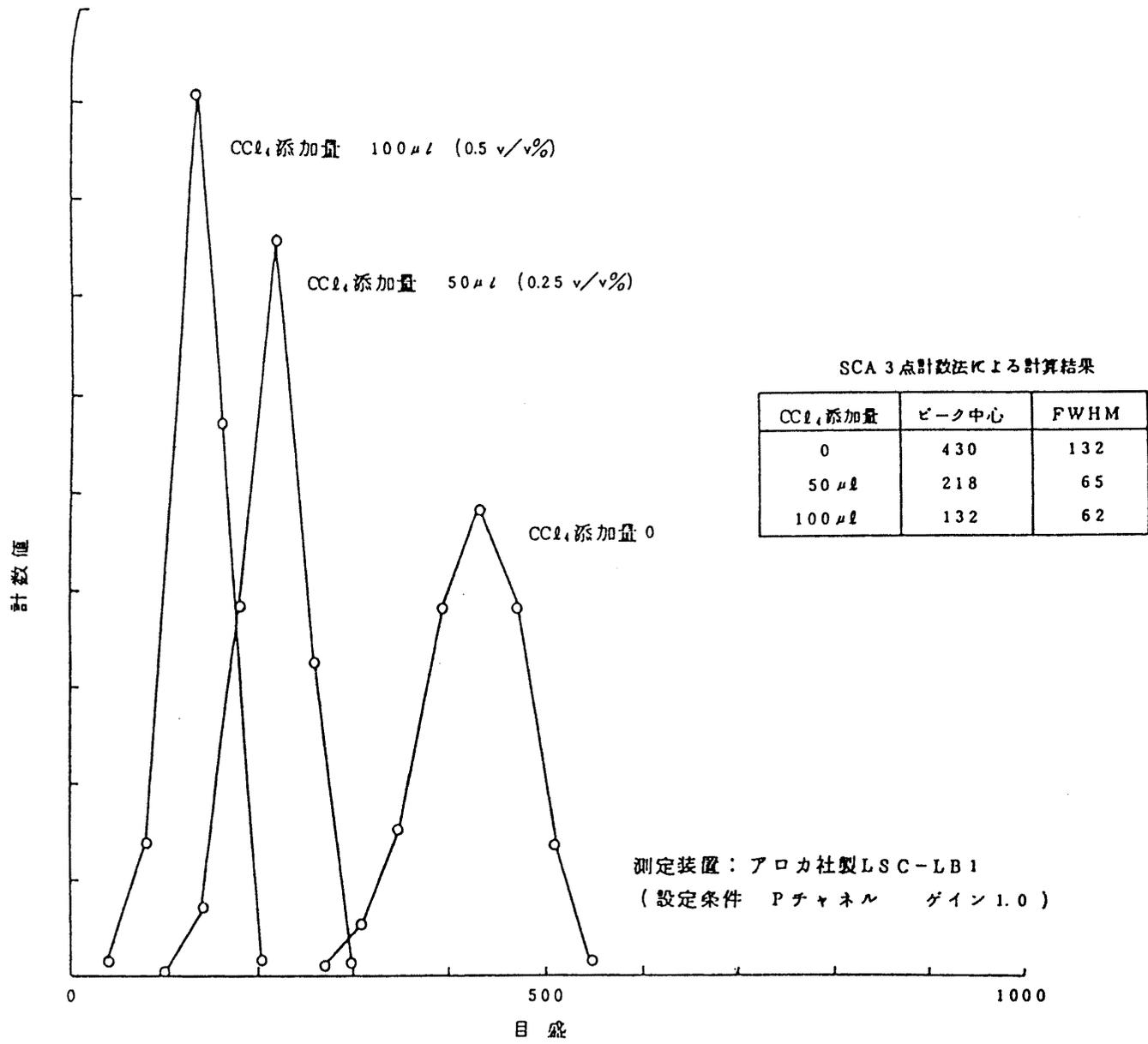
また、 $^{210}\text{Po}$ 及び $^{241}\text{Am}$ 標準線源を用い、アロカ社製LSC-LB1より得られたP vs. R (ESCR)及びFWHM vs. R (ESCR)の関係を解図Ⅲ－5及び解図Ⅲ－6に示す。

\*  $^{241}\text{Am}$ の場合は崩壊形式による影響もある。

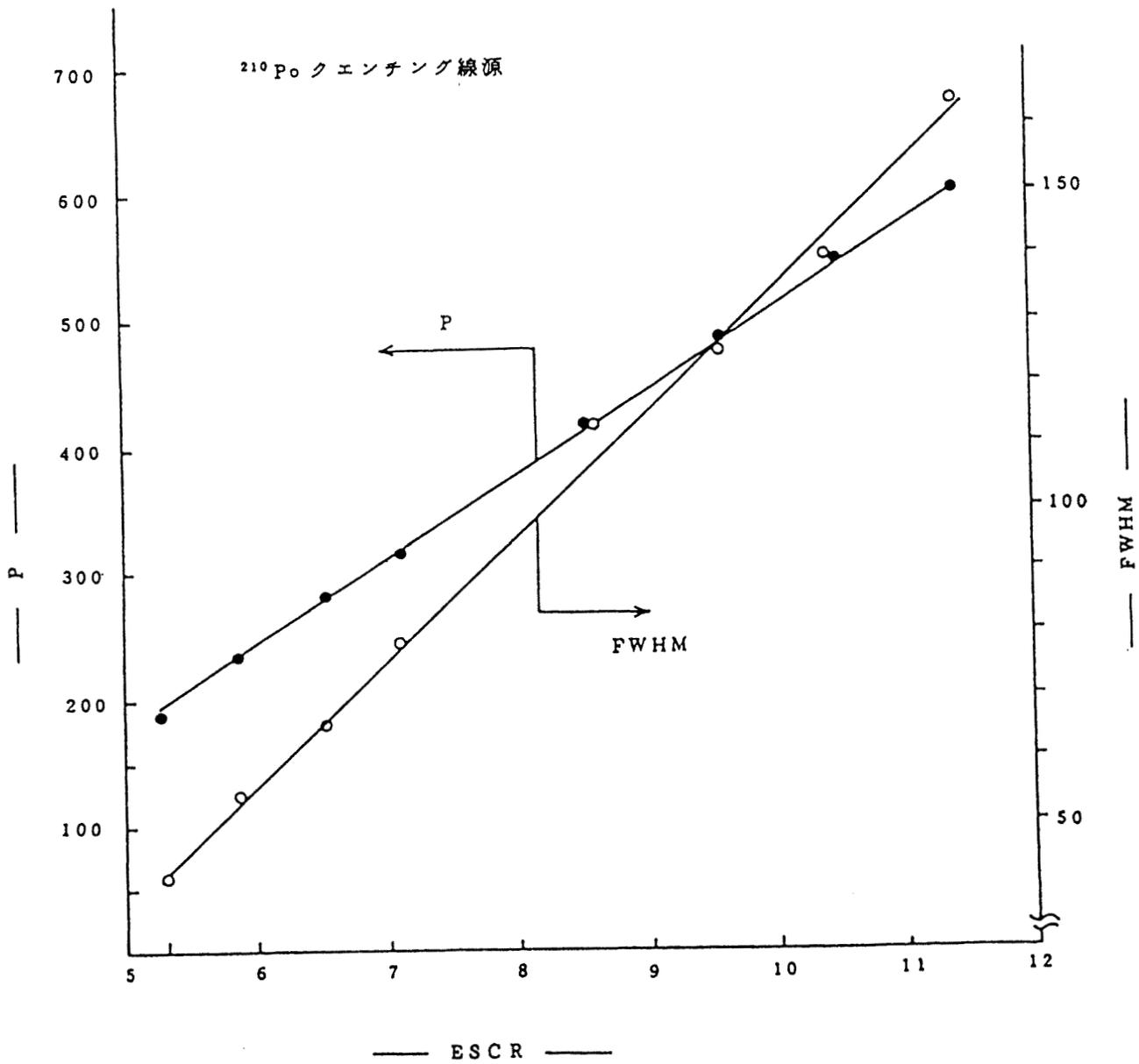
\*\* 解説Ⅲ－2参照



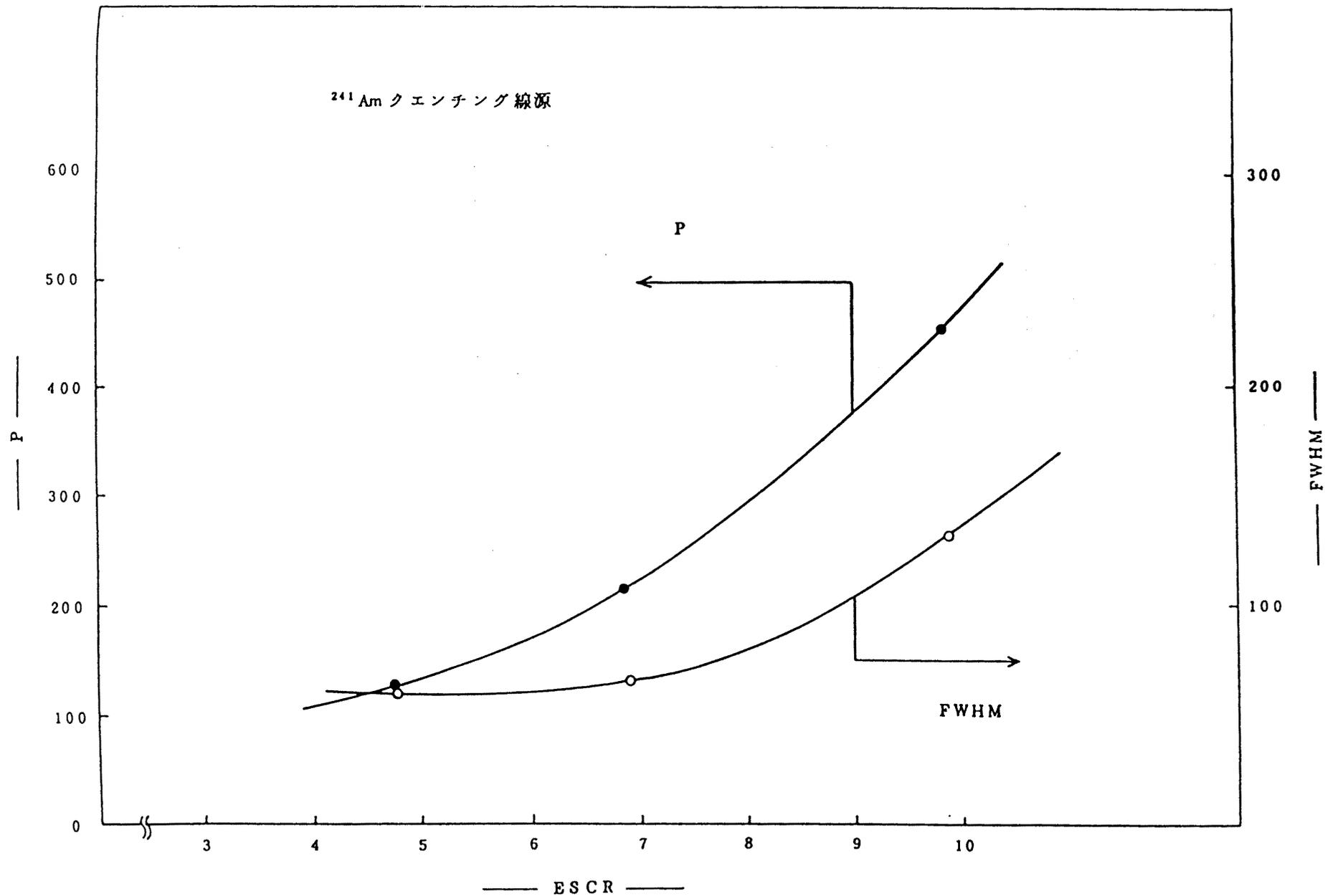
解図III-3 エネルギースペクトル (例) (測定装置: アロカ社製 LSC-LB1)



解図Ⅲ-4 <sup>241</sup>Amのエネルギースペクトル(例)



解図Ⅲ-5 ESCR値とピーク中心P及び半値幅FWHMとの関係 ( $^{210}\text{Po}$ )



解図Ⅲ-6 ESCR値とピーク中心P及び半値幅FWHMとの関係 ( $^{241}\text{Am}$ )

解説Ⅲ－6 プルトニウムの分析における平均回収率について

3分析機関において、海水、海産生物および土壌の各標準試料（解説Ⅲ－1）中のプルトニウムを分析した結果、回収率の平均値は解表Ⅲ－3のとおりであった。この結果から判断してプルトニウム濃度の算出には回収率として75%値を用いることとした。

解表Ⅲ－3 回収率の測定結果

試料 \ 機関	A	B	C	平均値
海水	81.9	81.2	74.8	77.7
	80.6	77.0	73.7	
	73.7	78.3		
海産生物（灰）	72.4	84.2	72.7	71.6
	53.4	76.8	75.4	
	57.7	75.1	78.0	
			70.6	
土壌	75.5	66.1	73.1	71.9
	74.3	62.9	77.2	
	74.0	71.7		

〔回収率（%）〕

参 考 文 献

## 参考文献リスト

### 放射性ストロンチウムの分析

1. K. Buchtela and M. Tschurlovits, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 26, 333(1975)  
“Eine Methode zur Bestimmung von Sr-89, Sr-90 and Y-90(in wässriger Lösung mittels Flüssigszintillation)”
2. J.E. Hardcastle, W.H. Fuller and R.J. Hannaple, J. Radioanal. Chem., 13, 141(1973)  
“Assay of  $^{89}\text{Sr}$  in Plant and Soil Samples by Liquid Scintillation Counting”
3. J.G.T. Regan and J.F.C. Tyler, Analyst, 101, 32(1976)  
“The Determination of Strontium-90 and Strontium-89 in Water without Separation of Strontium from Calcium”
4. 三橋俊彦、阪上正信、Radioisotopes, 26, 673(1977)  
“牛乳中 $^{90}\text{Sr}$ の $^{90}\text{Y}$ 溶媒抽出による定量”
5. G.S. Uyesugi and A.E. Greenberg, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 16, 581(1965)  
“Simultaneous Assay of Strontium-90 and Yttrium-90 by Liquid Scintillation Spectrometry”
- ※ 6. R.B. Randolph, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 26, 9(1975)  
“Determination of Strontium-90 and Strontium-89 by Cerenkov and Liquid-Scintillation Counting”
7. B. Carmon, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 30, 97(1979)  
“The Use of Cerenkov Radiation for the Assay of Radiostrontium in Aqueous Solutions”
8. B. Carmon and U. German, Health Phys., 42, 529(1982)  
“Radioassay of Low $^{90}\text{Sr}$  Activities by Early Counting of the Cerenkov Radiation Induced by the Ingrowing Daughter Nuclide  $^{90}\text{Y}$ ”
9. 清水武彦、林直美、坪 寛、野村保、大和愛司、岩井誠、保健物理、20, 139(1985)  
“チェレンコフ光測定と液体シンチレーション測定による $^{89}\text{Sr}$ と $^{90}\text{Sr}$ の迅速分析法の検討”

10. 電力中央研究所報告、研究所報告 283053 (昭和59年)  
 “海水中の放射性ストロンチウムの迅速分離法の開発ならびにチェレンコフ測定法の適用性の検討”
11. B. Carmon and Y. Eliah, 5. Congress of the international radiation protection society on radiation protection. JERUSALEM, ISRAEL(1980)  
 “A Relatively Fast Assay of Sr-90 by Measuring the Cherenkov Effect from the Ingrowing Y-90”
12. G.H. Kramer and J.M. Davies, Anal. Chem., 54, 1428(1982)  
 “Isolation of Strontium-90, Yttrium-90, Promethium-147, and Cerium-144 from Wet Ashed Urine by Calcium Oxalate Coprecipitation and Sequential Solvent Extraction”
13. S.A. Reynolds and J.S. Eldridge, CONF-790859-1(1979)  
 “Investigation of Cerenkov Counting of Environmental Strontium-90”

#### 放射性セリウムの分析

14. 木村健二郎、南英一、本田雅健、横山祐之、池田長生、不破敬一郎、夏目晴夫、石森達二郎、佐々木行美、酒井均、水町邦彦、浅田正子、阿部修治、馬淵久夫、鈴木康雄、小松一弘、中田賢次、分析科学、3, 335(1954)  
 “第五福龍丸に降った放射性物質について”
15. G.H. Kramer and J.M. Davies, Anal. Chem., 54, 1428(1982)  
 “Isolation of Strontium-90, Yttrium-90, Promethium-147, and Cerium-144 from Wet Ashed Urine by Calcium Oxalate Coprecipitation and Sequential Solvent Extraction”

#### 放射性コバルトの分析

- ※16. N. Ikeda, S. Abe and R. Seki, Radioisotopes, 24, 857(1975)  
 “A Rapid Radiochemical Method for Determination of  $^{60}\text{Co}$  in Environment Samples”
17. 佐藤兼章、虻川成司、樋口英雄、坂東昭次、浜口博、Radioisotopes, 28, 285(1979)  
 “海産生物中放射性および安定コバルトの定量”
18. H.C. Claassen, Anal. Chim. Acta, 52, 229(1970)  
 “The Determination of Low Level of Cobalt-60 in Environmental Waters by Liquid Scintillation Counting”

19. N. Ikeda and R. Seki, ICRR(1979)  
 "Application of the Liquid Scintillation Counting Technique to the Environmental Radiochemical Analysis"
20. M. Yamamoto, M. Matsui, S. Igarashi, M. Yoshioka, H. Hayakawa and T. Kitagawa, J. Radiat. Res., 20, 264(1979)  
 "Distribution and Behavior of  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  in the Sediment at Urazoko Bay"

#### 放射性ヨウ素の分析

21. S. Palágyi and T. Szabová, J. Radioanal. Chem., 45, 285(1978)  
 "Determination of  $^{131}\text{I}$  in Soil using a Liquid Anion Exchanger and Liquid Scintillation Technique"
- ※22. J.M. Matuszek and C.J. Paperiello, Nucl. Technol., 27, 514(1975)  
 "The Influence of Nonstatistical Variations on Low-Level Measurements of  $^{131}\text{I}$  in Milk"
- ※23. S. Palágyi, J. Radioanal. Chem., 29, 271(1976)  
 "Rapid Determination of  $^{131}\text{I}$  in Environmental Waters Using a Liquid Anion Exchanger"
24. W.W. Flynn, Anal. Chim. Acta, 76, 113(1975)  
 "A Rapid Solvent Extraction Method for the Determination of Radio-Iodine in Sea Water"
- ※25. J.J. Gabay, C.J. Paperiello, S. Goodyear, J.G. Daly and J.M. Matuszek, Health Phys., 26, 89(1974)  
 "A Method for Determining Iodine-129 in Milk and Water"
- ※26. S. Palágyi and R. Markusová, Radiochem. Radioanal. Lett., 32, 301(1978)  
 "Determination of  $^{131}\text{I}$  in Milk Using a Liquid Anion Exchange and a Liquid Scintillation Technique"
- ※27. 桐田博史、本多哲太郎、木村敏正、浜口博、保健物理、12, 191(1977)  
 "陰イオン交換樹脂カラム吸着-γ線スペクトロメトリーによる原乳中 $^{131}\text{I}$ の簡易分析法"

28. D.L. Horrocks, J. Radioanal. Chem., 65, 307(1981)  
 “Qualitative and Quantitative Measurements of Radioiodines”
29. S. Palágyi and R. Markusová, Radiochem. Radioanal. Lett., 26, 269(1976)  
 “Measurement of  $^{131}\text{I}$  by a Liquid Scintillation Method”
30. S. Palágyi, INIS-MF--3074(1975)  
 “Radioactivity Measurement of  $^{131}\text{I}$  by Liquid Scintillation Detector”
31. Kar-Chun To, Anal. Chem., 57, 1490(1985)  
 “Determination of Iodine-131 at Low Concentration in Formaldehyde-Preserved Milk”

#### プルトニウムの分析

- ※32. Y. Baba, J. Radioanal. Chem., 79, 83(1983)  
 “Determination of Plutonium by Solvent Extraction-Liquid Scintillation Method”
33. G.C. Hands and B.O.B. Conway, Analyst, 102, 934(1977)  
 “Simultaneous Determination of Plutonium Alpha-and Beta-activity in Liquid Effluents and Environmental Samples”
- ※34. D.L. Bokowski, Amer. Ind. Hyg. Ass. J., 35, 333(1974)  
 “Liquid Scintillation Counting for Plutonium in Environmental Samples”
- ※35. W.J. McDowell, D.T. Farrar and M.R. Billings, Talanta, 21, 1231(1974)  
 “Plutonium and Uranium Determination in Environmental Samples: Combined Solvent Extraction-Liquid Scintillation Method”
36. M. Hakanen, Helinä Korpela, T. Jaakkola and Elina Kiirikki, COO--3011-10, 79(1978)  
 “Determination of  $^{241}\text{Pu}$  in Environmental Samples by Liquid Scintillation Counting”
37. N. Haidvogel, G. Reitsamer and F. Grass, Atomkernenergie, 22, 117(1973)  
 “Sorptionsuntersuchungen von Plutonium, Americium und Curium an Ionen-austauschern in Gemischt-Wässrig-Alkoholischen Lösungen”
38. R. Hiebert, H. Ide and H. Boyd, Health Phys., 32, 311(1977)  
 “Low-Background Plutonium Assaying Using a Modified Commercial Liquid Scintillation Detector and Sample Changer”

39. 岡林弘之、日本原子力学会誌、25, 776(1983)  
 “環境中の超ウラン元素”
40. 山縣登、阪上正信、原子力工業、23(7), 73(1977)  
 “放射化学分析”
41. 金沢大学 低レベル放射能実験施設研究概要・年次報告 LLRL-AR-6, p 8  
 (1981. 4~1982. 3)  
 “Pu, Amの分離、定量-HDEHP抽出またはDBDEC (M) P抽出とLEPS測定の適用”
42. L. R. Anspaugh, J. H. Shinn, P. L. Phelps and C. Kennedy, Health Phys.,  
29, 571(1975)  
 “Resuspension and Redistribution of Plutonium in Soils”
43. T. E. Hakonson, Health Phys., 29, 583(1975)  
 “Environmental Pathways of Plutonium into Terrestrial Plants and Animals”
44. W. R. Schell and R. L. Watters, Health Phys., 29, 589(1975)  
 “Plutonium in Aqueous Systems”
- ※45. C. W. Sill, Health Phys., 29, 619(1975)  
 “Some Problems in Measuring Plutonium in the Environment”
46. A. Yamato, Radioisotopes, 30, 104(1981)  
 “Fallout  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  and  $^{90}\text{Sr}$  in Surface-Air in Ibaraki-Prefecture, Japan”
47. A. Yamato, Radioisotopes, 31, 235(1982)  
 “Deposition of  $^{241}\text{Am}$  and  $^{239+240}\text{Pu}$  at Tokai, Ibaraki Prefecture”
48. A. Yamato, Radioisotopes, 33, 60(1984)  
 “Plutonium and Radiocerium Contents in Shallow Sea Sediment Collected at  
 off-Shore Ibaraki Prefecture, Japan”
49. M. Yamamoto, M. Matsui, S. Igarashi, M. Yoshioka, H. Hayakawa and T. Kitagawa, J.  
 Radiat. Res., 20, 264(1979)  
 “Distribution and Behavior of  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$  in the Sediment at  
 Urazoko Bay”
50. M. Yamamoto, S. Yamamori, K. Komura and M. Sakanoue, J. Radiat. Res., 21, 204(1980)  
 “Behavior of Plutonium and Americium in Soils”

51. T. Matunami and T. Mamuro, J. Radiat. Res., 22, 154(1981)  
 "Activity Ratios of  $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  in Fall-out Samples Collected in the Period of 1961-1968"
52. E. Mathew, V.M. Matkar and K.C. Pillai, J. Radioanal. Chem., 62, 267(1981)  
 "Determination of Plutonium, Americium and Curium in Environmental Materials"
53. A. Yamato, J. Radioanal. Chem., 75, 265(1982)  
 "An Anion Exchange Method for the Determination of  $^{241}\text{Am}$  and Plutonium in Environmental and Biological Samples"
54. R.P. Bernabee, Health Phys., 44, 688(1983)  
 "A Rapid Method for the Determination of Americium-Curium, Plutonium and Thorium in Biological and Environmental Samples"
- ※55. J.C. Veselsky, Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 27, 499(1976)  
 "The Determination of Plutonium in Environmental Samples by Extraction with Tridodecylamine"
- ※56. S.A. Reynolds and T.G. Scott, Radiochem. Radioanal. Letters, 23, 269(1975)  
 "Determination of Plutonium in Environmental Samples Part I. Development of Method"
- ※57. T.G. Scott and S.A. Reynolds, Radiochem. Radioanal. Letters, 23, 275(1975)  
 "Determination of Plutonium in Environmental Samples Part II. Procedures"
58. N.P. Singh, C.J. Zimmerman, L.L. Lewis and M.E. Wrenn, Radiochimica Acta, 35, 219(1984)  
 "Radiochemical Determination of Uranium, Thorium and Plutonium in Soft Tissues"
- ※59. M.B. Lovett and D.M. Nelson, Panel Proceedings Series(92-0-021081-3), 27(1981)  
 "Determination of Some Oxidation States of Plutonium in Sea Water and Associated Particulate Matter"
60. A.D. Site and V. Marchionni, Chromatography Biochemistry Medicine Environ. Res., 1, 69(1983)  
 "Separation of Plutonium and Americium-241 in Environmental samples Extraction Chromatography"

- ※61. N.P. Singh, C.J. Zimmerman, L.L. Lewis and M.E. Wrenn, Nucl. Instrum. Methods, 223, 558(1984)  
 “Quantitative Determination of Environmental Levels of Uranium, Thorium and Plutonium in Bone by Solvent Extraction and Alpha Spectrometry”
- ※62. P.B. Hahn, E.W. Bretthauer, P.B. Altringer and N.F. Mathews, EPA-600/7-77-078(1977)  
 “Fusion Method for the Measurement of Plutonium in Soils: Single-Laboratory Evaluation and Interlaboratory Collaborative Test”
63. 上島久正、鹿島正俊、松岡理、保健物理、11, 97(1976)  
 “液体シンチレーションカウンターによる生物試料中プルトニウムの測定”
64. H. Ghafourian, I. Bayat and H. Rahimi, Radiochem. Radioanal. Letters, 53, 121(1982)  
 “Determination of Plutonium /  $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$  / in Various Soil Samples in Tehran”
65. M. Yamamoto, J. Radioanal. Nucl. Chem., 90, 401(1985)  
 “Rapid Dissolution of Plutonium in Soil by Fusion with Ammonium Hydrogen Sulfate Followed by Plutonium Determination by Ion Exchange and Alpha Spectrometry”
66. E.A. Bondietti, J. Radioanal. Nucl. Chem., 91, 221(1985)  
 “Oxidation States of  $^{239}, ^{240}\text{Pu}$  in Global Fallout”
67. R. Hiebert, H. Ide and H. Boyd, Health Phys., 32, 311(1977)  
 “Low-Background Plutonium Assaying Using a Modified Commercial Liquid Scintillation Detector and Sample Changer”

液体シンチレーション測定法

68. 液体シンチレーション計数技術（講座）I～XII  
 Radioisotopes, 24 (1)～(12) (1975)
69. Liquid Scintillation Counting, Recent Applications and Development Vol. 1～2  
 ed. C. Peng, D.L. Horrocks and E.L. Alpen  
 Academic Press 1980
70. 液体シンチレーション測定法 石河寛昭 南山堂 1981

$\alpha - \beta$ 線波形弁別法

71. J. H. Thorngate, W. J. McDowell and D. J. Christian, Health Phys., 27, 123(1974)  
“An Application of Pulse Shape Discrimination to Liquid Scintillation Alpha Spectroscopy”
72. J. W. McKlveen and W. J. McDowell, Nucl. Technol., 28, 159(1976)  
“Some Studies of Reflector Construction and Electronics Configurations for Optimizing Pulse-Height and Pulse-Shape Resolution in Alpha Liquid-Scintillation Spectrometry”
73. D. L. Horrocks, Appl. Spectrosc., 24, 397(1970)  
“Pulse Shape Discrimination with Organic Liquid Scintillator Solutions”
74. 野口正安、佐藤兼章、樋口英雄、Radioisotopes, 33, 835(1984)  
“ $\alpha - \beta$ 波形弁別法による微弱 $\alpha$ 放射能測定”
75. 佐藤兼章、野口正安、樋口英雄、北村清司、Radioisotopes, 33, 841(1984)  
“ $\alpha - \beta$ 波形弁別法による微弱 $\alpha$ 放射能測定”
76. R. Hiebert, H. Ide and H. Boyd, Health Phys., 32, 311(1977)  
“Low-Background Plutonium Assaying Using a Modified Commercial Liquid Scintillation Detector and Sample Changer”

本書の作成経過、委員会名簿  
及び会議開催経過

### 1. 本書の作成経過

本書は放射能測定調査委託費（放射能調査対策研究委託に係るもの）で、財団法人 日本分析センターに委託した成果を、放射線審議会測定部会に諮問して作成したものである。

### 2. 放射能調査対策研究委託時の「液体シンチレーションカウンタを用いた環境試料中の放射性核種分析法検討委員会」の委員会名簿

五十嵐 修一 福井県衛生研究所放射能課 研究員  
池田 長生 社団法人 日本アイソトープ協会 常務理事  
河村 正一 神奈川大学理学部 教授  
関 季紀 筑波大学化学系 講師  
野口 正安 日本原子力研究所ラジオアイソトープ原子炉研修所 主任研究員  
野村 保 動力炉・核燃料開発事業団東海事業所放射線管理部第二課 課長  
林 直美 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  
平井 保夫 茨城県公害技術センター放射能部 部長  
望月 勉 ビームオペレーション株式会社 取締役社長

事務局 財団法人日本分析センター  
樋口 英雄、佐藤 兼章、北村 清司

### 3. 放射線審議会測定部会

#### イ) 放射線審議会測定部会の委員会名簿

##### 委員

(部会長) 浜田 達二 社団法人 日本アイソトープ協会 常務理事  
○池田 長生 社団法人 日本アイソトープ協会 常務理事  
柏木 寛 電子技術総合研究所 所長  
○滝沢 行雄 秋田大学医学部 教授  
○谷村 顕雄 国立衛生試験所 所長

##### 専門委員

阿部 史朗 放射線医学総合研究所 特別研究官  
岡野 真治 理化学研究所宇宙研究室 囑託  
押野 昌夫 日本原子力研究所東海研究所保健物理部 部長  
小山 雄生 農業環境技術研究所環境管理部計測情報課分析研究室 室長  
○阪上 正信 金沢大学 名誉教授  
戸田 誠 海上保安庁水路部海洋調査課海洋汚染調査室 室長  
○広瀬 勝己 気象庁気象研究所地球化学研究部第二室 室長  
深津 弘子 財団法人 日本分析センター 分析部調査役  
○大和 愛司 動力炉・核燃料開発事業団環境技術開発推進本部 次長  
吉田 勝彦 水産庁中央水産研究所海洋生産部海洋放射能研究室 室長

○印はワーキンググループⅡの方

事務局 原子力安全局原子力安全課防災環境対策室

(敬称略・五十音順)

ロ) 放射線審議会測定部会の開催日

測定部会及び測定部会の委員、専門委員の一部の方から構成したワーキンググループⅡで審議を行った。

測定部会開催日

第15回	平成2年 3月26日
第16回	平成2年11月19日

ワーキンググループⅡ

第1回	平成2年 4月24日
第2回	平成2年 6月 4日
第3回	平成2年 7月13日
第4回	平成2年 9月12日

特定物質の規制等によるオゾン層の保護に関する告示により、試薬等の一部を改訂した。本分析法の一部改訂にあたっては、下記委員の方々に協力を得た。

池田 長生	社団法人 日本アイソトープ協会
白石 文夫	立教大学
杉山 広和	岡山県環境保健センター
関根 敬一	日本原子力研究所
山崎 慎一	農林水産省農業科学技術研究所
山本 政義	金沢大学
渡辺 均	動力炉・核燃料開発事業団

(敬称略・五十音順)

## 文部科学省放射能測定法シリーズ

- |                                      |                  |
|--------------------------------------|------------------|
| 1. 全ベータ放射能測定法                        | 昭和 51 年 9 月(2 訂) |
| 2. 放射性ストロンチウム分析法                     | 昭和 58 年12 月(3 訂) |
| 3. 放射性セシウム分析法                        | 昭和 51 年 9 月(1 訂) |
| 4. 放射性ヨウ素分析法                         | 平成 8 年 3 月(2 訂)  |
| 5. 放射性コバルト分析法                        | 平成 2 年 2 月(1 訂)  |
| 6. NaI(Tl) シンチレーションスペクトロメータ機器分析法     | 昭和 49 年 1 月      |
| 7. ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー      | 平成 4 年 8 月(3 訂)  |
| 8. 放射性ジルコニウム分析法                      | 昭和 51 年 9 月      |
| 9. トリチウム分析法                          | 平成 8 年 3 月(1 訂)  |
| 10. 放射性ルテニウム分析法                      | 平成 8 年 3 月(1 訂)  |
| 11. 放射性セリウム分析法                       | 昭和 52 年10 月      |
| 12. プルトニウム分析法                        | 平成 2 年11 月(1 訂)  |
| 13. ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法 | 昭和 57 年 7 月      |
| 14. ウラン分析法                           | 平成 8 年 3 月(1 訂)  |
| 15. 緊急時における放射性ヨウ素測定法                 | 昭和 52 年10 月      |
| 16. 環境試料採取法                          | 昭和 58 年12 月      |
| 17. 連続モニタによる環境 $\gamma$ 線測定法         | 平成 8 年 3 月(1 訂)  |
| 18. 熱ルミネセンス線量計を用いた環境 $\gamma$ 線量測定法  | 平成 2 年 2 月(1 訂)  |
| 19. ラジウム分析法                          | 平成 2 年 2 月       |
| 20. 空間 $\gamma$ 線スペクトル測定法            | 平成 2 年 2 月       |
| 21. アメリシウム分析法                        | 平成 2 年11 月       |
| 22. プルトニウム・アメリシウム逐次分析法               | 平成 2 年11 月       |
| 23. 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        | 平成 8 年 3 月(1 訂)  |
| 24. 緊急時におけるガンマ線スペクトロメトリーのための試料前処理法   | 平成 4 年 8 月       |
| 25. 放射性炭素分析法                         | 平成 5 年 9 月       |
| 26. ヨウ素-129 分析法                      | 平成 8 年 3 月       |

**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  
(1訂)**

平成9年1月31日 第1刷 発行

発 行 所

**財 団 法 人 日 本 分 析 セ ン タ ー**

〒263-0002 千葉県千葉市稲毛区山王町 295-3  
電 話 (043) 423-5325 (代表)  
(043) 424-8663 (直通)  
F A X (043) 423-4071