

# 環境試料中アメリシウム 241、 キュリウム迅速分析法

平成 16 年

文 部 科 学 省

科学技術・学術政策局

原子力安全課防災環境対策室

## 目 次

|                                       |    |
|---------------------------------------|----|
| 第1章 序 論                               | 1  |
| 第2章 試薬の調製等                            | 3  |
| 2.1 試薬の調製方法                           | 3  |
| 第3章 大気浮遊じん                            | 6  |
| 3.1 試薬・器具・装置                          | 6  |
| 3.2 分析操作                              | 7  |
| 第4章 土 壤                               | 10 |
| 4.1 試薬・器具・装置                          | 10 |
| 4.2 分析操作                              | 11 |
| 第5章 降下物                               | 14 |
| 5.1 試薬・器具・装置                          | 14 |
| 5.2 分析操作                              | 15 |
| 第6章 飲料水                               | 18 |
| 6.1 試薬・器具・装置                          | 18 |
| 6.2 分析操作                              | 19 |
| 第7章 牛 乳                               | 22 |
| 7.1 試薬・器具・装置                          | 22 |
| 7.2 分析操作                              | 23 |
| 第8章 葉 菜                               | 25 |
| 8.1 試薬・器具・装置                          | 25 |
| 8.2 分析操作                              | 26 |
| 第9章 $\alpha$ 線スペクトロメトリー               | 28 |
| 9.1 測定試料の調製                           | 28 |
| 9.2 測定                                | 28 |
| 9.3 放射能濃度の計算                          | 30 |
| 第10章 Ge半導体検出器を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリー | 32 |
| 10.1 試薬・器具・装置                         | 32 |

|  |    |
|--|----|
| 10.2 効率校正用線源の調製 .....                  | 32 |
| 10.3 試料の測定 .....                       | 32 |
| 解 説                                    |    |
| 解説 A アメリシウム及びキュリウムの分離・精製 .....         | 37 |
| 解説 B 測定試料の調製法（フッ化ネオジム共沈法） .....        | 52 |
| 解説 C ICP-MS を用いたアメリシウム 241 の定量法 .....  | 57 |
| 解説 D LEPS を用いたアメリシウム 241 非破壊測定法 .....  | 63 |
| 解説 E 本分析法の環境試料への適用結果 .....             | 67 |
| 解説 F クロスチェック結果 .....                   | 70 |
| 付 録                                    |    |
| 付録 1 主なアメリシウム、キュリウム同位体の核データと比放射能 ..... | 75 |
| 付録 2 アメリシウム 241、キュリウム迅速分析法の流れ図 .....   | 76 |
| 付録 3 参考文献 .....                        | 80 |

## 第 1 章 序 論

再処理施設の事故時においては、環境中に放出される放射性核種の種類が原子炉施設と異なる場合があると考えられる。特に、アメリシウム、キュリウム等の $\alpha$ 線放出核種に着目した迅速な環境モニタリング手法の確立が必要となる。このため、環境試料中のアメリシウム及びキュリウムを迅速に定量することを目的として本マニュアルを作成した。

本マニュアルの対象試料は、「原子力施設等の防災対策について」\*<sup>1</sup>及び「緊急時環境放射線モニタリング指針」\*<sup>2</sup>におけるモニタリングの対象である大気浮遊じん、土壌、降下物、飲料水、牛乳及び葉菜とした。分析は、文部科学省放射能測定法シリーズ 28「環境試料中のプルトニウム迅速分析法」の分離・精製工程のイオン交換樹脂カラムの通過液から、アメリシウム及びキュリウムを分離・精製した。 $\alpha$ 線の測定は、シリコン半導体検出器を用いた。

従来の環境試料中のアメリシウム、キュリウムの分析法（文部科学省放射能測定法シリーズ 21「アメリシウム分析法」）は、アメリシウム及びキュリウムを陰イオン交換法等により分離・精製後電着し、シリコン半導体検出器を用いてその $\alpha$ 線を測定する方法であるが、試料の前処理、分解・抽出、分離・精製及び $\alpha$ 線測定の各工程に長時間を要することから、この方法をそのまま「緊急時の分析法」とすることは適当でない。

環境試料中のアメリシウム、キュリウムを、近年簡便な分離法として普及している抽出クロマトグラフィーにより分離・精製する。また、測定試料の調製は電着法によらず、より迅速なフッ化ネオジム共沈法を採用することにより、分析開始後 24 時間以内（ $\alpha$ 線計測時間 4 時間を含む）で結果を得ることができる緊急時に対応したアメリシウム、キュリウム迅速分析法とした。

また、高濃度の試料への対応とスクリーニングを目的として、上記迅速分析法に比べて検出感度は低い $\gamma$ 線スペクトロメトリーでアメリシウム 241 を定量する方法も併せて記載した。

本分析法による分析目標レベルを分析供試量等とともに表 1.1 に示す。

---

\*<sup>1</sup> 「原子力施設等の防災対策について」（平成 15 年 7 月一部改訂）、原子力安全委員会

\*<sup>2</sup> 「緊急時環境放射線モニタリング指針」（平成 13 年 3 月一部改訂）、原子力安全委員会

表 1.1 本法による分析目標レベル

| 試料     | 分析供試量  | LEPS <sup>1)</sup>                  | $\alpha$ 線スペクトロメトリ <sup>2)</sup> |                            | 単位  | 飲食物摂取制限<br>に関する指標<br>(Bg/kg) |
|--------|--|-------------------------------------|----------------------------------|----------------------------|---|------------------------------|
|        |  | <sup>241</sup> Am                   | <sup>241</sup> Am                | Cm                         |   |                              |
| 大気浮遊じん | 1m <sup>3</sup><br>(10 <sup>4</sup> m <sup>3</sup> ) | 400                                 | 5<br>(2×10 <sup>-4</sup> )       | 5<br>(2×10 <sup>-4</sup> ) | mBq/m <sup>3</sup>                            | —                            |
| 土壌     | 10g 乾土<br>(50g 乾土)                                   | 4 <sup>7)</sup>                     | 0.5<br>(0.04)                    | 0.5<br>(0.04)              | Bq/kg 乾土                                      | —                            |
| 降下物    | 0.05m <sup>2</sup> , 1日<br>(0.5m <sup>2</sup> , 1月)  | 10<br>(4)                           | 0.1<br>(4)                       | 0.1<br>(4)                 | Bq/m <sup>2</sup> 日<br>(mBq/m <sup>2</sup> 月) | —                            |
| 飲料水    | 2L<br>(100L)   | 4 <sup>3)</sup> 、0.1 <sup>4)</sup>  | 0.002<br>(0.02)                  | 0.002<br>(0.02)            | Bq/L<br>(mBq/L)                               | 1                            |
| 牛乳     | 0.1L<br>(1L)   | 4 <sup>3)</sup> 、0.2 <sup>5)</sup>  | 0.05<br>(2)                      | 0.05<br>(2)                | Bq/L<br>(mBq/L)                               | 1                            |
| 葉菜     | 0.1kg 生<br>(500g 生)                                  | 20 <sup>3)</sup> 、0.3 <sup>6)</sup> | 0.05<br>(4)                      | 0.05<br>(4)                | Bq/kg 生<br>(mBq/kg 生)                         | 10                           |

1) 直径 20mm、面積 200mm<sup>2</sup>、厚さ 10mmの検出器で 4 時間計測した場合

2) 計数効率 20%の検出器で 4 時間計測した場合

3) 試料をそのまま前処理なしに測定した場合

4) 2Lの試料を蒸発した乾固物を測定した場合

5) 1L相当の灰を測定した場合

6) 1kg相当の灰を測定した場合

7) 100g乾土を測定した場合

( )内は平常時分析法の値

[文部科学省放射能測定法シリーズ 21「アメリカウム分析法」(平成 2 年) から引用]

## 第 2 章 試薬等の調製

本分析法に必要な試薬の調製方法を示す。また、陰イオン交換樹脂のコンディショニング方法を示す。

試薬についての本文中の重量及び容量の数字は、単に調製の割合を示したもので、調製にあたっては必要に応じて適宜、増減する。

試薬は日本工業規格 (JIS) 試薬を用い、規格に規定されていないものについては、できるだけ純度の高いものを用いる。

### 2.1 試薬の調製方法

#### 2.1.1 標準溶液

プルトニウム 242 標準溶液 (0.03 Bq/ml) : プルトニウム 242 標準溶液<sup>\*1</sup>を硝酸 (1+1) で希釈し、プルトニウム 242 濃度が 0.03 Bq/ml の溶液を調製する。

アメリカシウム 243 標準溶液 (0.3 Bq/ml) : アメリカシウム 243 標準溶液を硝酸 (1+1) で希釈し、アメリカシウム 243 濃度が 0.3 Bq/ml の溶液を調製する。

#### 2.1.2 担体溶液

鉄 (Ⅲ) 担体溶液

鉄 (Ⅲ) 担体溶液 (50mgFe<sup>3+</sup>/ml) : 塩化鉄 (Ⅲ) 六水和物 48g に塩酸 (1+3) 20ml と水を加えて溶解し 200ml とする。

鉄 (Ⅲ) 担体溶液 (5mgFe<sup>3+</sup>/ml) : 鉄 (Ⅲ) 担体溶液 (50mgFe<sup>3+</sup>/ml) 10ml に水を加え 100ml とする。

#### 2.1.3 酸類

硝酸

硝酸 (3+2) : 硝酸 3 容と水 2 容の割合で混合する。

硝酸 (1+13) : 硝酸 1 容と水 13 容の割合で混合する。

塩酸

塩酸 (3+1) : 塩酸 3 容と水 1 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。

フッ化水素酸

ホウ酸

#### 2.1.4 アルカリ類

アンモニア水

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。

---

\*1 米国立標準技術研究所 (NIST) より、標準物質として販売されている。

水酸化ナトリウム溶液 (1.2W/V%) : 水酸化ナトリウム 12g に水を加えて溶解し 1L とする。

水酸化ナトリウム溶液 (4W/V%) : 水酸化ナトリウム 40g に水を加えて溶解し 1L とする。

#### 2.1.5 塩類

亜硝酸ナトリウム溶液 (20W/V%) : 亜硝酸ナトリウム 20g に水を加えて溶解し 100ml とする。

#### 2.1.6 その他の試薬

アスコルビン酸 : L(+)アスコルビン酸

フェノールフタレイン-エタノール溶液 (0.5W/V%) : フェノールフタレイン 500mg をエタノール 100ml に溶解する。

#### 2.1.7 混合溶液

硝酸-フッ化水素酸混合溶液\*<sup>2</sup> : 硝酸 378ml とフッ化水素酸 19ml に水を加えて 500ml とする。

硝酸 (1mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L) 混合溶液 : 硝酸 (1+13) 500ml にアスコルビン酸 13g を溶解する。

硝酸 (2mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L) 混合溶液 : 硝酸 (2+12) 500ml にアスコルビン酸 13g を溶解する。

硝酸 (1mol/L) - 0.5% 亜硝酸ナトリウム混合溶液 : 硝酸 (1+13) 200ml に亜硝酸ナトリウム 1g を溶解する。

#### 2.1.8 陰イオン交換樹脂のコンディショニング

- (1) イオン交換樹脂 (Dowex1-X8 100~200mesh) 500ml を 3L ビーカーに入れる。
- (2) 水 2L を加え、かくはん・静置後、デカンテーションにより上澄み液を捨てる。
- (3) (2) の操作を 2 回くり返す。
- (4) 水酸化ナトリウム溶液 (1.2W/V%) 1L を加え、かくはん・静置後、デカンテーションにより上澄み液を捨てる。
- (5) (2)~(3) の操作を行う。
- (6) 水でポリエチレン瓶、ビーカー等の容器に移し、樹脂を水に浸した状態で保存する。
- (7) 水 2L を加え、かくはん・静置後、デカンテーションにより上澄み液を捨てる。  
塩酸 (1+1) 2L を加え、かくはん・静置後、デカンテーションにより上澄み液を捨てる。

---

\*<sup>2</sup> ポリエチレン容器を用いて調製し、ポリエチレン容器に保存する。

この溶液の硝酸濃度は 10mol/L、フッ化水素酸濃度は 1mol/L である。

- (8) (1)～(7)でコンディショニングした樹脂 2ml を、ミニカラム(図 2.1 参照)に使用する直前に詰める。
- (9) ミニカラム上部に連結キャップを用いて注射器 (容量 50ml) を接続する。
- (10) 硝酸(3+2) 30ml を流す。

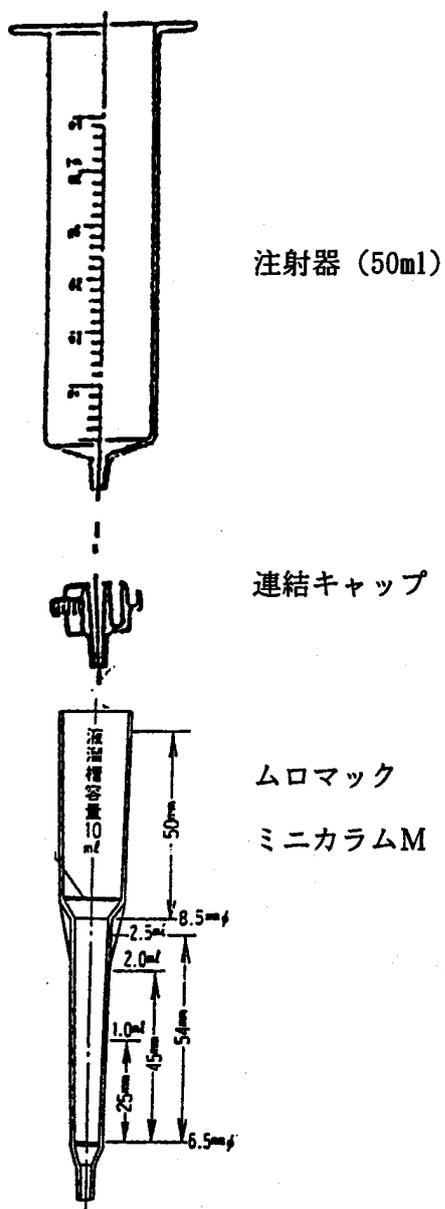


図 2.1 ミニカラムの一例

### 第 3 章 大気浮遊じん

固定ろ紙または連続移動ろ紙で集じんした大気中の浮遊じんを試料とする。

試料にアメリカシウム 243 標準溶液を一定量加えた後、マイクロウェーブ分解装置を用いて硝酸－フッ化水素酸の混合溶液でプルトニウム、アメリカシウム及びキュリウムを 60 分間浸出する。浸出液中のプルトニウムをPu<sup>4+</sup>に調整した後、硝酸系陰イオン交換法によりプルトニウムを分離除去する。アメリカシウム、キュリウムは、水酸化鉄共沈法で捕集後、抽出クロマトグラフィーにより分離・精製する。次いで、フッ化物共沈法によりろ紙上にマウントしてα線計測用試料とし、シリコン半導体検出器を用いたα線スペクトロメトリーによるアメリカシウム 243 トレーサー法で定量する。

試料の前処理、化学分離から測定までに要する時間は、約 17 時間である。

#### 3.1 試薬・器具・装置

試薬（第 2 章参照）

|       |  |
|-------|--|
| 標準溶液  | プルトニウム 242 標準溶液 (0.03 Bq/ml) : プルトニウムとアメリカシウム、キュリウムを逐次分析する場合に用いる。解説 A を参照のこと。<br>アメリカシウム 243 標準溶液 (0.3 Bq/ml)  |
| 担体溶液  | 鉄 (Ⅲ) 担体溶液 (5mg Fe <sup>3+</sup> /ml)  |
| 酸類    | 硝酸 (3+2)、(1+13)<br>塩酸 (3+1)、(1+2)<br>フッ化水素酸<br>硝酸－フッ化水素酸混合溶液* <sup>1</sup><br>硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液<br>硝酸(2mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液<br>硝酸(1mol/L)－0.5%亜硝酸ナトリウム混合溶液<br>ホウ酸 |
| アルカリ類 | 水酸化ナトリウム<br>アンモニア水   |
| 塩類    | 亜硝酸ナトリウム溶液 (20W/V%)  |
| 樹脂類   | Dowex1-X8(100～200mesh : 樹脂のコンディショニング方法については第 2 章 2.2 参照)、<br>TRU レジンカラム (市販品、Eichrom Technologies 社製、樹脂量 : 5ml)  |
| 器具    | イオン交換樹脂カラム (内径 7mm, 高さ 60mm のカラムに樹脂 2ml を充填する)、TRU レジン用カラム立て、ホットプレート、分離型ろ過器 (内径 45mm)、アスピレーター、メンブランフィルター (孔径0.45μm, 47mmφ)   |
| 装置    | マイクロウェーブ分解装置* <sup>2</sup> 、遠心分離機  |

\*<sup>1</sup> 混合比は、2.1.7 を参照

\*<sup>2</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA等

## 3.2 分析操作

### 3.2.1 試料の前処理

- (1) 試料を適当な大きさに裁断し、テフロン製の高压分解容器（容量 100 ml）に入れ、硝酸-フッ化水素酸混合溶液 20ml を加え、さらにプルトニウム 242 標準溶液（0.03 Bq/ml）1ml と アメリシウム 243 標準溶液（0.3 Bq/ml）1ml を正確に加える。
- (2) 専用の蓋をして高压分解ローターに組み込み、マイクロウェーブ分解装置にセットする。
- (3) マイクロウェーブ分解装置の出力と時間を所定の条件<sup>\*3</sup>に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。<sup>\*4</sup>
- (4) 分解終了後、分解容器を水浴中で 30 分間冷却する。
- (5) 分解容器の蓋を開け、ピンセットと硝酸(3+2) を用いてろ紙上の付着物を洗い落とす。ろ紙は捨てる。
- (6) 再び専用の蓋をして高压分解ローターに組み込みマイクロウェーブ分解装置にセットする。
- (7) マイクロウェーブ分解装置の出力と時間を所定の条件<sup>\*5</sup>に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。
- (8) 分解終了後、分解容器を水浴中で 30 分間冷却する。
- (9) 分解容器の蓋を開け、硝酸（3+2）を用いて内容物を別に用意した 200ml テフロンビーカーに移す。
- (10) 亜硝酸ナトリウム溶液(20W/V%) 5mlを加え、かくはん後、ホットプレート上で約 30 分間加熱する。<sup>\*6</sup>
- (11) 液量が 30ml 以下の時は、硝酸(3+2) を加え 30~40ml とした後、再度、亜硝酸ナトリウム溶液(20W/V%) 5ml を加え、かくはん後、ホットプレート上で約 30 分間加熱する。
- (12) (11)の操作をくり返す。
- (13) 硝酸(3+2) を加え液量を 30~40ml とした後、ホウ酸 0.3g を加え、加熱溶解後、室温まで放冷する。<sup>\*7</sup>

<sup>\*3</sup> ろ紙にサポート材（ポリプロピレン等が用いられている）が含まれる場合には、サポート材が溶けない温度で行う。温度が上がるとサポート材が溶けて固まり、塵埃等が中に取り込まれ溶出し難くなる。

マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA を用いる時の一例  
200W 10 分-250W 20 分

<sup>\*4</sup> サポート材を含まないろ紙については、(3) ~ (6) の操作は省く。

<sup>\*5</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA を用いる時の一例  
350W 10 分-400W 20 分

<sup>\*6</sup> プルトニウムをPu<sup>4+</sup>に調整する操作である。ホットプレートの設定温度は 200~250 °Cとする。時計皿をかぶせないで加熱し、溶液中のフッ化水素酸をできるだけ追い出す。

<sup>\*7</sup> 後に行う陰イオン交換法によるプルトニウムの分離において、妨害となる残存フッ素イオンの影響を、ホウ酸を添加することにより抑制する。

(14)分離型ろ過器とメンブランフィルターを用いて吸引ろ過し、不溶物を硝酸(3+2)で洗浄する。ろ液及び洗液を100mlポリプロピレン製ビーカーに受け、分析用試料溶液とする。

### 3.2.2 プルトニウムの分離

(1) 3.2.1(14)で得た分析用試料溶液を、硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex1-X8 100～200mesh、樹脂量2mlのミニカラム)に流し、次いで硝酸(3+2)30mlを流し、カラムを洗浄する。<sup>\*8, \*9</sup>

### 3.2.3 アメリシウム、キュリウムの分離 I (水酸化鉄共沈分離)

- (1) カラム通過液と洗浄液を合わせて500mlビーカーに移し、鉄(Ⅲ)担体溶液(5mg Fe<sup>3+</sup>/ml)5mlと水を加えて溶液量を約350mlとする。
- (2) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを加え、pH10以上とする。<sup>\*10</sup>
- (3) 時計皿をかぶせ、ホットプレート上で沸騰するまで加熱する。水浴中で約10分間放冷後、500ml遠沈管に移し、3,000rpmで10分間遠心分離する。<sup>\*11</sup>
- (4) 上澄み液を捨て、沈殿は塩酸(1+2)を用いて溶解し、200mlビーカーに移す。
- (5) 水を加えて溶液量を約150mlとした後、かき混ぜながらアンモニア水を加え水酸化物沈殿を生成する。
- (6) アンモニア水5mlを加え、時計皿をかぶせ、ホットプレート上で沸騰するまで加熱する。水浴中で約1時間静置・放冷後、デカンテーションで上澄み液を捨てる。<sup>\*11</sup>
- (7) 残った沈殿部分を50ml遠沈管に移し、3,000rpmで10分間遠心分離する。
- (8) 上澄み液を捨て<sup>\*11</sup>、沈殿は硝酸(2mol/L)ーアスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液約30mlを用いて溶解して100mlビーカーに移し、TRUレジンカラム分離用試料溶液とする。<sup>\*12</sup>

---

<sup>\*8</sup> 流速は1ml/分程度である。

<sup>\*9</sup> 大部分のプルトニウムは樹脂に吸着する。(プルトニウムの分離・測定の詳細は、放射能測定法シリーズ28「環境試料中プルトニウム迅速分析法(平成14年)」を参照のこと。)

<sup>\*10</sup> アルミニウム等の両性水酸化物を生成する元素を溶液中に残し、除去する。

<sup>\*11</sup> 溶液中に残存する亜硝酸イオンを取り除く操作である。(亜硝酸イオン濃度が高いと、TRUレジンの抽出剤CMP0が分解される)

<sup>\*12</sup> 沈殿を溶解した液量は50ml以内とする。これ以上になるとカラム洗浄時にアメリカシウム、キュリウムが溶出する。

アスコルビン酸によりFe<sup>3+</sup>をFe<sup>2+</sup>に還元し、樹脂に吸着しないようにする。

### 3.2.4 アメリシウム、キュリウムの分離Ⅱ (TRU レジンカラムによる分離)

- (1) TRUレジンカラム (樹脂量:5ml) にTRUレジンカラム分離用試料溶液を流す。\*<sup>13</sup>
- (2) 次いで、硝酸 (1+13) 20ml、硝酸(1mol/L)－0.5%亜硝酸ナトリウム混合溶液 20ml、塩酸 (3+1) 20mlを逐次カラムに流し、洗浄する。\*<sup>14</sup>
- (3) 塩酸(1+2) 30mlをカラムに流し、アメリシウム、キュリウムを溶離する。溶離液はポリプロピレン製 100mlビーカーに受け、 $\alpha$ 線計測用試料調製溶液とする。\*<sup>15</sup>
- (4) 以下第9章9.1に従い $\alpha$ 線計測用試料を調製する。

### 3.2.5 アメリシウム、キュリウムの定量

- (1) 3.2.4 で得た $\alpha$ 線計測用試料について、第9章9.2に従って $\alpha$ 線スペクトロメトリーでアメリシウム 241、キュリウム同位体を定量する。

---

\*<sup>13</sup>TRUレジンカラムには予め硝酸(1mol/L)－アルコールビン酸(0.3mol/L)混合溶液 20mlを通しておく。

\*<sup>14</sup>硝酸(1mol/L)－0.5%亜硝酸ナトリウム混合溶液を通すことによりPu<sup>3+</sup>はPu<sup>4+</sup>に酸化され、アメリシウム溶出時に溶出しないようになる。塩酸(3+1)洗浄時にはビスマスが溶出する。

\*<sup>15</sup>Pu<sup>4+</sup>、トリウム、ウランは樹脂に残る。

## 第 4 章 土壌

試料をマイクロウェーブ高温灰化装置等を使用して 1.5 時間加熱する。試料にアメリカシウム 243 標準溶液を一定量加えた後、マイクロウェーブ分解装置を用いて硝酸-フッ化水素酸の混合溶液でプルトニウム、アメリカシウム及びキュリウムを 30 分間浸出する。これを 2 回繰り返す。浸出液中のプルトニウムを  $\text{Pu}^{4+}$  に調整した後、硝酸系陰イオン交換法によりプルトニウムを分離除去する。アメリカシウム、キュリウムは水酸化鉄共沈法で捕集後、抽出クロマトグラフィーにより分離・精製する。次いで、フッ化物共沈法によりろ紙上にマウントして  $\alpha$  線計測用試料とし、シリコン半導体検出器を用いた  $\alpha$  線スペクトロメトリーによるアメリカシウム 243 トレーサー法で定量する。

試料の前処理、化学分離から測定までに要する時間は、約 19 時間である。

### 4.1 試薬・器具・装置

#### 試薬 (第 2 章参照)

|       |  |
|-------|--|
| 標準溶液  | プルトニウム 242 標準溶液 (0.03 Bq/ml): プルトニウムとアメリカシウム、キュリウムを逐次分析する場合に用いる。解説 A 参照のこと。<br>アメリカシウム 243 標準溶液 (0.3 Bq/ml)  |
| 酸類    | 硝酸 (3+2)、硝酸 (1+13)<br>塩酸 (3+1)、塩酸 (1+2)<br>フッ化水素酸<br>硝酸-フッ化水素酸混合溶液* <sup>1</sup><br>硝酸 (1mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L) 混合溶液<br>硝酸 (2mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L) 混合溶液<br>硝酸 (1mol/L) - 0.5% 亜硝酸ナトリウム混合溶液<br>ホウ酸 |
| アルカリ類 | 水酸化ナトリウム<br>アンモニア水   |
| 塩類    | 亜硝酸ナトリウム溶液 (20W/V%)  |
| 樹脂類   | Dowex1-X8 (100~200mesh: 樹脂のコンディショニング方法については、第 2 章 2.2 を参照)<br>TRU レジンカラム (市販品、Eichrom Technologies 社製、樹脂量: 5ml)  |
| 器具    | イオン交換樹脂カラム (内径 7mm, 高さ 60mm のカラムに樹脂 2ml を充填する)、TRU レジン用カラム立て、ホットプレート、アスピレーター、メンブランフィルター (孔径 0.45 $\mu\text{m}$ , 47mm $\phi$ )、分離型ろ過器 (内径 45mm)  |

---

\*<sup>1</sup>混合比は、2.1.7 を参照

装置                    マイクロウェーブ高温灰化装置\*<sup>2</sup>又は電気炉、マイクロウェーブ分解装置\*<sup>3</sup>、遠心分離機

## 4.2 分析操作

### 4.2.1 試料の前処理

- (1) 試料 10g 乾土を磁製皿に入れ、マイクロウェーブ高温灰化装置を用いて、設定温度 500℃とし、100 分間加熱する。また、電気炉を用いる場合は、設定温度 500℃とし、3 時間程度加熱する。
- (2) 冷却後、試料を磁製皿からテフロン製の大容量分解容器（容量 260ml）に移し、硝酸-フッ化水素酸混合溶液 60ml を加え、さらにプルトニウム 242 標準溶液 (0.03Bq/ml) 1ml 及びアメリシウム 243 標準溶液 (0.3Bq/ml) 1ml を正確に加える。
- (3) 専用の蓋をして高圧分解ローターに組み込み、マイクロウェーブ分解装置にセットする。
- (4) マイクロウェーブ分解装置の出力と時間を所定の条件\*<sup>4</sup>に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。
- (5) 分解終了後、分解容器を水浴中で 30 分間冷却する。
- (6) 分解容器の蓋を開け、デカンテーションにより上澄み液を別に用意した 300ml テフロンビーカーに移し、ホットプレート上で蒸発濃縮する。
- (7) 分解容器に硝酸-フッ化水素酸混合溶液を 60ml 加え、(3)～(5) の操作をくり返す。
- (8) 分解容器の蓋を開け、吸引ろ過後ろ液を硝酸(3+2) を用いて内容物を(6)の 300ml テフロンビーカーに移す。
- (9) 亜硝酸ナトリウム溶液(20W/V%) 5mlを加え、かくはん後、ホットプレート上で約 30 分間加熱する。\*<sup>5</sup>
- (10) 液量が 30ml 以下の時は、硝酸(3+2) を加え 30～40ml とする。再度、亜硝酸ナトリウム溶液(20W/V%) 5ml を加え、かくはん後、ホットプレート上で約 30 分間加熱する。
- (11) (10)の操作を 2 回くり返す。
- (12) 硝酸(3+2) を加え液量を 30～40mlとした後、ホウ酸 0.3g を加え、加熱・溶解後、室温まで放冷する。\*<sup>6</sup>
- (13) 分離型ろ過器とメンブランフィルターを用いて吸引ろ過し、不溶物は硝酸(3+2)で洗浄する。ろ液と洗液は 100ml ポリプロピレン製ビーカーに受け分析用試料溶液とする。

---

\*<sup>2</sup>マイルストーン社製 MLS-1200 PYRO等

\*<sup>3</sup>マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA等

\*<sup>4</sup>マイルストーン社製 MLS-1200 MEGAを用いる時の一例

350W 5 分-400W 25 分

\*<sup>5</sup> Pu<sup>4+</sup>に調整する操作である。ホットプレートの設定温度は 200～250 °Cとする。時計皿をかぶせないで加熱し、溶液中のフッ化水素酸をできるだけ追い出す。

\*<sup>6</sup>後の陰イオン交換法によるプルトニウムの分離において、妨害となる残存フッ素イオンの影響を、ホウ酸を添加して抑制する。

#### 4.2.2 プルトニウムの分離

- (1) 4.2.1(13) で得た分析用試料溶液を、硝酸系陰イオン交換樹脂カラム(Dowex1-X8 100 ~200mesh、樹脂量 2mlのミニカラム)に流し、次いで硝酸(3+2) 30mlを流し、カラムを洗淨する。<sup>\*7, \*8</sup>

#### 4.2.3 アメリシウム、キュリウムの分離 I (水酸化鉄共沈分離)

- (1) カラム通過液と洗淨液を合わせて 500ml ビーカーに移し、水を加えて溶液量を約 350ml とする。
- (2) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを加え、pH 10 以上とする。<sup>\*9</sup>
- (3) 時計皿をかぶせ、ホットプレート上で沸騰するまで加熱する。水浴中で約 10 分間放冷後、500ml遠沈管に移し、3,000rpmで 10 分間遠心分離する。<sup>\*10</sup>
- (4) 上澄み液を捨て、沈殿は塩酸(1+2)を用いて溶解し先の 500ml ビーカーに移す。
- (5) 水を加えて溶液量を 350ml とした後、(2)~(4)の操作をくり返す。
- (6) 水を加えて溶液量を約 350ml とした後、かき混ぜながらアンモニア水を加え水酸化物沈殿を生成する。
- (7) アンモニア水 5mlを加え、時計皿をかぶせてホットプレート上で沸騰するまで加熱する。水浴中で約 1 時間静置・放冷後、デカンテーションで上澄み液を捨てる。<sup>\*10</sup>
- (8) 残った沈殿部分を、数本の 50ml 遠沈管に移し、3,000rpm で 10 分間遠心分離する。
- (9) 上澄み液を捨て、沈殿は硝酸(2mol/L)ーアスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液約 30mlを用いて溶解して 100mlビーカーに移し、TRUレジンカラム分離用試料溶液とする。<sup>\*11</sup>

#### 4.2.4 アメリシウム、キュリウムの分離 II (TRU レジンカラムによる分離)

TRU レジンカラム分離用試料溶液について 3.2.4 と同様の操作を行い、 $\alpha$ 線計測用試料を調製する。

---

<sup>\*7</sup> 流速は 1ml/分程度である。

<sup>\*8</sup> 大部分のプルトニウムは樹脂に吸着する。(プルトニウムの分離・測定の詳細は、放射能測定法シリーズ 28「環境試料中プルトニウム迅速分析法(平成 14 年)」を参照のこと。)

<sup>\*9</sup> アルミニウム等の両性水酸化物を生成する元素を溶液中に残し、除去する。

<sup>\*10</sup> 溶液中に残存する亜硝酸イオンを取り除く操作である。(亜硝酸イオン濃度が高いと、TRU レジンの抽出剤 CMP0 が分解される)

<sup>\*11</sup> 沈殿を溶解した液量は 50ml以内とする。これ以上になるとカラム洗淨時にアメリシウム、キュリウムが溶出するので、50ml 以上になった時は二分割し、それぞれについて TRU レジンカラム分離操作を行う。

#### 4.2.5 アメリシウム、キュリウムの定量

4.2.4 で得た  $\alpha$  線計測用試料について、第 9 章に従って  $\alpha$  線スペクトロメトリーでアメリシウム 241、キュリウム同位体の定量を行う。<sup>\*12</sup>

---

<sup>\*12</sup>  $\alpha$  線スペクトルのピークの広がりが大きく、アメリシウム 241 と アメリシウム 243 のピークが分離できない場合は、分析供試量を半分の 5g として再度分析を行う。

## 第 5 章 降下物

大型水盤に捕集された塵埃及び降水を試料とする。

試料にアメリカシウム 243 標準溶液を一定量加え、かくはんした後ろ過する。残留物は、マイクロウェーブ分解装置と硝酸－フッ化水素酸混合溶液でプルトニウム、アメリカシウム及びキュリウムを浸出する。浸出液をろ液に合わせた後、溶液中のプルトニウム、アメリカシウム及びキュリウムを、水酸化鉄（Ⅲ）共沈法により濃縮する。沈殿に硝酸を加え溶解し、プルトニウムを  $\text{Pu}^{4+}$  に調整した後、硝酸系の陰イオン交換法によりプルトニウムを分離除去する。水酸化鉄共沈法で捕集後、抽出クロマトグラフィーにより分離・精製する。次いで、フッ化物共沈法によりろ紙上にマウントして  $\alpha$  線計測用試料とし、シリコン半導体検出器を用いた  $\alpha$  線スペクトロメトリーによるアメリカシウム 243 トレーサー法で定量する。

試料の前処理、化学分離から測定までに要する時間は、約 17 時間である。

### 5.1 試薬・器具・装置

#### 試薬（第 2 章参照）

|       |  |
|-------|--|
| 標準溶液  | プルトニウム 242 標準溶液 (0.03 Bq/ml) : プルトニウムとアメリカシウム、キュリウムを逐次分析する場合に用いる。解説 A を参照のこと。<br>アメリカシウム 243 標準溶液 (0.3 Bq/ml)  |
| 担体溶液  | 鉄（Ⅲ）担体溶液 (50mg $\text{Fe}^{3+}$ /ml、5mg $\text{Fe}^{3+}$ /ml)  |
| 酸類    | 硝酸 (3+2)、硝酸 (1+13)<br>塩酸 (3+1)、塩酸 (1+2)<br>フッ化水素酸<br>硝酸－フッ化水素酸混合溶液* <sup>1</sup><br>硝酸 (1mol/L)－アスコルビン酸 (0.3mol/L) 混合溶液<br>硝酸 (2mol/L)－アスコルビン酸 (0.3mol/L) 混合溶液<br>硝酸 (1mol/L)－0.5% 亜硝酸ナトリウム混合溶液<br>ホウ酸 |
| アルカリ類 | 水酸化ナトリウム<br>アンモニア水   |
| 塩類    | 亜硝酸ナトリウム溶液 (20W/V%)  |
| 樹脂類   | Dowex1-X8 (100～200mesh : 樹脂のコンディショニング方法については、第 2 章 2.2 を参照)、TRU レジンカラム (市販品、Eichrom Technologies 社製、樹脂量 : 5ml)   |

\*<sup>1</sup> 混合比は、2.1.7 を参照

|    |   |
|----|---|
| 器具 | イオン交換樹脂カラム（内径 7mm, 高さ 60mm のカラムに樹脂 2ml を充填する）、TRU レジン用カラム立て、ホットプレート、アスピレーター、メンブランフィルター（孔径 0.45 $\mu$ m, 47mm $\phi$ ）、分離型ろ過器（内径 45mm） |
| 装置 | マイクロウェーブ分解装置* <sup>2</sup> 、遠心分離機   |

## 5.2 分析操作

### 5.2.1 試料の前処理

- (1) 試料 1L を分取し（全量が 1L に達しない場合は全量を用いる）、プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml)1ml 及びアメリシウム 243 標準溶液(0.3Bq/ml)1ml を正確に加え、かくはんする。
- (2) メンブランフィルターを用いて吸引ろ過する。ろ液は適当な大きさのビーカーに移す。
- (3) 残留物をろ紙ごとテフロン製の高压分解容器（容量 100ml）に入れる。
- (4) 硝酸-フッ化水素酸混合溶液 20ml を加え、専用の蓋をして高压分解ローターに組み込みマイクロウェーブ分解装置にセットする。
- (5) マイクロウェーブ分解装置の出力と時間を所定の条件\*<sup>3</sup>に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。
- (6) 分解終了後、分解容器を水浴中で 30 分間冷却する。
- (7) 分解容器の蓋を開け、浸出液を別に用意した 200ml テフロンビーカーに移し、ホットプレート上で蒸発乾固する。
- (8) 乾固後、硝酸 5ml を加え加熱溶解し、(2)で得たろ液に合わせる。
- (9) ろ液 1L 当たり、鉄（III）担体溶液(50mg Fe<sup>3+</sup>/ml) を 1mlの割合で加え、かくはんする。
- (10) フェノールフタレイン-エタノール溶液(0.5W/V%)2ml を加え、かくはんしながら試料水が赤色を呈するまでアンモニア水を加える。
- (11) ガスコンロで 30 分間加熱し、沈殿を熟成する。
- (12) 水浴中で冷却後、デカンテーションにより上澄み液を捨て、沈殿物を 50ml 遠沈管に移す。
- (13) 3,000rpm で約 10 分間遠心分離を行う。上澄み液は捨てる。
- (14) 沈殿に硝酸を加え、100ml ビーカーに移し、ホットプレート上で加熱溶解後、蒸発乾固する。
- (15) 放冷後、硝酸（3+2）10ml と過酸化水素水 1ml を加え、ホットプレート上で蒸発乾固する。

---

\*<sup>2</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA等

\*<sup>3</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGAを用いる時の一例

350W 10 分-400W 20 分

\*<sup>4</sup> Pu<sup>4+</sup>に調整する操作である。ホットプレートの設定温度は 200~250  $^{\circ}$ Cとする。

- (16) 硝酸 (3+2) 30mlと亜硝酸ナトリウム溶液 (20W/V%) 5mlを加え、かくはん後、ホットプレート上で約 30 分間加熱する。\*4
- (17) 液量が 30ml 以下の時は、硝酸(3+2) を加え 30~40ml とする。再度、亜硝酸ナトリウム溶液 (20W/V%) 5ml を加え、かくはん後、ホットプレート上で約 30 分間加熱する。
- (18) (17)の操作をくり返す。
- (19) 分離型ろ過器とメンブランフィルターを用いて吸引ろ過し、不溶物は硝酸 (3+2)で洗浄する。ろ液及び洗液は 100ml ビーカーに受け分析用試料溶液とする。

#### 5.2.2 プルトニウムの分離

- (1) 5.2.1(19) で得た分析用試料溶液を、硝酸系陰イオン交換樹脂カラム (Dowex1-X8 100~200mesh、樹脂量 2mlのミニカラム) に流し、次いで硝酸 (3+2) 30mlを流し、カラムを洗浄する。\*5, \*6

#### 5.2.3 アメリシウム、キュリウムの分離 I (水酸化鉄共沈分離)

- (1) カラム通過液と洗浄液を合わせて 500ml ビーカーに移し、水を加えて溶液量を約 350ml とする。
- (2) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを加え、pH 10 以上とする。\*7
- (3) 時計皿をかぶせ、ホットプレート上で沸騰するまで加熱する。水浴中で約 10 分間放冷後、500ml遠沈管に移し、3,000rpmで 10 分間遠心分離する。\*8
- (4) 上澄み液を捨て、沈殿は塩酸 (1+2) を用いて溶解し 200ml ビーカーに移す。
- (5) 水を加えて溶液量を約 150ml とした後、かき混ぜながらアンモニア水を加え水酸化物沈殿を生成する。
- (6) アンモニア水 5mlを加え、時計皿をかぶせてホットプレート上で沸騰するまで加熱する。水浴中で約 1 時間静置・放冷後、デカンテーションで上澄み液を捨てる。\*8
- (7) 残った沈殿部分を、数本の 50ml 遠沈管に移し、3,000rpm で 10 分間遠心分離する。上澄み液を捨て、沈殿は硝酸(2mol/L)ーアスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液約 30mlを用いて溶解して 100mlビーカーに移し、TRUレジンカラム分離用試料溶液とする。\*9

---

\*5 流速は 1ml/分程度である。

\*6 大部分のプルトニウムは樹脂に吸着する。(プルトニウムの分離・測定の詳細は、放射能測定法シリーズ 28「環境試料中プルトニウム迅速分析法 (平成 14 年)」を参照のこと。)

\*7 アルミニウムのような両性水酸化物を生成する元素を溶液中に残し、除去する。

\*8 溶液中に残存する亜硝酸イオンを取り除く操作である。(亜硝酸イオン濃度が高いと、TRUレジンの抽出剤 CMP0 が分解される)

\*9 沈殿を溶解した液量は 50ml以内とする。これ以上になるとカラム洗浄時にアメリシウム、キュリウムが溶出する。

#### 5.2.4 アメリシウム、キュリウムの分離Ⅱ (TRU レジンカラムによる分離)

TRU レジンカラム分離用試料溶液について 3.2.4 と同様の操作を行い、 $\alpha$ 線計測用試料を調製する。

#### 5.2.5 アメリシウム、キュリウムの定量

5.2.4 で得た  $\alpha$ 線計測用試料について、第 9 章に従って  $\alpha$ 線スペクトロメトリーでアメリシウム 241、キュリウム同位体の定量を行う。

## 第 6 章 飲料水

試料にアメリカシウム 243 標準溶液を一定量加えかくはんした後、ろ過する。残留物は、マイクロエーブ分解装置を用いて硝酸-フッ化水素酸混合溶液でプルトニウム、アメリカシウム及びキュリウムを 30 分間浸出する。浸出液をろ液に合わせた後、溶液中のプルトニウム、アメリカシウム及びキュリウムを、水酸化鉄(Ⅲ)共沈法により濃縮する。沈殿に硝酸を加え溶解し、プルトニウムをPu<sup>4+</sup>に調整した後、硝酸系の陰イオン交換法によりプルトニウムを分離除去する。アメリカシウム、キュリウムは、水酸化鉄共沈法で捕集後、抽出クロマトグラフにより分離・精製する。次いで、フッ化物共沈法によりろ紙上にマウントしてα線計測用試料とし、シリコン半導体検出器を用いたα線スペクトロメトリーによるアメリカシウム 243 トレーサー法で定量する。

試料の前処理、化学分離から測定までに要する時間は、約 17 時間である。

### 6.1 試薬・器具・装置

#### 試薬 (第 2 章参照)

|       |  |
|-------|--|
| 標準溶液  | プルトニウム 242 標準溶液 (0.03 Bq/ml) : プルトニウムとアメリカシウム、<br>キュリウムを逐次分析する場合に用いる。解説 A を参照のこと。<br>アメリカシウム 243 標準溶液 (0.3 Bq/ml)  |
| 担体溶液  | 鉄(Ⅲ)担体溶液 (Fe <sup>3+</sup> :5mg/ml)  |
| 酸類    | 硝酸 (3+2)、(1+13)<br>塩酸 (3+1)、(1+2)<br>フッ化水素酸<br>硝酸-フッ化水素酸混合溶液* <sup>1</sup><br>硝酸(1mol/L)-アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液<br>硝酸(2mol/L)-アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液<br>硝酸(1mol/L)-0.5%亜硝酸ナトリウム混合溶液<br>ホウ酸 |
| アルカリ類 | 水酸化ナトリウム<br>アンモニア水   |
| 塩類    | 亜硝酸ナトリウム溶液 (20W/V%)  |
| 樹脂類   | Dowex1-X8 (100~200mesh : 樹脂のコンディショニング方法については、<br>第 2 章 2.2 を参照)、TRU レジンカラム (市販品、Eichrom Technologies<br>社製、樹脂量 : 5ml)  |

---

\*<sup>1</sup> 混合比は、2.1.7 を参照

|    |   |
|----|---|
| 器具 | イオン交換樹脂カラム（内径 7mm, 高さ 60mm のカラムに樹脂 2ml を充填する）、ホットプレート、メンブランフィルター（孔径 0.45 $\mu$ m, 47mm $\phi$ ）、アスピレーター、分離型ろ過器（内径 45mm） |
| 装置 | マイクロウェーブ分解装置*2、遠心分離機  |

## 6.2 分析操作

### 6.2.1 試料の前処理

- (1) 試料 2L を分取し、プルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml) 1ml 及びアメリカシウム 243 標準溶液(0.3Bq/ml) 1ml を正確に加えよくかくはんする。
- (2) メンブランフィルターを用いて吸引ろ過する。
- (3) 残留物をろ紙ごとテフロン製の高压分解容器（容量 100ml）に入れる。
- (4) 硝酸－フッ化水素酸混合溶液 20ml を加え、専用の蓋をして高压分解ローターに組み込みマイクロウェーブ分解装置にセットする。
- (5) マイクロウェーブ分解装置の出力と時間を所定の条件\*3に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。
- (6) 分解終了後、分解容器を水浴中で 30 分間冷却する。
- (7) 分解容器の蓋を開け、浸出液を別に用意した 200ml テフロンビーカーに移し、ホットプレート上で蒸発乾固する。
- (8) 乾固後、硝酸 5ml を加え加熱溶解し、(2) で得たろ液に合わせる。
- (9) ろ液 1L 当たり、鉄（III）担体溶液(50mg Fe<sup>3+</sup>/ml) を 1ml の割合で加え、かくはんした後 1 時間放置する。
- (10) フェノールフタレイン－エタノール溶液(0.5W/V%) 2ml を加え、かくはんしながら試料水が赤色を呈するまでアンモニア水を加える。
- (11) ガスコンロで 30 分間加熱し、沈殿を熟成する。
- (12) 水浴中で冷却後、デカンテーションにより上澄み液を捨て、沈殿物を 50ml 遠沈管に移す。
- (13) 3,000rpm で約 10 分間遠心分離を行う。上澄み液は捨てる。
- (14) 沈殿に硝酸を加え、100ml ビーカーに移し、ホットプレート上で加熱溶解後、蒸発乾固する。
- (15) 放冷後、硝酸（3+2）10ml と過酸化水素水 1ml を加え、ホットプレート上で蒸発乾固する。
- (16) 硝酸（3+2）30ml と亜硝酸ナトリウム溶液（20W/V%）5ml を加え、かくはん後、ホットプレート上で約 30 分間加熱する。\*4

---

\*2 マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA等

\*3 マイルストーン社製 MLS-1200 MEGAを用いる時の一例  
350W 10 分－400W 20 分

\*4 Pu<sup>4+</sup>に調整する操作である。ホットプレートの設定温度は 200～250  $^{\circ}$ Cとする。

- (17) 液量が 30ml 以下の時は、硝酸 (3+2) を加え 30~40ml とする。再度、亜硝酸ナトリウム溶液 (20W/V%) 5ml を加え、かくはん後、ホットプレート上で約 30 分間加熱する。
- (18) (17) の操作をくり返す。
- (19) 分離型ろ過器とメンブランフィルターを用いて吸引ろ過し、不溶物は硝酸 (3+2) で洗浄する。ろ液及び洗液は 200ml ビーカーに受け分析用試料溶液とする。

#### 6.2.2 プルトニウムの分離

- (1) 6.2.1(19) で得た分析用試料溶液を、硝酸系陰イオン交換樹脂カラム (Dowex1-X8 100~200mesh、樹脂量 2ml のミニカラム) に流し、次いで硝酸 (3+2) 30ml を流し、カラムを洗浄する。<sup>\*5, \*6</sup>

#### 6.2.3 アメリシウム、キュリウムの分離 I (水酸化鉄共沈分離)

- (1) カラム通過液と洗浄液を合わせて 500ml ビーカーに移し、水を加えて溶液量を約 350ml とする。
- (2) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを加え、pH 10 以上とする。<sup>\*7</sup>
- (3) 時計皿をかぶせ、ホットプレート上で沸騰するまで加熱する。水浴中で約 10 分間放冷後、500ml 遠沈管に移し、3,000rpm で 10 分間遠心分離する。<sup>\*8</sup>
- (4) 上澄み液を捨て、沈殿は塩酸 (1+2) を用いて溶解し 200ml ビーカーに移す。
- (5) 水を加えて溶液量を約 150ml とした後、かき混ぜながらアンモニア水を加え水酸化物沈殿を生成する。
- (6) アンモニア水 5ml を加え、時計皿をかぶせてホットプレート上で沸騰するまで加熱する。水浴中で約 1 時間静置・放冷後、デカンテーションで上澄み液を捨てる。<sup>\*8</sup>
- (7) 残った沈殿部分を、数本の 50ml 遠沈管に移し、3,000rpm で 10 分間遠心分離する。
- (8) 上澄み液を捨て、沈殿は硝酸 (2mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L) 混合溶液約 30ml を用いて溶解して 100ml ビーカーに移し、TRU レジンカラム分離用試料溶液とする。<sup>\*9</sup>

#### 6.2.4 アメリシウム、キュリウムの分離 II (TRU レジンカラムによる分離)

TRU レジンカラム分離用試料溶液について 3.2.4 と同様の操作を行い、 $\alpha$  線計測用試料を調製する。

---

\*5 流速は 1ml/分程度である。

\*6 大部分のプルトニウムは樹脂に吸着する。(プルトニウムの分離・測定の詳細は、放射能測定法シリーズ 28「環境試料中プルトニウム迅速分析法 (平成 14 年)」を参照のこと。)

\*7 アルミニウムのような両性水酸化物を生成する元素を溶液中に残し、除去する。

\*8 溶液中に残存する亜硝酸イオンを取り除く操作である。(亜硝酸イオン濃度が高いと、抽出剤 CMO が分解される)

\*9 沈殿を溶解した液量は 50ml 以内とする。これ以上になるとカラム洗浄時にアメリシウム、キュリウムが溶出する。

### 6.2.5 アメリシウム、キュリウムの定量

6.2.4 で得た  $\alpha$  線計測用試料について、第 9 章に従って  $\alpha$  線スペクトロメトリーでアメリシウム 241、キュリウム同位体の定量を行う。

## 第 7 章 牛乳

試料をガスコンロで乾燥・炭化し、マイクロウェーブ高温灰化装置等で加熱灰化する。灰化した試料にアメリシウム 243 標準溶液を一定量加えた後、マイクロウェーブ分解装置を用いて硝酸に溶解する。溶液中のプルトニウムを  $\text{Pu}^{4+}$  に調整した後、硝酸系陰イオン交換法によりプルトニウムを分離除去する。アメリシウム、キュリウムは、水酸化鉄共沈法で捕集後、抽出クロマトグラフィーにより分離・精製する。次いで、フッ化物共沈法によりろ紙上にマウントして  $\alpha$  線計測用試料とし、シリコン半導体検出器を用いた  $\alpha$  線スペクトロメトリーによるアメリシウム 243 トレーサー法で定量する。

試料の前処理、化学分離から測定までに要する時間は約 19 時間である。

### 7.1 試薬・器具・装置

#### 試薬 (第 2 章参照)

|       |   |
|-------|---|
| 標準溶液  | プルトニウム 242 標準溶液 (0.03 Bq/ml): プルトニウムとアメリシウム、キュリウムを逐次分析する場合に用いる。解説 A を参照のこと。<br>アメリシウム 243 標準溶液 (0.3 Bq/ml)  |
| 担体溶液  | 鉄 (III) 担体溶液 (5mg $\text{Fe}^{3+}$ /ml)   |
| 酸類    | 硝酸 (3+2)、(1+13)<br>塩酸 (3+1)、(1+2)<br>硝酸 (1mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L) 混合溶液<br>硝酸 (2mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L) 混合溶液<br>硝酸 (1mol/L) - 0.5% 亜硝酸ナトリウム混合溶液<br>ホウ酸 |
| アルカリ類 | 水酸化ナトリウム<br>アンモニア水  |
| 塩類    | 亜硝酸ナトリウム溶液 (20W/V%)   |
| 樹脂類   | Dowex1-X8 (100~200mesh: 樹脂のコンディショニング方法については、第 2 章 2.2 を参照)、TRU レジンカラム (市販品、Eichrom Technologies 社製、樹脂量: 5ml)  |
| 器具    | イオン交換樹脂カラム (内径 7mm, 高さ 60mm のカラムに樹脂 2ml を充填する)、TRU レジンカラム立て、ホットプレート、メンブランフィルター (孔径 0.45 $\mu\text{m}$ , 47mm $\phi$ )、アスピレーター、分離型ろ過器 (内径 45mm)                |
| 装置    | マイクロウェーブ高温灰化装置* <sup>1</sup> 又は電気炉、マイクロウェーブ分解装置* <sup>2</sup> 、遠心分離機  |

\*<sup>1</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 PYRO等

\*<sup>2</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA等

## 7.2 分析操作

### 7.2.1 試料の前処理

- (1) 試料 0.1L を磁製皿に移す。
- (2) ガラス棒でかき混ぜながらガスコンロ上で加熱し、蒸発乾燥後、炭化する。<sup>\*3</sup>
- (3) 炭化後、マイクロウェーブ高温灰化装置に入れ、設定温度を 250℃から 600℃まで順次上げて 3 時間程度加熱し(例えば、250℃ : 60 分、500℃ : 90 分、600℃ : 45 分)灰化する。また、電気炉を用いる場合には、設定温度を 500℃とし、5 時間程度加熱する。
- (4) 試料を磁製皿からテフロン製の高压分解容器(容量 100ml)に移し、硝酸 20ml を加え、さらにプルトニウム 242 標準溶液 (0.03Bq/ml)1ml とアメリシウム 243 標準溶液 (0.3Bq/ml)1ml を正確に加える。
- (5) 専用の蓋をして高压分解ローターに組み込み、マイクロウェーブ分解装置にセットする。
- (6) マイクロウェーブ分解装置の出力と時間を所定の条件<sup>\*4</sup>に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。
- (7) 分解終了後、分解容器を水浴中で 30 分間冷却する。
- (8) 分解容器の蓋を開け、硝酸 (3+2) を用いて内容物を別に用意した 200ml テフロンビーカーに移す。
- (9) 亜硝酸ナトリウム溶液 (20W/V%) 5ml を加え、かくはん後、ホットプレート上で約 30 分間加熱する。<sup>\*5</sup>
- (10) 液量が 30ml 以下の時は、硝酸 (3+2) を加え 30~40ml とする。再度、亜硝酸ナトリウム溶液 (20W/V%) 5ml を加え、かくはん後、ホットプレート上で約 30 分間加熱する。
- (11) (10) の操作をくり返す。
- (12) 分離型ろ過器とメンブランフィルターを用いて吸引ろ過し、不溶物は硝酸 (3+2) で洗浄する。ろ液及び洗液は 100ml ビーカーに受け分析用試料溶液とする。

### 7.2.2 プルトニウムの分離

- (1) 7.2.1(12) で得た分析用試料溶液を、硝酸系陰イオン交換樹脂カラム (Dowex1-X8 100 ~200mesh、樹脂量 2mlのミニカラム)に流し、次いで硝酸 (3+2) 30mlを流し、カラムを洗浄する。<sup>\*6, \*7</sup>

---

<sup>\*3</sup> 40 分程度を要する。

<sup>\*4</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGAを用いる時の一例

350W 10 分-400W 20 分

<sup>\*5</sup> Pu<sup>4+</sup>に調整する操作である。ホットプレートの設定温度は 200~250 °Cとする。

<sup>\*6</sup> 流速は 1ml/分程度である。

<sup>\*7</sup> 大部分のプルトニウムは樹脂に吸着する。(プルトニウムの分離・測定の詳細は、放射能測定法シリーズ 28「環境試料中プルトニウム迅速分析法 (平成 14 年)」を参照のこと。)

### 7.2.3 アメリシウム、キュリウムの分離 I (水酸化鉄共沈分離)

- (1) カラム通過液と洗浄液を合わせて 500ml ビーカーに移し、鉄 (III) 担体溶液 (5mg  $\text{Fe}^{3+}/\text{ml}$ ) 5ml と水を加えて溶液量を約 350ml とする。
- (2) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを加え、pH 10 以上とする。<sup>\*8</sup>
- (3) 時計皿をかぶせ、ホットプレート上で沸騰するまで加熱する。水浴中で約 10 分間放冷後、500ml 遠沈管に移し、3,000rpm で 10 分間遠心分離する。<sup>\*9</sup>
- (4) 上澄み液を捨て、沈殿は塩酸 (1+2) を用いて溶解し 200ml ビーカーに移す。
- (5) 水を加えて溶液量を約 150ml とした後、かき混ぜながらアンモニア水を加え水酸化物沈殿を生成する。
- (6) アンモニア水 5ml を加え、時計皿をかぶせてホットプレート上で沸騰するまで加熱する。水浴中で約 1 時間静置・放冷後、デカンテーションで上澄み液を捨てる<sup>\*9</sup>。
- (7) 残った沈殿部分を、数本の 50ml 遠沈管に移し、3,000rpm で 10 分間遠心分離する。
- (8) 上澄み液を捨て、沈殿は硝酸 (2mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L) 混合溶液約 30ml を用いて溶解して 100ml ビーカーに移し、TRU レジンカラム分離用試料溶液とする。<sup>\*10</sup>

### 7.2.4 アメリシウム、キュリウムの分離 II (TRU レジンカラムによる分離)

TRU レジンカラム分離用試料溶液について 3.2.4 と同様の操作を行い、 $\alpha$  線計測用試料を調製する。

### 7.2.5 アメリシウム、キュリウムの定量

7.2.4 で得た  $\alpha$  線計測用試料について、第 9 章に従って  $\alpha$  線スペクトロメトリーでアメリシウム 241、キュリウム同位体の定量を行う。

---

<sup>\*8</sup> アルミニウムのような両性水酸化物を生成する元素を溶液中に残し、除去する。

<sup>\*9</sup> 溶液中に残存する亜硝酸イオンを取り除く操作である。(亜硝酸イオン濃度が高いと、TRU レジンの抽出剤 CMP0 が分解される)

<sup>\*10</sup> 沈殿を溶解した液量は 50ml 以内とする。これ以上になるとカラム洗浄時にアメリシウム、キュリウムが溶出する。

## 第 8 章 葉菜

試料を、電子レンジで乾燥後、マイクロウェーブ高温灰化装置等を使用して 3 時間加熱し灰化する。灰化した試料にアメリカシウム 243 標準溶液を一定量加えた後、マイクロウェーブ分解装置を用いて硝酸-フッ化水素酸混合溶液でプルトニウム、アメリカシウム及びキュリウムを 30 分間浸出する。浸出液中のプルトニウムを  $\text{Pu}^{4+}$  に調整した後、硝酸系陰イオン交換法によりプルトニウムを分離除去する。アメリカシウム、キュリウムは、水酸化鉄共沈法で捕集後、抽出クロマトグラフィーにより分離・精製する。次いで、フッ化物共沈法によりろ紙上にマウントして  $\alpha$  線計測用試料とし、シリコン半導体検出器を用いた  $\alpha$  線スペクトロメトリによるアメリカシウム 243 トレーサー法で定量する。

試料の前処理、化学分離から測定までに要する時間は、約 22 時間である。

### 8.1 試薬・器具・装置

#### 試薬 (第 2 章参照)

|       |  |
|-------|--|
| 標準溶液  | プルトニウム 242 標準溶液 (0.03 Bq/ml): プルトニウムとアメリカシウム、キュリウムを逐次分析する場合に用いる。解説 A 参照のこと。<br>アメリカシウム 243 標準溶液 (0.3 Bq/ml)  |
| 担体溶液  | 鉄 (III) 担体溶液 ( $\text{Fe}^{3+}$ : 5mg/ml)  |
| 酸類    | 硝酸 (3+2)、(1+13)<br>塩酸 (3+1)、(1+2)<br>フッ化水素酸<br>硝酸-フッ化水素酸混合溶液* <sup>1</sup><br>硝酸 (1mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L) 混合溶液<br>硝酸 (2mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L) 混合溶液<br>硝酸 (1mol/L) - 0.5% 亜硝酸ナトリウム混合溶液<br>ホウ酸 |
| アルカリ類 | 水酸化ナトリウム<br>アンモニア水   |
| 塩類    | 亜硝酸ナトリウム溶液 (20W/V%)  |
| 樹脂類   | Dowex1-X8 (100~200mesh: 樹脂のコンディショニング方法については、第 2 章 2.2 を参照)、TRU レジンカラム (市販品、Eichrom Technologies 社製、樹脂量: 5ml)   |
| 器具    | イオン交換樹脂カラム (内径 7mm, 高さ 60mm のカラムに樹脂 2ml を充填する)、TRU レジンカラム立て、ホットプレート、メンブランフィルター (孔径 0.45 $\mu\text{m}$ , 47mm $\phi$ )、アスピレーター、分離型ろ過器 (内径 45mm)   |

\*<sup>1</sup> 混合比は、2.1.7 を参照

装置 電子レンジ（高周波出力 500W）、マイクロウェーブ高温灰化装置\*<sup>2</sup>又は電気炉、マイクロウェーブ分解装置\*<sup>3</sup>、遠心分離機

## 8.2 分析操作

### 8.2.1 試料の前処理

- (1) 試料 0.1kg を磁製皿に秤り取る。
- (2) 電子レンジに入れ、25 分間乾燥する。\*<sup>4</sup>
- (3) 乾燥後、マイクロウェーブ高温灰化装置に入れ、設定温度を 250℃から 600℃まで順次上げて 3 時間程度加熱し(例えば、250℃：60 分、500℃：90 分、600℃：45 分)灰化する。また、電気炉を用いる場合には、設定温度を 500℃とし、4 時間程度加熱する。
- (4) 試料を磁製皿からテフロン製の高圧分解容器（容量 100ml）に移し、硝酸-フッ化水素酸混合溶液 20ml を加え、さらにプルトニウム 242 標準溶液(0.03Bq/ml)1ml とアメリカシウム 243 標準溶液(0.3Bq/ml)1ml を正確に加える。
- (5) 専用の蓋をして高圧分解ローターに組み込み、マイクロウェーブ分解装置にセットする。
- (6) マイクロウェーブ分解装置の出力と時間を所定の条件\*<sup>5</sup>に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。
- (7) 分解終了後、分解容器を水浴中で 30 分間冷却する。
- (8) 分解容器の蓋を開け、硝酸（3+2）を用いて内容物を別に用意した 200ml テフロンビーカーに移す。
- (9) 亜硝酸ナトリウム溶液（20W/V%）5mlを加え、かくはん後、ホットプレート上で約 30 分間加熱する。\*<sup>6</sup>
- (10) 液量が 30ml 以下の時は、硝酸（3+2）を加え 30～40ml とする。再度、亜硝酸ナトリウム溶液（20W/V%）5ml を加え、かくはん後、ホットプレート上で約 30 分間加熱する。
- (11) (10)の操作をくり返す。
- (12) 硝酸（3+2）を加えて液量を 30～40mlとした後、ホウ酸 0.3g を加え、加熱溶解後、室温まで放冷する。\*<sup>7</sup>
- (13) 分離型ろ過器とメンブランフィルターを用いて吸引ろ過し、不溶物は硝酸(3+2)で洗浄する。ろ液と洗液は 100ml ポリプロピレン製ビーカーに受け分析用試料溶液とする。

---

\*<sup>2</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 PYRO等

\*<sup>3</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA等

\*<sup>4</sup> 電子レンジの代わりに乾燥器を用いてもよい。

乾燥器を用いる場合の乾燥温度と時間は 105℃, 3～4 時間程度である。

\*<sup>5</sup> マイルストーン社製 MLS-1200 MEGAを用いる時の一例

350W 10 分-400W 20 分

\*<sup>6</sup> Pu<sup>4+</sup>に調整する操作である。ホットプレートの設定温度は 200～250℃とする。

時計皿をかぶせないで加熱し、溶液中のフッ化水素酸をできるだけ追い出す。

\*<sup>7</sup> 後の陰イオン交換カラム操作を妨害する残存フッ素の影響を、ホウ酸を添加して抑制する。

### 8.2.2 プルトニウムの分離

- (1) 8.2.1(13) で得た分析用試料溶液を、硝酸系陰イオン交換樹脂カラム (Dowex1-X8 100 ~200mesh、樹脂量 2mlのミニカラム) に流し、次いで硝酸 (3+2) 30mlを流し、カラムを洗浄する。\*<sup>8</sup>, \*<sup>9</sup>

### 8.2.3 アメリシウム、キュリウムの分離 I (水酸化鉄共沈分離)

- (1) カラム通過液と洗浄液を合わせて 500ml ビーカーに移し、鉄 (III) 担体溶 (5mg Fe<sup>3+</sup>/ml) 5mlと水を加えて溶液量を約 350mlとする。
- (2) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを加え、pH 10 以上とする。\*<sup>10</sup>
- (3) 時計皿をかぶせ、ホットプレート上で沸騰するまで加熱する。水浴中で約 10 分間放冷後、500ml遠沈管に移し、3,000rpmで 10 分間遠心分離する\*<sup>11</sup>。
- (4) 上澄み液を捨て、沈殿は塩酸 (1+2) を用いて溶解し 200ml ビーカーに移す。
- (5) 水を加えて溶液量を約 150ml とした後、かき混ぜながらアンモニア水を加え水酸化物沈殿を生成する。
- (6) アンモニア水を加え、時計皿をかぶせてホットプレート上で沸騰するまで加熱する。水浴中で約 1 時間静置・放冷後、デカンテーションで上澄み液を捨てる。\*<sup>11</sup>
- (7) 残った沈殿部分を、数本の 50ml 遠沈管に移し、3,000rpm で 10 分間遠心分離する。上澄み液を捨て、沈殿は硝酸 (2mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L) 混合溶液約 30ml を用いて溶解して 100ml ビーカーに移し、TRU レジンカラム分離用試料溶液とする。\*<sup>12</sup>

### 8.2.4 アメリシウム、キュリウムの分離 II (TRU レジンカラムによる分離)

TRU レジンカラム分離用試料溶液について 3.2.4 と同様の操作を行い、 $\alpha$  線計測用試料を調製する。

### 8.2.5 アメリシウム、キュリウムの定量

8.2.4 で得た  $\alpha$  線計測用試料について、第 9 章に従って  $\alpha$  線スペクトロメトリーでアメリシウム 241、キュリウム同位体の定量を行う。

---

\*<sup>8</sup> 流速は 1ml/分程度である。

\*<sup>9</sup> 大部分のプルトニウムは樹脂に吸着する。(プルトニウムの分離・測定の詳細は、文部科学省放射能測定法シリーズ 28「環境試料中プルトニウム迅速分析法(平成 14 年度)」を参照のこと。)

\*<sup>10</sup> アルミニウムのような両性水酸化物を生成する元素を溶液中に残し、除去する。

\*<sup>11</sup> 溶液中に残存する亜硝酸イオンを取り除く操作である。(亜硝酸イオン濃度が高いと、TRU レジンの抽出剤 CMP0 が分解される)

\*<sup>12</sup> 沈殿を溶解した液量は 50ml 以内とする。これ以上になるとカラム洗浄時にアメリシウム、キュリウムが溶出する。

## 第 9 章 $\alpha$ 線スペクトロメトリー

アメリカシウム、キュリウムをフッ化ネオジムと共沈して調製した測定試料をシリコン半導体検出器を用いた $\alpha$ 線スペクトロメトリーによって定量する。

アメリカシウム 241 及びキュリウム同位体の定量は、トレーサーとして添加したアメリカシウム 243 のピーク計数値との比較によって行う。

### 9.1 測定試料の調製

#### 9.1.1 試薬・器具・装置

##### 試薬

担体溶液      ネオジム担体溶液 (1mgNd<sup>3+</sup>/ml)

酸類            フッ化水素酸

その他         アスコルビン酸

器具            分離型ろ過器 (内径 25mm $\phi$ ) (プラスチック製のものが望ましい)、メン  
                  ブランフィルター (孔径 0.1 $\mu$ m、25mm $\phi$ )、ステンレス鋼板 (24mm $\phi$ 、厚  
                  さ 1mm)、ピンセット、両面テープ

#### 9.1.2 操作

- (1) 第 3～8 章で調製した $\alpha$ 線計測用試料調製溶液に水 30ml、アスコルビン酸 100mg及びネオジム担体溶液 (1mg Nd<sup>3+</sup>/ml)0.1mlを加え、かき混ぜる。
- (2) フッ化水素酸 6mlを加え、約 30 分間放置する。 \*<sup>1</sup>
- (3) プラスチック製分離型ろ過器とメンブランフィルターを用いて吸引ろ過し、フッ化物沈殿をメンブランフィルター上にマウントする。
- (4) フッ化物沈殿を少量の水で洗浄する。
- (5) メンブランフィルターを取りはずし、ペーパータオル上で約 5 分間自然乾燥する。
- (6) ステンレス鋼板上に両面テープを用いてメンブランフィルターをはりつけ $\alpha$ 線計測用試料とする。

### 9.2 測定

#### 9.2.1 測定装置

##### (1) 検出器の構成と特性

###### 1) シリコン半導体検出器

有効面積 450mm<sup>2</sup>、空乏層厚 100 $\mu$ m 程度で、5.3MeVの $\alpha$ 線に対するエネルギー分解能 (FWHM) が 20～40keV程度のも

---

\*<sup>1</sup> 生成するフッ化ネオジム沈殿は、目に見えない。

- (2) 計数装置、他
  - 1) 前置増幅器\*<sup>2</sup>
  - 2) 主増幅器\*<sup>2</sup>
  - 3) マルチチャンネル波高分析器（チャンネル数が 1,000 以上有するもの）
  - 4) プリンター、プロッター
  - 5) 検出器用電源\*<sup>2</sup>
  - 6) ビン電源
  - 7) 真空チェンバー\*<sup>2</sup>（検出器及び線源を所定の位置に確実に装着でき、かつ、油回転ポンプによる排気により 1Pa以下の真空を保持できるもの）
  - 8) 油回転式真空ポンプ
  - 9)  $\alpha$ 線スペクトル解析プログラム  
（得られた  $\alpha$ 線スペクトルをマルチチャンネル波高分析器からデータ処理装置（パソコン）に読み込み、ピークサーチ、エネルギー校正、核種同定・定量等を行う解析プログラムが市販されている。）

#### 9.2.2 測定機器に関する注意

- (1) 測定機器は、電氣的雑音を発生する他の機器（モータや電気遮断機など）や大電流を消費する機器からできるだけ離して設置し、電源を別系統とすることが望ましい。
- (2) アースをとるとともに、ケーブル類の配線はできるだけ短くし、グラウンドループなどによる雑音を拾わないようにする。
- (3) 検出器用電源系統のケーブルを外す場合には、検出器用電源が切れていることを確認する。
- (4) NIMモジュールとなっている増幅器などのビン電源への取付け、取り外しは、電源スイッチを切ってから行う。
- (5) 機械的なショックを与えないようにするとともに、真空ポンプの振動が伝わらないようにする。
- (6) 検出器及び電子機器は、酸などの蒸気にさらされないようにする。

#### 9.2.3 測定操作

- (1) 検出器の印加電圧が零になっていることを確認する。
- (2) リークバルブを開いて、真空チェンバー内を大気圧と等しくした後、試料交換口を開く。
- (3) ピンセットなどを使用し、所定の位置に 9.1 で調製した測定試料を固定する\*<sup>3</sup>。
- (4) 試料交換口を閉じ、検出器チェンバー内を真空にする。

---

\*<sup>2</sup> NIMモジュールに内蔵されているタイプのものが多い。

\*<sup>3</sup> 検出器から試料までの距離は 5mm程度が適当である。なお、増幅器ゲイン等の条件は、予め標準線源を用いて求めておく。

- (5) 十分排気して、真空度が上がった後(数Pa以下)、検出器用電源を指定の電圧(75~100V)まで上げる。<sup>\*4</sup>
- (6) 4時間程度測定する。
- (7) 測定終了後、各チャンネルにおける計数値とスペクトル図をプリンタなどに打ち出す。
- (8) 検出器印加電圧を徐々に下げて零にしてから、リークバルブを開き、真空チェンバー内を大気圧に等しくした後、試料交換口を開き、試料を取り出す。

### 9.3 放射能濃度の計算

放射能濃度の算出には、トレーサーの正味計数率と放射能濃度、定量核種の正味計数率及び分析供試量が必要であり、計数効率や化学収率は必ずしも必要としない。

測定データからアメリシウム 241、キュリウム同位体及び回収率を求めるために添加したアメリシウム 243 のそれぞれのピークについて正味計数率を求め、放射能濃度を計算する。

#### (1) 正味計数率

対象となるピークの計数率 $N$ とバックグラウンドにおける計数率 $N_b$ より、次式に従って正味計数率 $N_s$ を求める。

$$N_s = N - N_b$$

$$\sigma_s = \left[ \frac{N}{t^2} + \frac{N_b}{t_b^2} \right]^{1/2}$$

$N_s$  : 正味計数率 (cps)

$N$  : 試料の計数率 (cps)

$N_b$  : バックグラウンドの計数率 (cps)

$t$  : 試料の測定時間 (s)

$t_b$  : バックグラウンドの測定時間 (s)

---

<sup>\*4</sup> 高電圧用バッファがついていないものは、電圧を徐々に上げなければならない。

## (2) 放射能濃度

試料中の分析対象核種の放射能濃度 A を次式に従って求める。

$$A = \frac{N_s D}{N_{TR} W}$$

$$\sigma_A = A \left( \left( \frac{\sigma_s}{N_s} \right)^2 + \left( \frac{\sigma_{TR}}{N_{TR}} \right)^2 + \left( \frac{\sigma_D}{D} \right)^2 \right)^{1/2}$$

A : 定量核種の放射能濃度 (Bq/kg、 Bq/L 等)

$\sigma_A$  : 定量核種の放射能濃度の計数誤差 (Bq/kg、 Bq/L等)

$N_s$  : 定量核種の正味計数率 (cps)

$\sigma_s$  : 定量核種の正味計数率に対する計数誤差(cps)

W : 分析供試量 (kg、 L 等)

D : トレーサー (アメリシウム 243) の放射能(Bq)

$\sigma_D$  : トレーサー (アメリシウム 243) の放射能の誤差 (Bq)

$N_{TR}$  : トレーサー (アメリシウム 243) の正味計数率(cps)

$\sigma_{TR}$  : トレーサー (アメリシウム 243) の正味計数率に対する誤差 (cps)

## 第 10 章 Ge 半導体検出器を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリー

試料中のアメリシウム 241 からの  $\gamma$  線 (59.5keV) を測定することによりアメリシウム 241 を定量する。

本法は化学分離の必要はなく、アメリシウム 241 の放射能濃度が高い試料への適用が可能であり、またスクリーニングとしても有用である。

### 10.1 試薬・器具・装置

|    |   |
|----|---|
| 試薬 | アメリシウム 241 標準溶液 (アメリシウム 241 : 50Bq/ml 程度)                       |
| 器具 | 天秤 (秤量範囲 0~100g、読みとり限度 0.1mg 以下)、測定容器 (スチロール製容器等)               |
| 装置 | 低エネルギー光子スペクトロメータ (以下LEPS* <sup>1</sup> と記す) あるいは n型ゲルマニウム半導体検出器 |

### 10.2 効率校正用線源の調製

59.5keV に対する計数効率曲線を作成するため、アメリシウム 241 標準溶液を用いて、数個の異なった容量の効率校正用溶液線源を作製する。

#### 10.2.1 調製方法

- (1) 測定容器の空重量を測定する。
- (2) アメリシウム 241 標準溶液 (アメリシウム 241: 50Bq/ml 程度) 10、20、40、80ml を測定容器に分取する。
- (3) 測定容器の重量を測定し、加えたアメリシウム 241 標準溶液の重量と放射能を求める。

### 10.3 試料の測定

LEPSあるいは n型ゲルマニウム半導体検出器\*<sup>2</sup>により、アメリシウム 241 の  $\gamma$  線 (59.5keV) を測定し、試料中のアメリシウム 241 を定量する。

#### 10.3.1 測定方法

効率校正用線源及び測定試料を、およそ 0.1keV/ch に設定した LEPS あるいは n 型ゲルマニウム半導体検出器により 20,000 秒程度測定する。

#### 10.3.2 放射能濃度の計算

- (1) ピーク領域及びバックグラウンド領域の設定とピーク面積の計算
  - 1) 校正用線源を測定して得られたスペクトルを用いて、対象とする  $\gamma$  線 (59.5keV) のピーク領域とベースライン領域を設定し、ピーク面積を求める。

---

\*<sup>1</sup> Low Energy Photon Spectrometerの略語。

\*<sup>2</sup> 入射窓が薄くおよそ 10keV 以上のエネルギー領域を測定できる。

2) 試料のピーク領域とベースライン領域は、校正用線源と同一のチャンネルとする。ただし、ベースライン領域に他のピークが見られる時は、そこを避けて、ベースライン領域を設定する。<sup>\*3</sup>

(2) ピーク効率曲線の作成

1) 容量(または高さ)を変数とするピーク効率曲線を作成するため、10.2.1で調製した効率校正用線源の測定結果からピーク効率を次式に従って求める。

$$E = N_s / t / (0.359A_0)$$

E : 59.5keVにおけるピーク効率

$N_s$  : ピークの正味計数値(ピーク面積)

t : 測定時間(s)

$A_0$  : アメリシウム 241 の添加量(Bq)

2) ピーク効率 E を縦軸に、測定試料量(または試料高)を横軸にとり、ピーク効率曲線を作成する。図 10.1 に LEPS によるピーク効率曲線の例を示す。

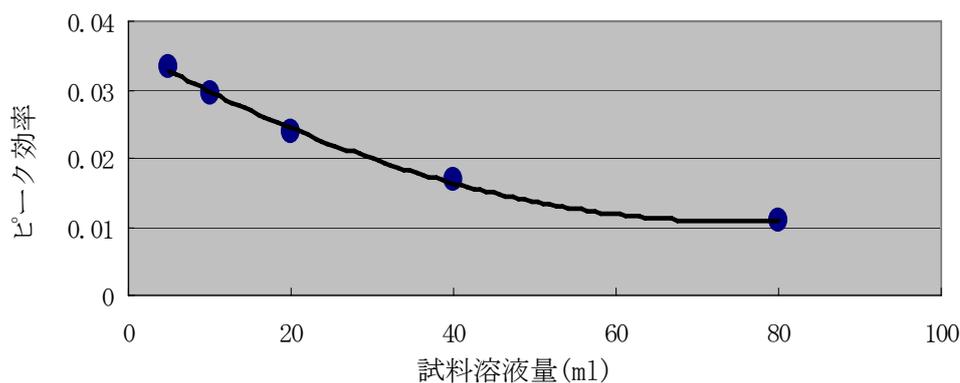


図 10.1 LEPS によるピーク効率曲線の例

(3) 試料中のアメリシウム 241 放射能濃度の計算

$$A = \frac{N/t}{0.359 \cdot E \cdot W} K$$

$$\sigma_A = \left[ \sigma_N / N \right] A$$

<sup>\*3</sup> 詳細については、文部科学省放射能測定法シリーズ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)を参照のこと。

- A : 試料中のアメリカシウム 241 の放射能濃度(Bq/kg、L 等)
- $\sigma_A$  : Aの計数誤差(Bq/kg、L等)
- N : 試料の 59.5keV におけるピーク領域の正味計数値
- $\sigma_N$  : Nの計数誤差
- t : 測定時間(s)
- E : 59.5keV におけるピーク効率〔試料量(または高さ)に相当するピーク効率  
ピーク効率曲線から求める。〕
- W : 測定供試量(kg、L 等)
- K : 自己吸収補正係数<sup>\*4</sup>

---

<sup>\*4</sup> 詳細については、文部科学省放射能測定法シリーズ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)を参照のこと。

解 說

## 解説 A アメリシウム及びキュリウムの分離・精製

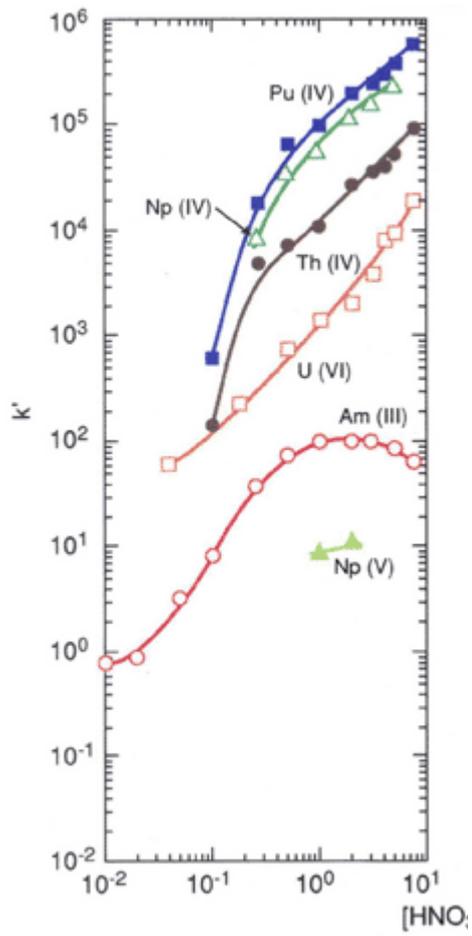
### 解説 A-1 TRU レジンについて

TRU レジンは米国 Eichrom Technologies 社より販売されている抽出クロマトグラフィー用樹脂である。TRU レジンは樹脂単体の他に、一定量を充填したカラム（パックドレジンカラム）としても販売されている。

TRU レジンは、抽出剤として有機リン系の CMPO（オクチルフェニル-N,N-ジイソブチルカルバモイルメチルホスフィンオキシド）をメタクリレート樹脂（Amberchrom CG-71）に保持した樹脂であり、0.5mol/L 以上の硝酸溶液からⅢ価のランタノイドとⅢ、Ⅳ、Ⅵ価のアクチノイドを抽出できる。この樹脂のアクチノイドに対する分配係数を図 A.1 に示す。

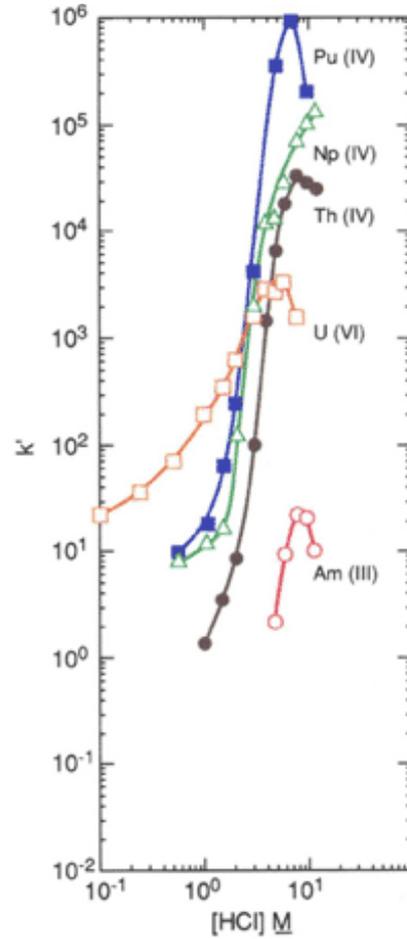
また、同樹脂カラムを用いたアクチノイドの逐次分離例を図 A.2 に、プルトニウムとメリシウム（ネオジウムで代用）のグループ分離例（科学技術庁委託 低レベル放射性廃棄物再利用技術開発に関する分析調査研究成果報告書、平成 11 年度、全 $\alpha$ 核種分析）を図 A.3 に示す。

メリシウムは、0.5mol/L 以上の硝酸溶液で樹脂に吸着し、トリウム、ウランはこの条件下では、吸着せず通過する。なお、硝酸（1~2mol/L）溶液で、この樹脂に吸着する元素は、希土類、テクネチウム、ポロニウム、ビスマス、トリウム、ウラン、ネプツニウム、プルトニウム等であり、土壤中に多量に含まれる鉄(Ⅲ)のメリシウム(Ⅲ)の吸着に及ぼす影響は、アスコルビン酸を添加し、鉄(Ⅱ)に還元することで抑制できる。



Horwitz, et al. (HP193)

$\text{HNO}_3$  (M)



Horwitz, et al. (HP193)

$\text{HCl}$  (M)

図 A.1 TRU レジンにおける分配係数

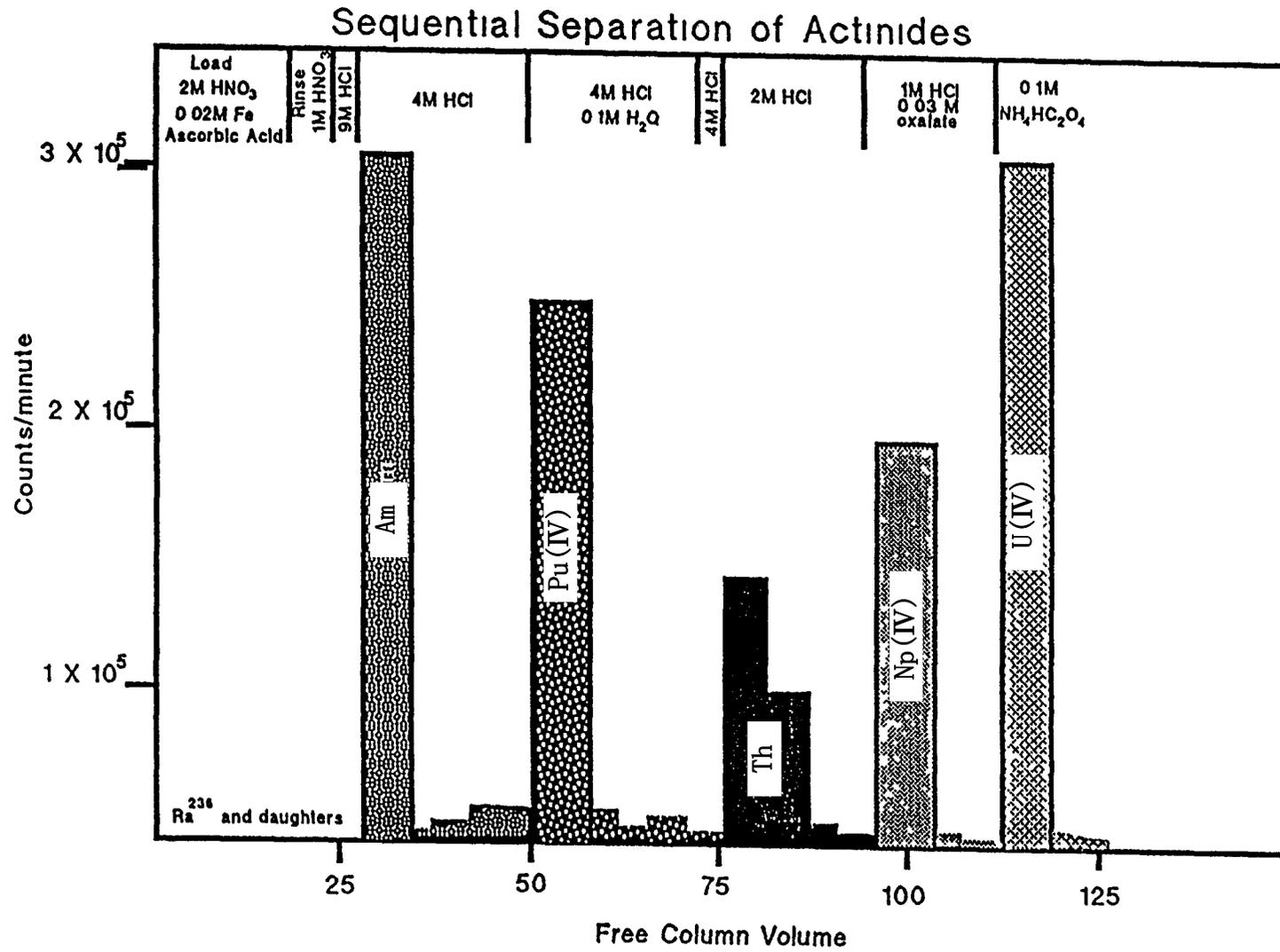
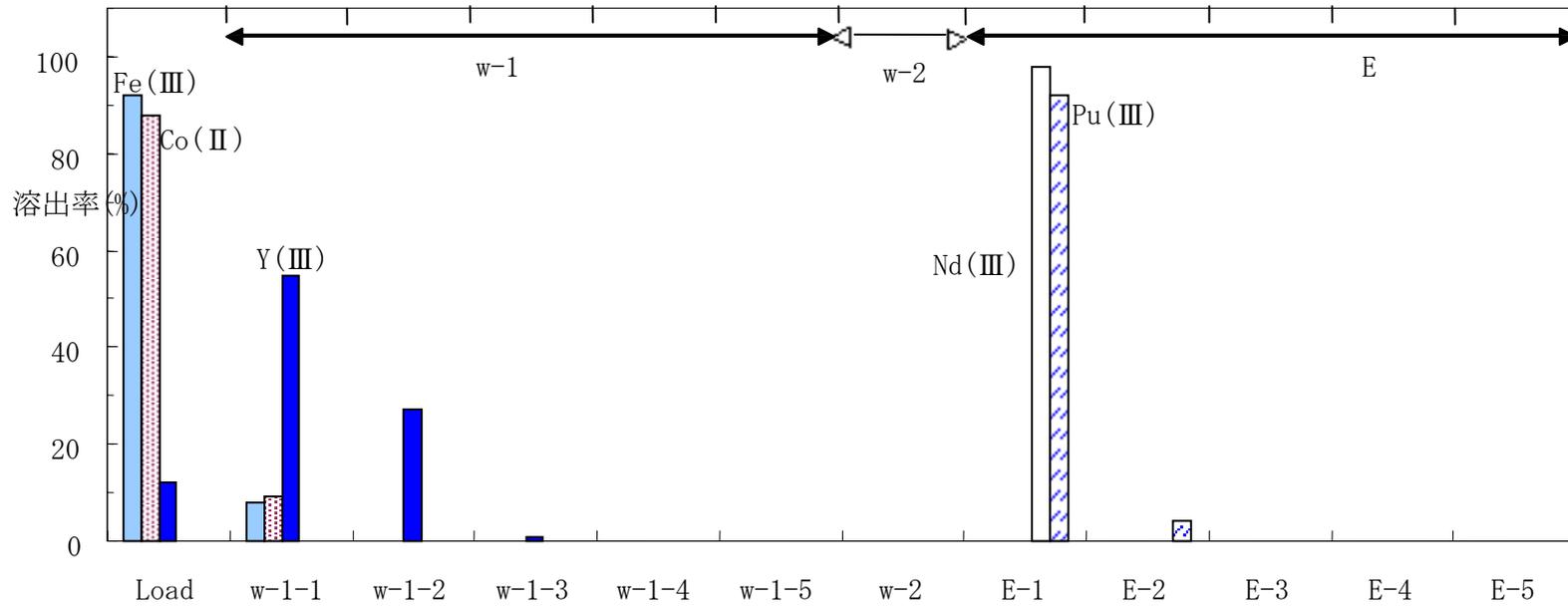


図 A. 2 TRU レジンを用いたアクチニドの逐次分離例



TRU レジンカラムにおける Fe(III), Co(II), Y(III), Nd(III), Pu(III) の溶離挙動

Load : HNO<sub>3</sub> (1mol/L) / アスコルビン酸 (0.3mol/L)

w-1 : HNO<sub>3</sub> (1mol/L) / アスコルビン酸 (0.3mol/L) 20ml

w-2 : HCl (10mol/L) 4ml

E : HCl (4mol/L) / アスコルビン酸 (0.03mol/L)

図 A.3 プルトニウムとアメリシウム (ネオジム) のグループ分離例  
(科学技術庁委託、低レベル放射性廃棄物再利用技術開発に関する分析法調査研究、平成 11 年度、全 α 核種分析)

### 1. 目的

アメリカシウム 241、キュリウム迅速分析法は、プルトニウム迅速分析法における陰イオン交換樹脂にプルトニウムを吸着させたときの通過液を試料溶液とした。

しかし、この通過液は、硝酸(8mol/L)酸性となっており亜硝酸イオンを多く含むので、そのまま TRU レジンカラムに通すことができない。このため、この通過液から TRU レジンカラム分離において妨害となる亜硝酸イオンを取り除くとともに、アメリカシウムを損失することなしに 40ml 程度の硝酸(1mol/L)ーアスコルビン酸(0.3mol/L)溶液 (TRU レジンカラム分離溶液) に調製する方法について検討した。

### 2. 方法

土壌試料のプルトニウム分離後の通過液を用いて、アンモニア水または水酸化ナトリウムを用いて水酸化物沈殿を生成し、この沈殿を硝酸ーアスコルビン酸(0.3mol/L)溶液で溶解する方法を検討した。

### 3. 結果

アンモニア水を用いて水酸化物沈殿を生成すると多量の沈殿が生成するため、10g の土壌試料を処理して得た沈殿を酸で溶解したときの液量が 60~80ml となった。さらに溶解時にシリカが析出して TRU レジンカラムに通液する際に妨害となった。このことから、沈殿の生成には水酸化ナトリウムを用いることとした。また、土壌については、シリカ及びアルミニウムをできるだけ取り除くために再沈殿操作を行うこととした。

また、1 回の沈殿分離操作では、亜硝酸イオン等の除去が不十分であるため、沈殿を塩酸で溶解後再びアンモニア水で沈殿を生成することとした。なお、沈殿の溶解に硝酸を用いると酸化鉄が生成し、溶解しにくくなる可能性があることから塩酸を用いることとした。

沈殿を溶解し、カラム分離用の溶液を調製する操作において、最終溶液量は加える硝酸量より 10~15ml 多くなる。また、沈殿はより濃度の高い硝酸を用いる方が容易に溶解する。さらに、硝酸濃度が 1~2mol/L の範囲であれば TRU レジンカラムにおけるアメリカシウムの分配係数に差はないので、再沈殿の溶解には硝酸(2mol/L)ーアスコルビン酸(0.3mol/L) 30ml を用いることとした。

1. 目的

トリウム、ウランの娘核種である放射性ビスマスはα線スペクトロメトリーにおいて妨害となることから、ビスマス及びプルトニウムの分離とアメリシウムの溶離条件について検討した。

2. 方法

以下に示す2種類の硝酸(1mol/L)-アスコルビン酸(0.3mol/L)溶液(液量:50ml)を調製した。(なお、ビスマスと同様トリウム、ウランの娘核種である鉛は、樹脂に吸着しない。)

試料-1 鉄:250mg、ビスマス:5mg、プルトニウム 242:1.6dpm、  
アメリシウム 243:6.2dpm

試料-2 鉄:250mg、プルトニウム 242:1.6dpm、アメリシウム 243:6.2dpm

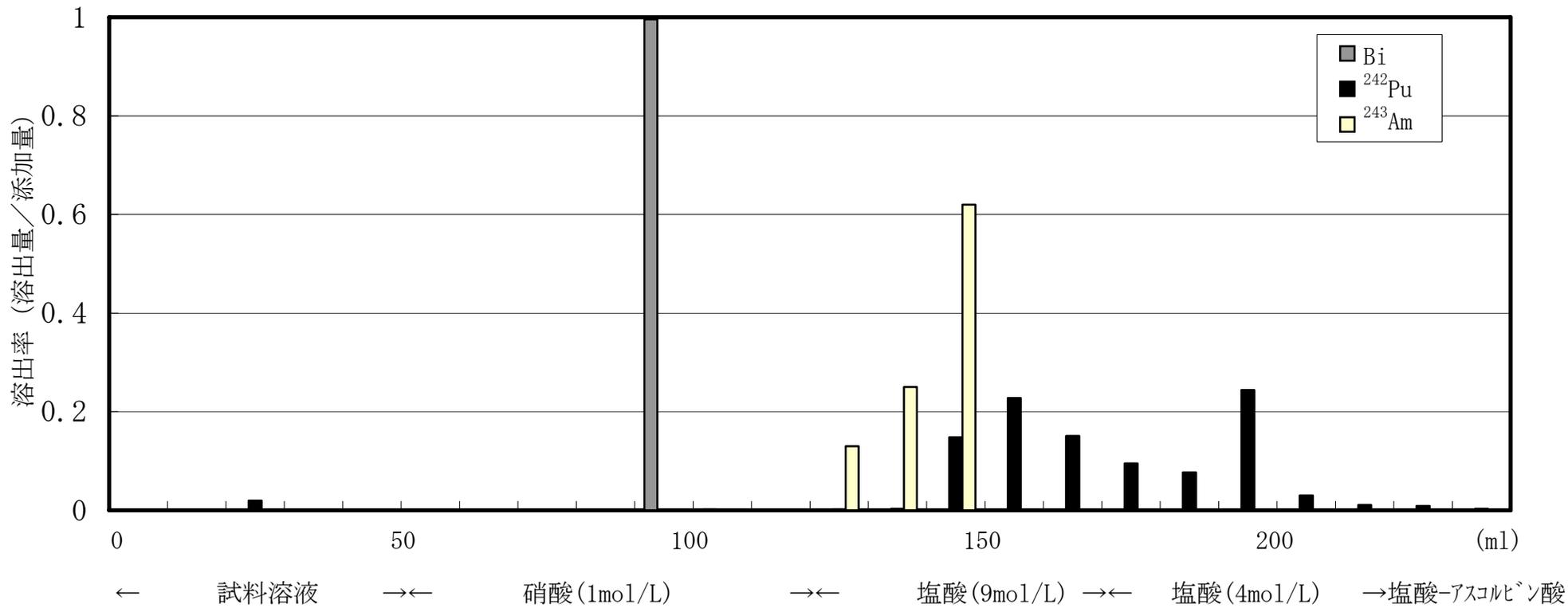
上記試料溶液をカラム(樹脂量:5ml)に通した後、硝酸(1mol/L)、塩酸(9mol/L)、塩酸(4mol/L)、塩酸(4mol/L)-アスコルビン酸(0.3mol/L)を逐次通し、流出液中の元素の定量を行った。なお、試料-2については、樹脂に吸着したプルトニウム(III)をプルトニウム(IV)に酸化する目的で、硝酸(1mol/L)を通した後硝酸(1mol/L)-0.2%亜硝酸ナトリウムを通し、この後塩酸(9mol/L)を通した。ビスマスはICP-AES、プルトニウム 242はICP-MS、アメリシウム 243はα線スペクトロメトリーで定量した。各溶液の液量は表A.1に示した。

3. 結果と考察

結果を表A.1及び図A.4, A.5に示す。

表 A.1 TRU レジンカラムにおけるビスマス、アメリシウム、キュリウムの分離

| 溶出液                                  | 液量<br>(ml) | 溶出率 (溶出量/添加量) |                   |        |                   |       |
|--------------------------------------|------------|---------------|-------------------|--------|-------------------|-------|
|                                      |            | Bi            | <sup>242</sup> Pu |        | <sup>243</sup> Am |       |
|                                      |            | 試料-1          | 試料-1              | 試料-2   | 試料-1              | 試料-2  |
| 試料溶液                                 | 50         | 0.00          | 0.02              | 0.02   | <0.01             | <0.01 |
| 硝酸(1mol/L)                           | 0~30       | <0.001        | <0.005            | <0.002 | <0.01             | <0.01 |
|                                      | 30~40      | <0.001        | <0.0003           | <0.001 | <0.01             | <0.01 |
| 硝酸(1mol/L)<br>0.2%亜硝酸<br>ナトリウム       | 0~10       | —             | —                 | <0.001 | —                 | <0.01 |
|                                      | 10~20      | —             | —                 | <0.001 | —                 | <0.01 |
|                                      | 20~30      | —             | —                 | <0.001 | —                 | <0.01 |
| 塩酸(9mol/L)                           | 0~10       | 0.996         | <0.2              | <0.001 | —                 | 0.04  |
|                                      | 10~20      | 0.002         | <0.02             | <0.001 | <0.01             | 0.03  |
|                                      | 20~30      | 0.001         | <0.01             | <0.001 | <0.01             | 0.08  |
|                                      | 30~40      | <0.001        | 0.002             | <0.001 | 0.13              | 0.15  |
|                                      | 40~50      | <0.001        | 0.003             | <0.001 | 0.25              | 0.13  |
| 塩酸(4mol/L)                           | 0~10       | <0.00         | 0.148             | <0.001 | 0.62              | 0.57  |
|                                      | 10~20      | <0.001        | 0.228             | 0.001  | <0.01             | <0.01 |
|                                      | 20~30      | <0.001        | 0.151             | <0.001 | <0.01             | <0.01 |
|                                      | 30~40      | <0.001        | 0.095             | 0.002  | <0.01             | <0.01 |
|                                      | 40~50      | <0.001        | 0.077             | <0.001 | <0.01             | <0.01 |
| 塩酸(4mol/L)-<br>アスコルビン<br>酸(0.3mol/L) | 0~10       | <0.001        | 0.244             | 0.528  | <0.01             | <0.01 |
|                                      | 10~20      | <0.001        | 0.030             | 0.355  | <0.01             | <0.01 |
|                                      | 20~30      | <0.001        | 0.011             | 0.047  | <0.01             | <0.01 |
|                                      | 30~40      | <0.001        | 0.009             | 0.022  | <0.01             | <0.01 |
|                                      | 40~50      | <0.001        | 0.003             | 0.016  | <0.01             | <0.01 |



図A.4 TRUレジンカラムにおけるビスマス、プルトニウム、アメリシウムの分離  
(樹脂量: 5ml、添加量: ビスマス 5mg、  
プルトニウム<sup>242</sup> 1.6dpm、アメリシウム<sup>243</sup> 6dpm)

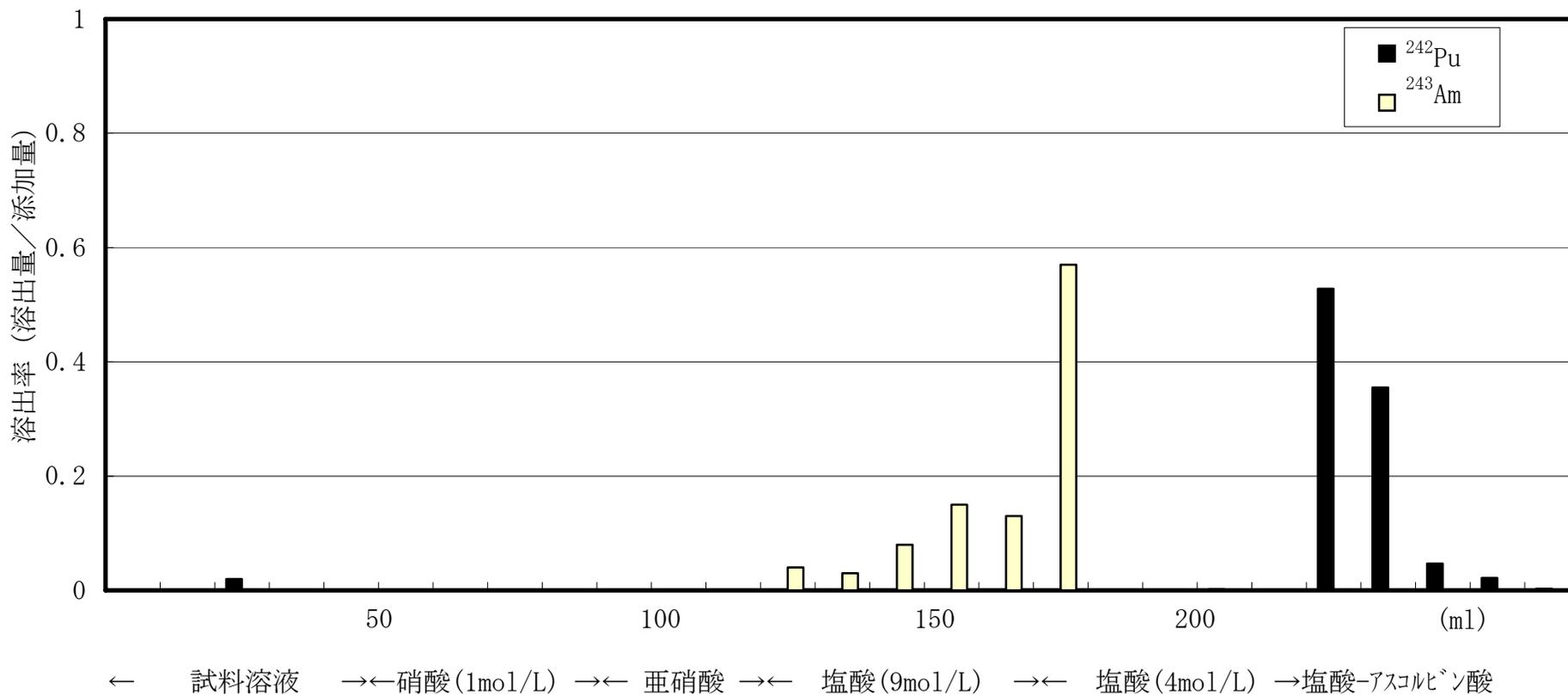


図 A.5 TRUレジンカラムにおけるプルトニウム，アメリシウムの分離-  
亜硝酸イオンによるプルトニウムの酸化  
(樹脂量：5ml、添加量：プルトニウム242 1.6dpm、  
アメリシウム243 6dpm)

TRU レジンカラムを用いるプルトニウムの除去とアメリカシウム（Am）の分離の結果は以下のとおりであった。

① ビスマスの分離

塩酸(9mol/L) 10ml を通すことにより、分離除去できた。

② プルトニウムの分離

試料-1 については、塩酸(4mol/L)（プルトニウム(III)の溶離）と塩酸(4mol/L)-アスコルビン酸(0.3mol/L)（アスコルビン酸によりプルトニウム(IV)からプルトニウム(III)に還元して溶離）の 2 種類の溶離液に分かれて溶出した。一方、プルトニウムをカラムに吸着後、亜硝酸ナトリウム溶液を通すことによりプルトニウム(III)をプルトニウム(IV)に酸化した試料-2 については、塩酸(4mol/L)では溶出せず、塩酸(4mol/L)-アスコルビン酸(0.3mol/L)のみで溶出した。このことは、亜硝酸ナトリウム溶液を通すことにより樹脂に吸着しているプルトニウム(III)を塩酸(4mol/L)では溶出しないプルトニウム(IV)に酸化でき、アメリカシウム（塩酸(4mol/L)で溶出）と分離できることを示している。

③ アメリカシウムの分離

試料-1、2 共に、アメリカシウムを溶離するための塩酸(4mol/L)を通す前の段階（溶液通過量：120～130ml）からアメリカシウムが溶出してきた。これは硝酸(1mol/L)におけるアメリカシウムの分配係数（～100）がそれほど大きくなく、さらに本検討は分離状況の確認を目的とすることから、それぞれ過剰の溶液量を通したことによるものである。そこで、硝酸(1mol/L)によるアメリカシウムの溶出挙動について、鉄の影響も考慮して以下に示す 2 種類の試料を用いて詳細に検討した。

試料-1 アメリカシウム 3dpm 添加硝酸(1mol/L)-アスコルビン酸(0.3mol/L)溶液 溶液量：50ml

試料-2 アメリカシウム 3dpm、鉄 250mg 添加硝酸(1mol/L)-アスコルビン酸(0.3mol/L)溶液 溶液量：50ml

上記の溶液を TRU レジンカラム（樹脂量：5ml）に通した後硝酸(1mol/L)を通し、流出液 25ml ずつを採取し、それぞれについてアメリカシウムを  $\alpha$  線スペクトロメトリーで定量した結果を表 A. 2 及び図 A. 6 に示す。

樹脂に吸着したアメリカシウムは、硝酸(1mol/L)を通すことにより、試料溶液量も併せて 150ml 程度で溶出し始め、250ml を通すと合計で約 20%のアメリカシウムが溶出した。なお、鉄が共存してもアメリカシウムの溶出挙動に顕著な差はみられなかった。

以上①～③の検討結果をもとに決定した TRU レジンカラムによるアメリカシウム分離条件を図 A. 7 に示す。

表 A.2 アメリカシウムの硝酸(1mol/L)における溶出液量

| 溶液 (液量)                | アメリカシウム溶出率<br>(溶出量/添加量) |       |
|------------------------|-------------------------|-------|
|                        | 試料-1                    | 試料-2  |
| 試料溶液 (0- 50ml)         | <0.01                   | <0.01 |
| 硝酸(1mol/L) ( 50- 75ml) | <0.01                   | <0.01 |
| 硝酸(1mol/L) ( 75-100ml) | <0.01                   | <0.01 |
| 硝酸(1mol/L) (100-125ml) | <0.01                   | <0.01 |
| 硝酸(1mol/L) (125-150ml) | 0.01                    | 0.01  |
| 硝酸(1mol/L) (150-175ml) | 0.02                    | 0.04  |
| 硝酸(1mol/L) (175-200ml) | 0.04                    | 0.03  |
| 硝酸(1mol/L) (200-225ml) | 0.05                    | 0.08  |
| 硝酸(1mol/L) (225-250ml) | 0.06                    | 0.07  |
| 硝酸(1mol/L) (250-275ml) | 0.08                    | 0.10  |
| 硝酸(1mol/L) (275-300ml) | 0.08                    | 0.11  |
| 硝酸(1mol/L) (300-325ml) | 0.08                    | 0.09  |
| 硝酸(1mol/L) (325-350ml) | 0.09                    | 0.10  |
| 塩酸(4mol/L)-アスコルビン酸     | 0.38                    | 0.36  |

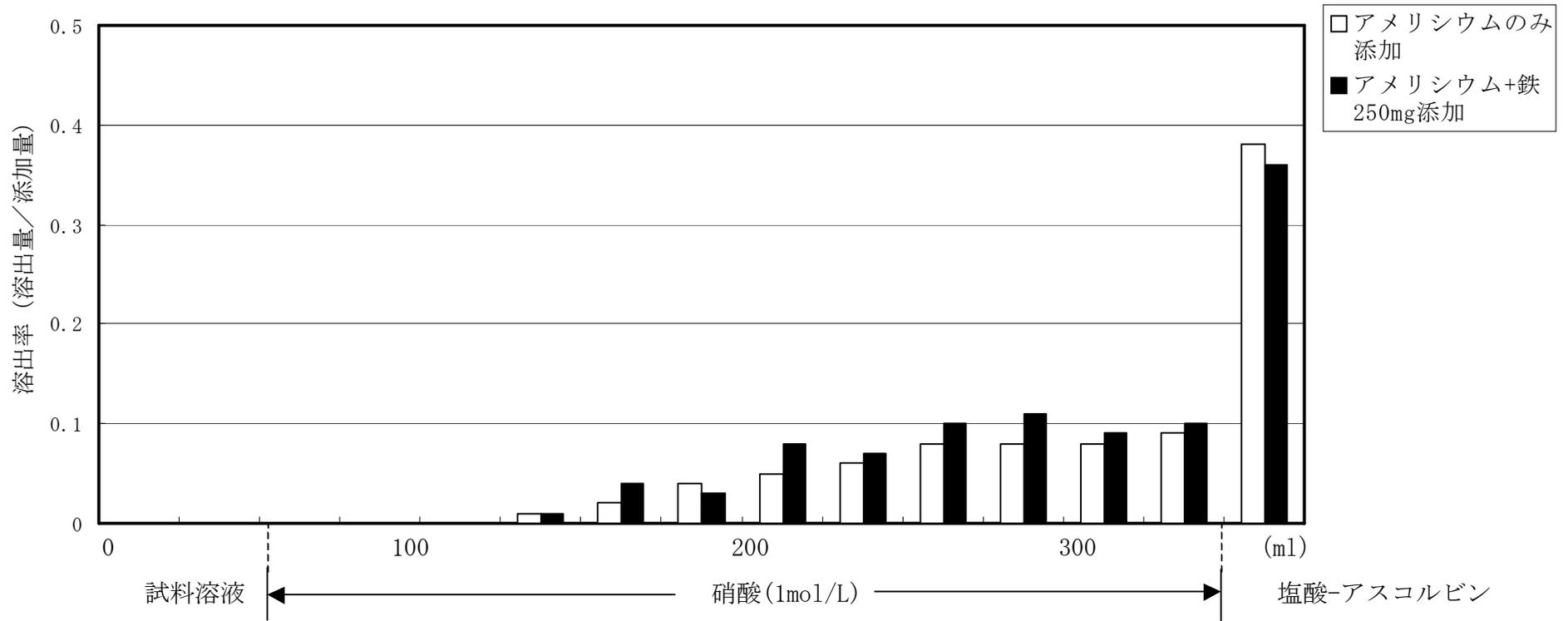


図 A.6 TRUレジンカラムの硝酸(1mol/L)におけるアメリシウムの溶出  
(樹脂量: 5ml、添加量: アメリシウム243 : 3.1dpm)

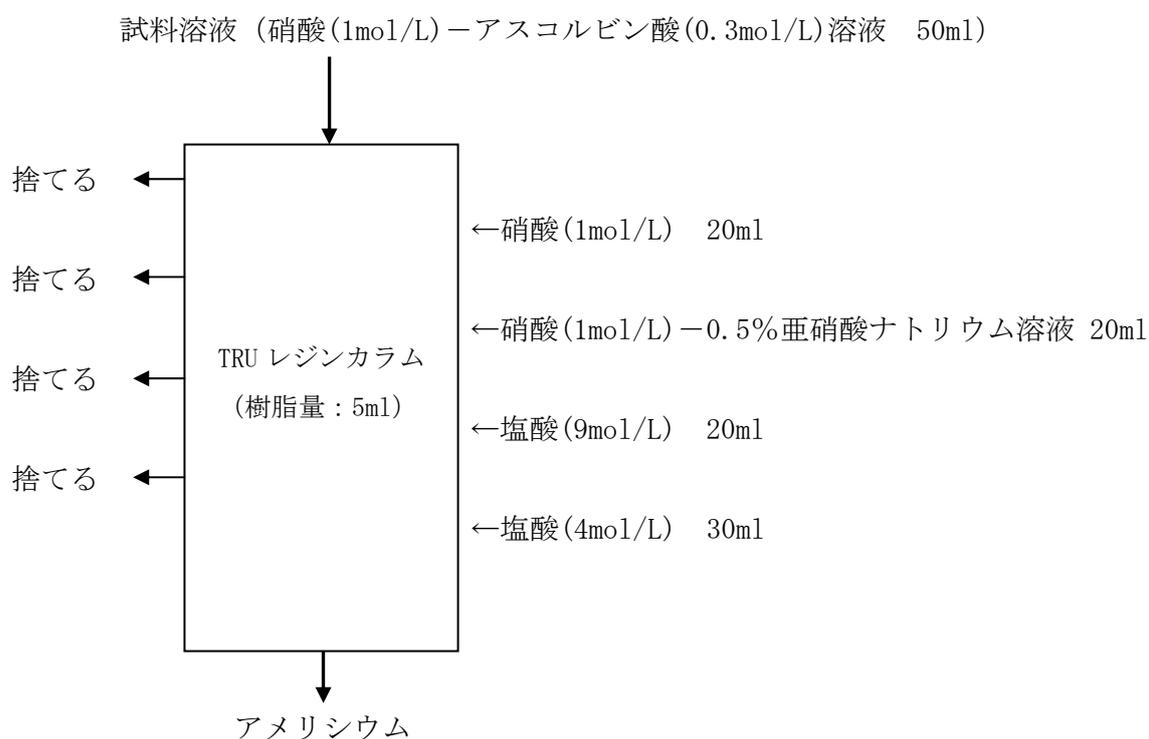


図 A.7 TRU レジンカラムにおけるアメリカシウムの分離条件

## 解説 A-4 TRU レジンカラムによる除染係数

### 1. 目的

TRU レジンカラムを用いたアメリカシウム分離条件（解説 A-3 参照）による除染係数及びアメリカシウム回収率を確認する。

### 2. 方法

アメリカシウム 243 6.2dpm の他にプルトニウム 242 1.6dpm、トリウム 50  $\mu$ g、ウラン 50  $\mu$ g、鉄 250mg、鉛 1mg、ビスマス 1mg を添加した試料溶液について解説 A-3 に基づき決定した操作を行い、それぞれの溶出液について添加元素（核種）を定量した。なお、プルトニウムの挙動を確認するためにアメリカシウムの溶離後に塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)を用いてプルトニウムを溶離した。

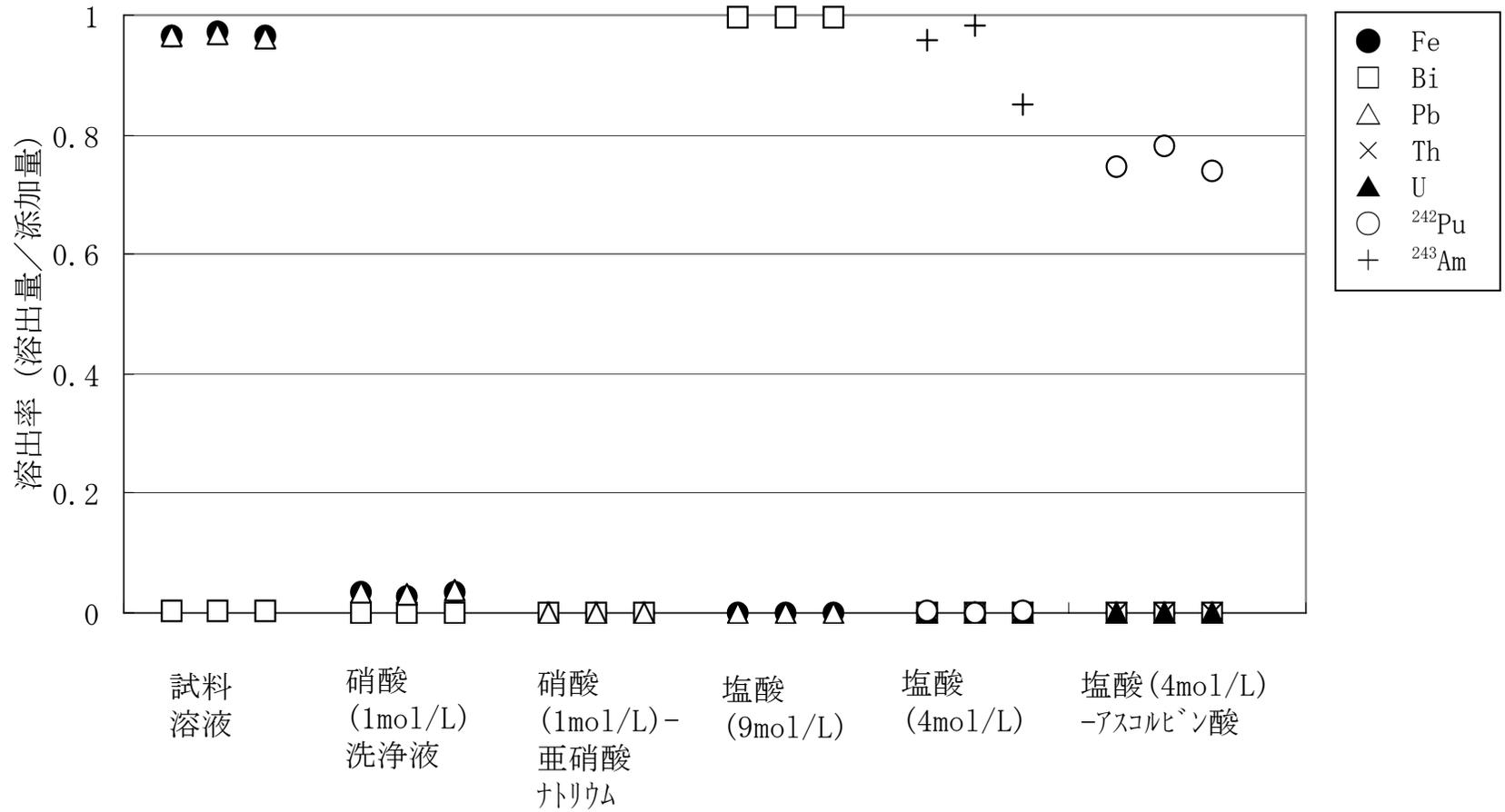
### 3. 結果及び考察

結果を表 A.3 及び図 A.8 に示す。

設定した分離条件において、アメリカシウムの回収量は 80～100% であり、また、添加した他の元素は全て除去された。なお、アメリカシウムフラクションにおける除染係数は、鉄  $>2 \times 10^4$ 、ビスマス  $2 \times 10^2$ 、鉛  $>2 \times 10^2$ 、トリウム  $>3 \times 10^4$ 、ウラン  $>5 \times 10^5$ 、プルトニウム  $5 \times 10^2$  であった。

表 A.3 TRU レジンカラムを用いるアメリカシウムの回収率と他元素との分離

| 溶液（液量）                           | 試料<br>No. | 溶出率（溶出量/添加量） |        |        |       |       |                   |                   |
|----------------------------------|-----------|--------------|--------|--------|-------|-------|-------------------|-------------------|
|                                  |           | Fe           | Bi     | Pb     | Th    | U     | <sup>242</sup> Pu | <sup>243</sup> Am |
| 試料溶液（50ml）                       | No. 1     | 0.966        | 0.005  | 0.967  |       |       |                   |                   |
|                                  | No. 2     | 0.973        | 0.005  | 0.97   |       |       |                   |                   |
|                                  | No. 3     | 0.966        | 0.005  | 0.961  |       |       |                   |                   |
| 硝酸(1mol/L)（20ml）                 | No. 1     | 0.034        | <0.005 | 0.033  |       |       |                   |                   |
|                                  | No. 2     | 0.027        | <0.005 | 0.03   |       |       |                   |                   |
|                                  | No. 3     | 0.034        | <0.005 | 0.039  |       |       |                   |                   |
| 硝酸(1mol/L)－亜硝酸<br>ナトリウム溶液(20ml)  | No. 1     | <0.001       | <0.005 | <0.005 |       |       |                   |                   |
|                                  | No. 2     | <0.001       | <0.005 | <0.005 |       |       |                   |                   |
|                                  | No. 3     | <0.001       | <0.005 | <0.005 |       |       |                   |                   |
| 塩酸(9mol/L)（20ml）                 | No. 1     | <0.001       | 0.995  | <0.005 |       |       |                   |                   |
|                                  | No. 2     | <0.001       | 0.995  | <0.005 |       |       |                   |                   |
|                                  | No. 3     | <0.001       | 0.995  | <0.005 |       |       |                   |                   |
| 塩酸(4mol/L)（30ml）                 | No. 1     | <0.001       | <0.005 | <0.005 | <3E-5 | <5E-6 | 0.003             | 0.957             |
|                                  | No. 2     | <0.001       | <0.005 | <0.005 | <3E-5 | <5E-6 | 0.001             | 0.981             |
|                                  | No. 3     | <0.001       | <0.005 | <0.005 | <3E-5 | <5E-6 | 0.002             | 0.852             |
| 塩酸(4mol/L)<br>－アスコルビン酸<br>(30ml) | No. 1     | <0.001       | <0.005 | <0.005 | <3E-5 | <5E-6 | 0.748             |                   |
|                                  | No. 2     | <0.001       | <0.005 | <0.005 | <3E-5 | <5E-6 | 0.781             |                   |
|                                  | No. 3     | <0.001       | <0.005 | <0.005 | <3E-5 | <5E-6 | 0.739             |                   |



図A.8 TRUレジンカラムにおける他元素の分離  
(添加量 Fe ; 250mg, Bi:1mg, Pb:1mg, Th : 50  $\mu$  g,  
U : 50  $\mu$  g, <sup>242</sup>Pu242 : 1.6dpm, <sup>243</sup>Am:6.2dpm)

市販の TRU レジン 5ml のカラムを用い、本検討で設定した条件で分離を行うことにより、 $\alpha$  線スペクトロメトリーにおいて問題となる環境試料中のトリウム、ウラン、ラジウムの娘核種である鉛 210、ビスマス 210 及びプルトニウムをアメリカシウムから除去することができる。また、同法は土壌のように多量に鉄を含む試料へも適用できる。なお、本法によるアメリカシウムの回収量は 80%以上である。所要時間は 1~1.5 時間であり、これは、従来法の 2~3 日に比べると大幅に短い。

## 解説 B 測定試料の調製法(フッ化ネオジム共沈法)

TRU カラムを用いる分離法では、アメリカシウム及びキュリウムを希土類元素と分離できないので、土壌試料について電着試料を用いて測定した $\alpha$ 線スペクトルではピークが広がり、アメリカシウム及びキュリウムの定量が困難となる。このため、 $\alpha$ 線スペクトロメトリーにおいて比較的ピークの広がりが少なく、計測試料を短時間で調製できるフッ化ネオジム共沈法を検討した。

### 1. アメリカシウム及びキュリウムフラクション中の不純物の確認

土壌 10g を試料として TRU レジンカラム分離法によって採取したアメリカシウム及びキュリウムフラクション中に含まれる不純物の定量結果を表 B. 1 に示す。

表 B. 1 から、セリウム、ランタン、ネオジム等の希土類元素は TRU カラム法では分離されないことがわかる。例えば、土壌試料では 0.3mg 程度の希土類元素がアメリカシウム及びキュリウムと共存している。

表 B. 1 TRU カラム分離法によるアメリカシウム, キュリウムフラクション中の不純物  
(土壌試料 10g)

| 元素            | 試料-1 | 試料-2 | 試料-3 |
|---------------|------|------|------|
| Fe ( $\mu$ g) | 3    | <2   | 6    |
| Y ( $\mu$ g)  | <3   | <3   | <3   |
| Ce ( $\mu$ g) | 290  | 220  | 290  |
| La ( $\mu$ g) | 10   | 11   | 20   |
| Nd ( $\mu$ g) | 120  | 90   | 120  |
| Pb ( $\mu$ g) | <20  | <20  | <20  |
| Bi ( $\mu$ g) | <30  | <30  | <30  |
| Th (ng)       | 0.6  | 0.6  | 0.5  |
| U (ng)        | 1.2  | 0.7  | 0.7  |

### 2. フッ化ネオジム沈殿に共沈したアメリカシウムの $\alpha$ 線スペクトル

#### 1) 検討方法

アメリカシウム、キュリウムを共沈させたフッ化ネオジム沈殿を $\alpha$ 線計測試料としたときの $\alpha$ 線スペクトルの形状を確認するため、ネオジム 0.1mg あるいは 1mg にアメリカシウム 241 とアメリカシウム 243 を添加しフッ化水素酸を加えて調製したフッ化ネオジム沈殿について、シリコン半導体検出器を用いて $\alpha$ 線スペクトルを測定した。

Acquired:2001-03-12 17:39:27 Real Time:160001.0(sec) Live Time:160001.0(sec)

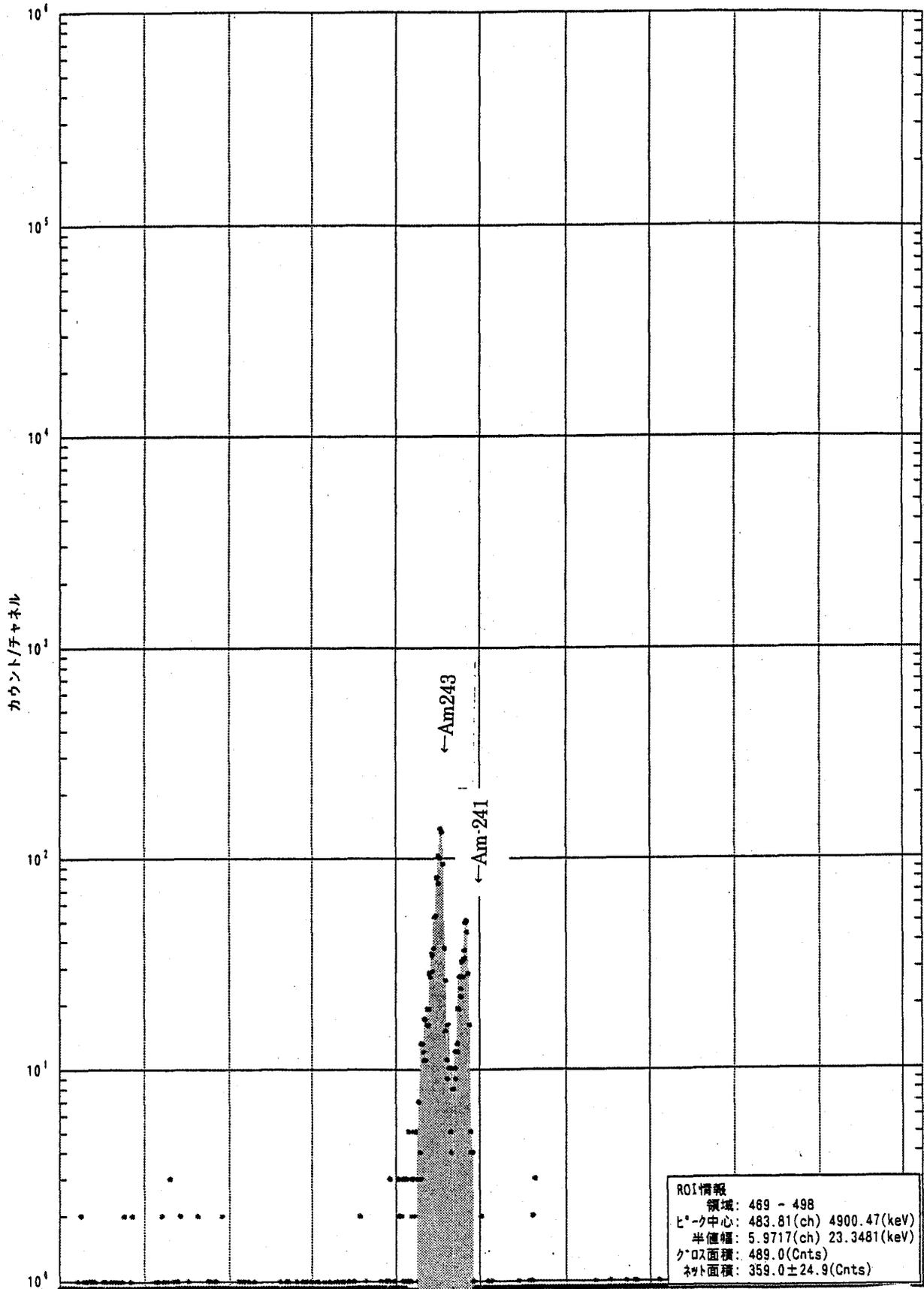
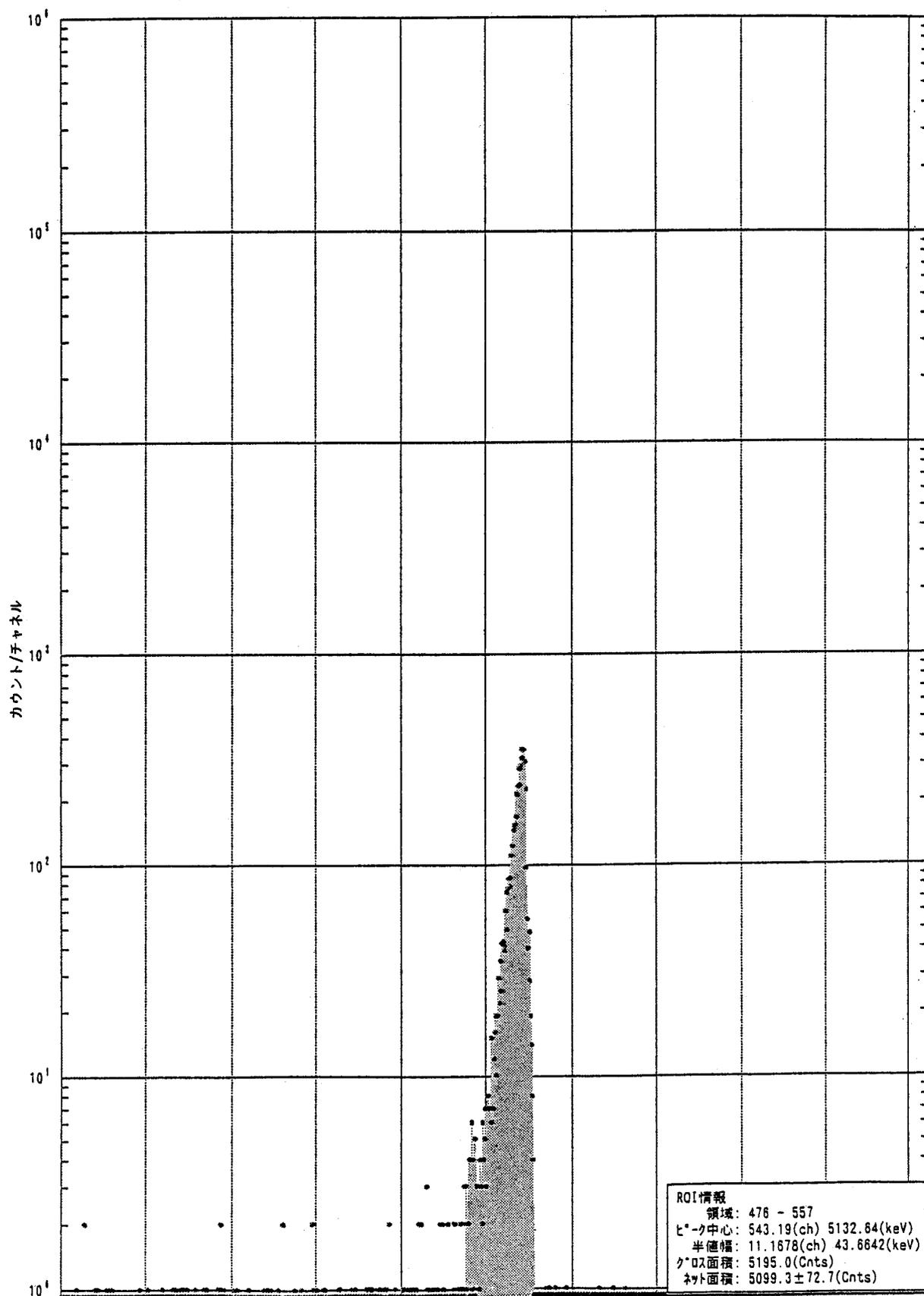


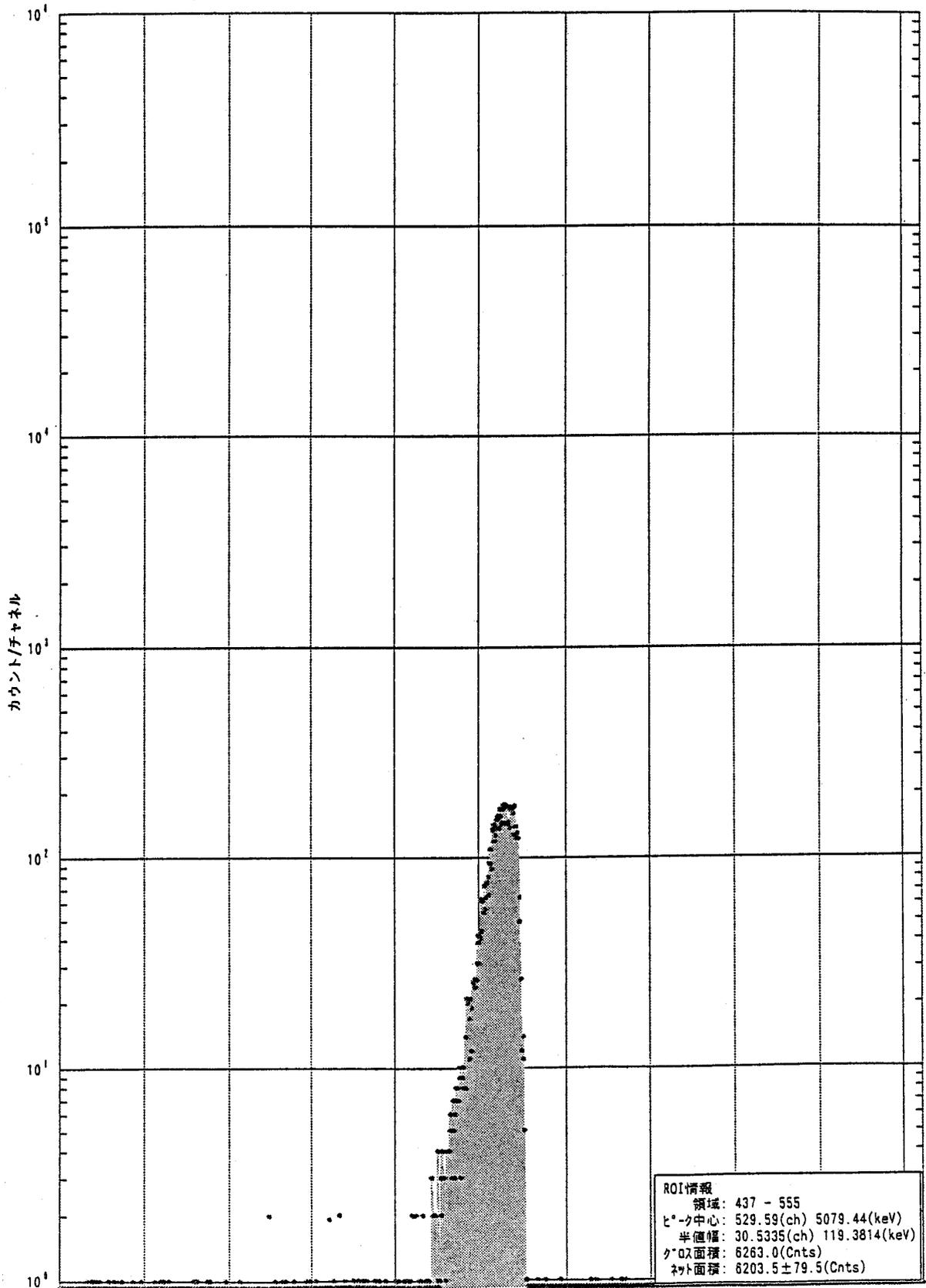
図 B.1 フッ化ネオジム沈殿におけるアメリシウム 241, アメリシウム 243 の  $\alpha$  線スペクトル

Acquired:2001-01-10 15:50:25 Real Time:80001.0(sec) Live Time:80001.0(sec)



図B.2 フッ化ネオジウム沈殿におけるアメリシウム 241 の  $\alpha$  線スペクトル ( $\text{Nd}^{3+}$ :0.1mg)

Acquired:2001-01-11 19:39:50 Real Time:80001.0(sec) Live Time:80001.0(sec)



図B.3 フッ化ネオジム沈殿におけるアメリシウム 241 の  $\alpha$  線スペクトル (Nd<sup>3+</sup>:1.0mg)

## 2) 結果

フッ化ネオジム沈殿を測定試料として、アメリシウム 241 とアメリシウム 243 の  $\alpha$  線スペクトルを測定した結果を図 B. 1 に示す。従来法でステンレス鋼板に電着した試料を用いて測定した  $\alpha$  線スペクトルと比べると、ピークの広がりはやや大きい、アメリシウム 241 とアメリシウム 243 に帰属するピークは分離しておりアメリシウム 241 の定量に問題は生じない。

ネオジム量が 0.1mg 及び 1mg の溶液中で調製した沈殿を試料として測定したアメリシウム 241 の  $\alpha$  線スペクトルを図 B. 2 及び B. 3 に示す。

図 B. 2 及び B. 3 から、ネオジム量が増すと  $\alpha$  線スペクトルのピークはやや広がることがわかる。希土類元素の総量として、1mg 程度の元素が共存しても、同法によるアメリシウム 241 の定量は可能であると判断される。なお、土壌 10g を供試量とすると添加するネオジム担体 0.1mg の他に、土壌に含まれる希土類 (0.3mg 程度) が加わることとなる。

## 解説 C ICP-MS を用いたアメリシウム 241 の定量法

誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) を用いたアメリシウム 241 の定量法に関する検討結果を以下に記す。

近年、誘導結合プラズマ質量分析法 (以下、ICP-MS と記す。) が元素分析法として急速に普及し、安定元素や長半減期核種が極めて低濃度 (pg/ml や fg/ml) まで測定できるようになった。ICP-MS では、アルゴンプラズマを用いて試料溶液中の元素をイオン化し、質量分離後、特定のイオンを二次電子増倍管などで計数して元素濃度を定量する。しかし、環境中のアメリシウム 241 の濃度は極めて低いため、ICP-MS で測定する際には濃縮するか、何らかの方法で試料導入効率を向上させる必要がある。そこで、導入効率に優れているとされる脱溶媒方式微量試料導入装置 (Desolvating nebulizer ARIDUS, CETAC 社製) を用いて導入効率を検討した。また、本装置の脱溶媒効果により、ICP-MS で問題となる溶媒由来の分子イオンの生成を低減することも期待できるため、これについても併せて検討した。本検討で用いた ICP-MS の測定条件を表 C.1 に示す。

表 C.1 ICP-MS の測定条件

| ICP 質量分析計   | UMS-PLASMAX2, 日本電子製 |
|-------------|---------------------|
| 周波数         | 40.68 MHz           |
| RF パワー      | 1.2kW               |
| プラズマガス流量    | 14L/min             |
| 補助ガス流量      | 0.3L/min            |
| キャリアーガス流量   | 0.7L/min            |
| 分解能         | 500                 |
| 検出器印加電圧     | 2000V               |
| 測定 m/z      | 209, 241            |
| 積分時間        | 60 秒                |
| 測定回数        | 10 回                |
| ネブライザー      | ARIDUS, CETAC 社製    |
| 試料導入量       | 0.032ml/min         |
| 脱溶媒膜加熱温度    | 160°C               |
| スプレーチャンバー温度 | 70°C                |
| スウィープガス流量   | 0.3L/min            |
| 窒素ガス流量      | 0.2L/min            |

### 1. 相対感度の比較

ICP-MS では、溶液試料を細霧としてキャリアーガスとともにプラズマに導入する。試料の霧化過程は ICP-MS の感度を決定する要因のひとつであり、さまざまな手法により効率のよい試料導入法が考案されている。本検討では、脱溶媒方式微量試料導入装置 (以下、ARIDUS と記す。) を他のいくつかの試料導入装置と比較してその性能を評価した。

ARIDUSでは、溶液から非常に細かい粒子を生成することができるため、試料のほとんどがネブライザーガスとともにプラズマに送られ、試料の導入効率は 100%に近い。そのためドレ

インとして廃棄される部分がほとんどなく、少量の試料を有効に使うことができる。本装置と他の導入法（装置）による試料消費量と検出下限値を求め、相対感度を比較した結果を表 C.2 に、使用した装置を図 C.1 から C.5 に示す。なお、アメリシウム 241 は比放射能が高いため、ICP-MS の測定では放射能濃度の高い試料を用いる必要がある。そこで、使用量の制限や実験室環境の汚染防止の観点から、本検討ではアメリシウム 241 に代えて測定上類似の挙動を示し、アメリシウム 241 より比放射能が低いプルトニウム 242 ( $T_{1/2} : 3.733 \times 10^5$  年) を用いた。

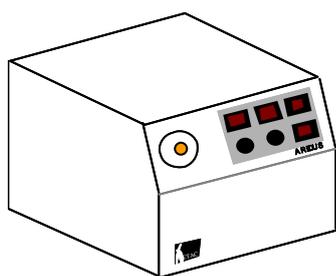


図 C.1 脱溶媒方式微量試料導入装置  
(ARIDUS, CETAC 社製)

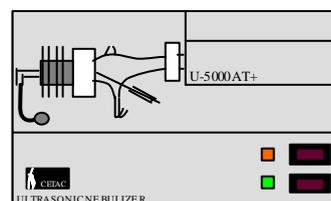


図 C.2 超音波ネブライザー  
(U-5000AT+, CETAC 社製)

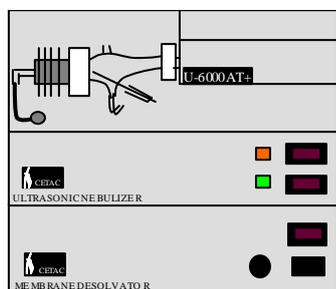


図 C.3 超音波ネブライザー+脱溶媒ユニット  
(U-6000AT+, CETAC社製)

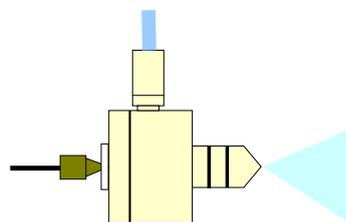


図 C.4 マイクロコンセントリックネブライザー  
(MCN-100, CETAC社製)

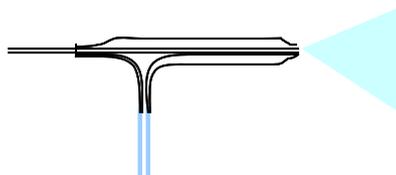


図 C.5 同軸型ネブライザー

表 C.2 相対感度の比較

| 図   | ネブライザータイプ          | 試料消費量<br>(ml/min) | 検出下限値<br>(pg/ml) | 相対感度* |      |
|-----|--------------------|-------------------|------------------|-------|------|
|     |                    |                   |                  | /濃度   | /絶対量 |
| C-1 | 脱溶媒方式微量試料導入装置      | 0.037             | 0.05             | 10    | 49   |
| C-2 | 超音波ネブライザー          | 1.8               | 0.01             | 50    | 5.0  |
| C-3 | 超音波ネブライザー+脱溶媒ユニット  | 1.8               | 0.01             | 35    | 3.5  |
| C-4 | マイクロコンセントリックネブライザー | 0.027             | 1                | 0.5   | 3.3  |
| C-5 | 同軸型ネブライザー          | 0.18              | 0.5              | 1     | 1    |

\* 同軸型ネブライザーを基準(1)として算出した。

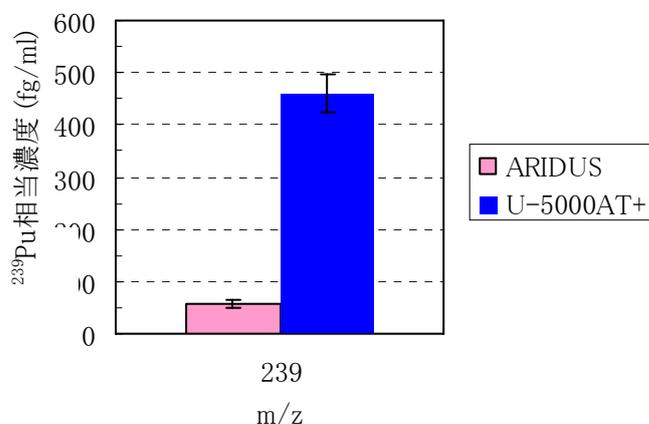
検討の結果、ARIDUS は絶対量当たりの相対感度が他法に比べて最も高い値を示すことがわかった。したがって、試料消費量を低く抑えることができる ARIDUS を用いて 10ml の試料を長時間積算して測定するか、フローインジェクションシステムを用いて試料を数 ml に濃縮して効率よく測定することが期待できる。しかし、検出下限値は 0.05pg/ml 程度と低濃度まで測定することができるものの、低濃度領域では測定値のバラツキが大きい。これは、本装置への試料溶液の導入が自然吸入式であり、試料の粘度によって霧の粒子のでき方にばらつきがあることが原因の一つと考えられる。これについては、ペリスタルティックポンプなどを用いて試料を強制導入することである程度解決できると考える。より高感度な定量が求められる場合には、超音波ネブライザーの使用が有効であるが、試料消費量が ARIDUS に比べて 50 倍となるため、測定試料溶液の量との兼ね合いを考慮しなくてはならない。

## 2. 脱溶媒による分子イオンの影響の除去

本装置では、試料導入経路にメンブラン膜を置き、試料がその膜を通る際に溶媒が除去される。そのため、水素、酸素、塩素等に由来する分子イオンの生成を抑制できる。これを確認するために、脱溶媒効果のない超音波ネブライザー (U-5000AT<sup>+</sup>, CETAC社製) を用いる測定法を対照として、分子イオンの生成量について比較した。

### 2.1 水素化物

プルトニウム 239 を ICP-MS で測定する際、ほぼ同じ質量をもつ <sup>238</sup>UH<sup>+</sup> (m/z239) のピークが重なり影響を及ぼすことがよく知られている。本検討では、ARIDUS による水素化物発生抑制効果について調べるため、ウラン 238 を 10ng/ml 含む硝酸 (1mol/L) 溶液を U-5000AT<sup>+</sup> 及び ARIDUS を用いて <sup>238</sup>UH<sup>+</sup> 濃度を測定し、これからプルトニウム 239 相当濃度を求めた。その結果を図 C.6 に示す。



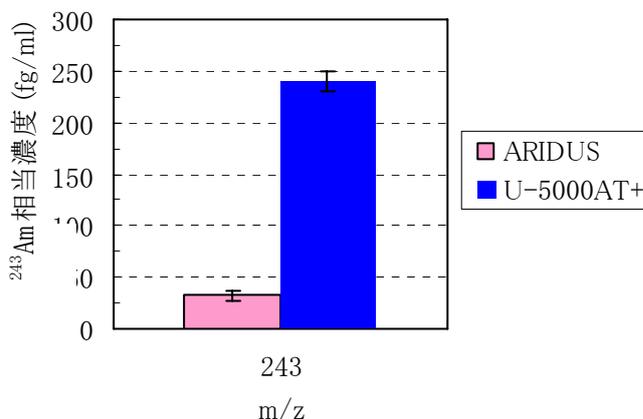
図C.6 <sup>239</sup>Pu測定値への<sup>238</sup>UH<sup>+</sup>の影響

測定結果から、ARIDUSを用いた場合、水素化物の影響はU-5000AT<sup>+</sup>を用いた場合に比べて 10分の1以下に抑制できることがわかった。

原理的にアメリシウム 241 測定の際には質量の 1 小さいプルトニウム 240 の影響が、またトレーサーとして用いるアメリシウム 243 測定の際には質量の 1 小さいプルトニウム 242 の影響が考えられるが、プルトニウムはカラム分離過程で除去されるので問題はない。

## 2.2 アルゴン由来の分子イオン

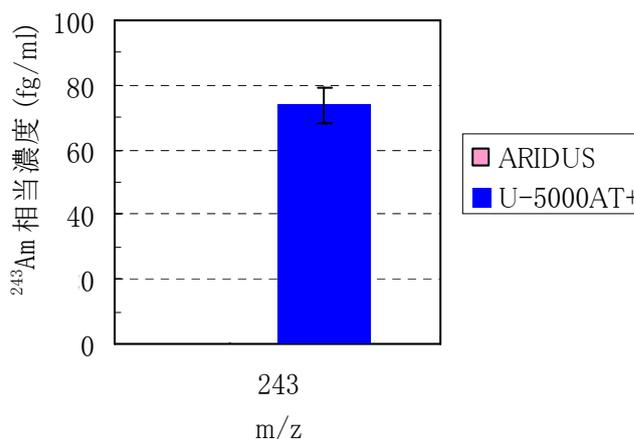
アルゴン由来の分子イオンの影響としては、鉄 56 への<sup>40</sup>Ar<sup>16</sup>O<sup>+</sup> (m/z56) の影響がよく知られている。アメリシウムを内標準法で測定する際に内部標準としてタリウムを用いる場合には、トレーサーとして用いるアメリシウム 243 の測定に<sup>203</sup>Tl<sup>40</sup>Ar<sup>+</sup> (m/z243) の影響が考えられる。そこで、タリウムを 50ng/ml 含む硝酸 (1mol/L) 溶液を U-5000AT<sup>+</sup>及びARIDUSにより<sup>203</sup>Tl<sup>40</sup>Ar<sup>+</sup>濃度を測定し、これから、アメリシウム 243 相当濃度を求めた。結果を図C.7に示す。ARIDUSを用いた場合、アルゴン由来の分子イオンの影響は、U-5000AT<sup>+</sup>を用いた場合に比べて 10分の1以下に抑制できることがわかった。



図C.7 <sup>243</sup>Am測定値への<sup>203</sup>Tl<sup>40</sup>Ar<sup>+</sup>の影響

## 2.3 酸化物

ビスマスを内部標準に使い、内標準法でアメリシウムを測定する場合、酸化物として<sup>209</sup>Bi<sup>18</sup>O<sup>16</sup>O<sup>+</sup>が生成し、アメリシウム 243 の測定値に影響を及ぼす可能性がある。このためビスマスを 50ng/ml 含む硝酸 (1mol/L) 溶液をU-5000AT<sup>+</sup>及びARIDUSにより<sup>209</sup>Bi<sup>18</sup>O<sup>16</sup>O<sup>+</sup>濃度を測定し、これからアメリシウム 243 相当濃度を求めた。結果を図C.8に示す。U-5000AT<sup>+</sup>を用いた時にはアメリシウム 243 として 75fg/ml相当のピークが現れたが、ARIDUSでは同ピークは観測されず、影響がないことがわかった。



図C.8 <sup>243</sup>Am測定値への<sup>209</sup>Bi<sup>18</sup>O<sup>16</sup>O<sup>+</sup>の影響

このように、ARIDUS を用いることにより、水素、酸素、塩素等に由来する分子イオンの生成を抑制することができる。なお、上記の結果は本検討の条件下において得られたものであり、用いる機種や設定条件により多少異なる。

### 3. 脱溶媒方式微量試料導入装置を用いる時の ICP - MS 信号の安定性

脱溶媒方式微量試料導入装置を用いることにより、少ない試料を効率よく測定に供することができる。しかし、試料噴霧量が少ないことと、テフロン製の部品を多用していることから、霧化効率が静電気の影響を受け、その結果測定値が変動する恐れがある。そこで、検出下限値 (0.05pg/ml) 付近での測定値の変動を調べるため、検出下限値に対して 0 から 8 倍濃度 (0 から 0.4pg/ml) のアメリカシウム 241 を含む硝酸(1mol/L)溶液を用いて 10 回くり返して測定し、その再現性を評価した。

その結果、表 C.3 に示すように、アメリカシウム濃度が検出下限値から 2 倍まで試料の変動係数が 20%程度であるが、4 倍以上の試料の変動係数は 10%程度であった。測定環境の汚染を防止するため、これ以上の濃度での検討はできなかったが、0.4pg/ml (放射能濃度に換算して 50mBq/ml) であれば、10%の変動で測定が可能である。なお、上記の結果は、本検討の条件下において得られたものであり、用いる機種や設定条件により多少異なる。

表 C.3 10 回測定のかり返し再現性

| <sup>241</sup> Am濃度 (pg/ml) | 放射能濃度 (mBq/ml) | 変動係数 (%) |
|-----------------------------|----------------|----------|
| 0                           | 0              | 51       |
| 0.043                       | 5.5            | 31       |
| 0.11                        | 14             | 20       |
| 0.22                        | 28             | 10       |
| 0.43                        | 55             | 11       |

#### 3.4 アメリカシウム 241 の検出下限値

アメリカシウム 241 の検出下限値を求めるため、検量線を作成した。

内部標準として 50ng/ml のビスマスと 0.04 から 0.4pg/ml のアメリカシウム 241 を含む硝酸(1mol/L)溶液を調製した。ICP-MS を用いて m/z241 (アメリカシウム 241) と m/z209 (ビスマス) のカウント数を求め、アメリカシウム/ビスマスを求めた。アメリカシウム/ビスマスを縦軸に、濃度を横軸として検量線を作成した。その結果を図 C.9 に示す。

この結果から、検出下限値をバックグラウンドの誤差の 3 倍 (3σ) とすると、14fg/ml (1.7mBq/ml) の検出下限値が得られた。測定ごとの変動等を考慮すると、ICP-MS におけるアメリカシウムの検出下限値は 50fg/ml (7mBq/ml) 程度と評価できる。検出下限値を 7mBq/ml とし、測定溶液量 25ml とした時の各種環境試料に対する検出下限値を試算した結果を表 C.4 に示す。

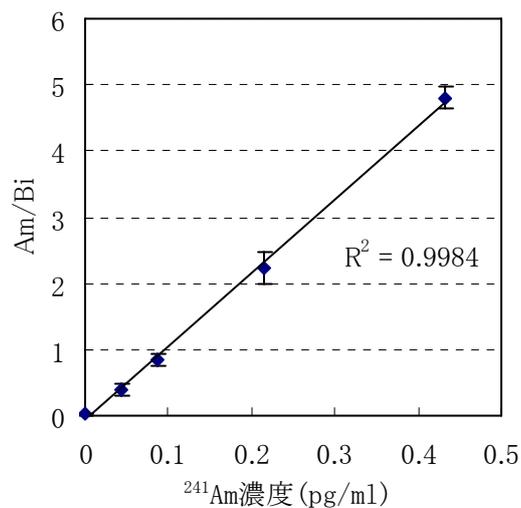


図 C.9 アメリシウム 241 の検量線

表 C.4 本測定法における検出下限値

| 試料     | 分析供試量                    | 検出下限値* <sup>1</sup>    | 指標* <sup>2</sup> |
|--------|--------------------------|------------------------|------------------|
| 大気浮遊じん | 1 m <sup>3</sup>         | 0.2 Bq/m <sup>3</sup>  |                  |
| 降下物    | 0.05 m <sup>2</sup> 、1 日 | 4 Bq/m <sup>2</sup> /日 |                  |
| 土壌     | 10 g                     | 20 Bq/kg               |                  |
| 飲料水    | 2 L                      | 0.09 Bq/L              | 1 Bq/kg          |
| 牛乳     | 0.1 L                    | 2 Bq/L                 | 1 Bq/kg          |
| 葉菜     | 0.1 kg                   | 2 Bq/kg                | 10 Bq/kg         |

\*<sup>1</sup> ICP-MSの検出下限値を 7mBq/ml、測定試料溶液を 25mlとして算出した。

\*<sup>2</sup> 飲食物摂取制限に関する指標(プルトニウム及び超ウラン元素のα核種)

## 解説 D LEPS を用いたアメリシウム 241 非破壊測定法

低エネルギー光子スペクトロメータ（以下、LEPS という。）を用いるガンマ線スペクトロメトリーは、 $\alpha$ 線スペクトロメトリーに比べ、アメリシウム 241 への感度は劣るが非破壊（化学処理を伴わない）で定量できる方法として有効である。そこで、比較的高濃度のアメリシウム 241 を含む試料への適用とスクリーニングを目的として同法の適用するために、LEPS のピーク効率とアメリシウム 241 の検出下限値の検討を行った。

### 1. LEPS のピーク効率とアメリシウム 241 の検出下限値

#### (1) 検討方法

スチロール製容器とアメリシウム 241 またはアメリシウム 243 を含む水溶液を用い、溶液量の異なる数種類の線源を調製した。これらを LEPS で測定し、そのスペクトルからアメリシウム 241、243 のガンマ線（59.5, 74.7keV）のピーク面積を求めた。

#### (2) 結果と考察

計測に用いた LEPS の仕様を表 D.1 に、LEPS による 59.5keV（アメリシウム 241）及び 74.7keV（アメリシウム 243）のガンマ線のピーク効率とアメリシウム 241 の検出下限値（2 時間計測した場合）を表 D.2 と図 D.1 に示す。

表 D.1 LEPS の仕様

|            |   |
|------------|---|
| 検出器の大きさ    | 径 19.5mm、面積 200mm <sup>2</sup> 、厚さ 10mm |
| 分解能 (FWHM) | 5.9keV- 170eV、122keV- 520eV             |
| 窓厚         | 0.15mm                                  |

表 D.2 LEPS のピーク効率とアメリシウム 241 の検出下限値（スチロール製容器）

| 試料液量<br>(ml) | ピーク効率         |               | <sup>241</sup> Am の検出下限値<br>(2 時間計測) |
|--------------|---------------|---------------|--------------------------------------|
|              | 59.5keV       | 74.7keV       |                                      |
| 5            | 0.0333±0.0006 | ————          | 0.12Bq/ 5ml (24Bq/L)                 |
| 10           | 0.0293±0.0005 | ————          | 0.13Bq/10ml (13Bq/L)                 |
| 20           | 0.0240±0.0004 | ————          | 0.16Bq/20ml (8.0Bq/L)                |
| 40           | 0.0167±0.0004 | ————          | 0.23Bq/40ml (5.8Bq/L)                |
| 80           | 0.0108±0.0003 | 0.0098±0.0002 | 0.36Bq/80ml (4.5Bq/L)                |

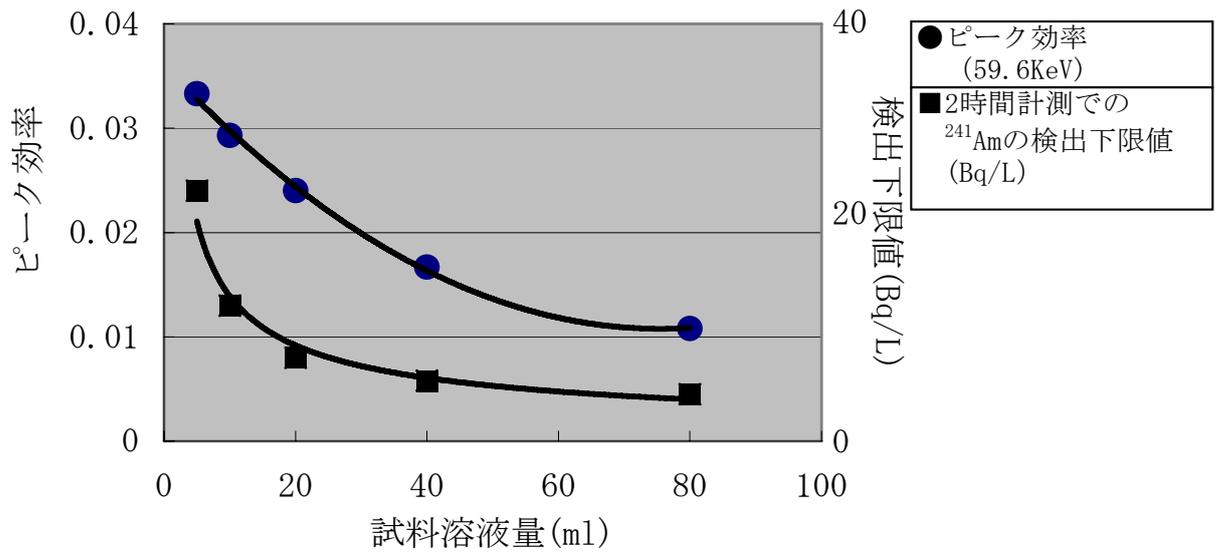


図 D.1 LEPSの効率とアメリシウム241の検出下限値 (スチロール製容器)

表 D.2 の結果をもとに、各種環境試料を LEPS による非破壊測定した場合のアメリシウム 241 の検出下限値を算出した結果を表 D.3 に示す。

表 D.3 から、土壌（供試量：100g）の検出下限値は 4Bq/kg、牛乳（供試量：生 0.1L）については 4Bq/L、葉菜（供試量：生 0.1kg）については 20Bq/kg である。しかし、牛乳と葉菜については灰化処理をすることにより検出下限値は、それぞれ 0.2Bq/L、0.3Bq/kg（供試量：1L または 1kg 相当の灰）となる。この値は飲食物摂取制限に関する指標（プルトニウム及び超ウラン元素の  $\alpha$  核種）の牛乳：1Bq/kg、葉菜：10Bq/kg のそれぞれ 1/5、1/30 に相当する。しかし、この評価は他核種の影響（バックグラウンドの上昇等）を考慮に入れていないものであり、トリウム、ウラン、プルトニウム等を多く含む試料については上述の検出下限値より多少劣ることが予想される。

表 D.3 LEPS を用いた非破壊測定法の検出下限値

| 種類 | 分析供試量      | 検出下限値* <sup>1</sup> | 指標* <sup>2</sup> |
|----|------------|---------------------|------------------|
| 土壌 | 100 g      | 4 Bq/kg             |                  |
| 牛乳 | 0.1L       | 4 Bq/L              | 1Bq/kg           |
|    | (1L 相当の灰)  | 0.2 Bq/L)           |                  |
| 葉菜 | 0.1kg 生    | 20 Bq/kg            | 10Bq/kg          |
|    | (1kg 相当の灰) | 0.3 Bq/kg )         |                  |

対象核種：アメリシウム 241、（アメリシウム 243）

\*<sup>1</sup> アメリシウム 241 の検出下限値

検出下限値は、測定時間を 4 時間とし、ピーク面積がその計数誤差の 3 倍とした。  
但し、他核種の影響は考慮に入れていない。

\*<sup>2</sup> 飲食物摂取制限に関する指標（プルトニウム及び超ウラン元素の  $\alpha$  核種）

## 2. バックグラウンドへのウランの影響とアメリシウム 241 の検出下限値

ウラン 1%を含む土壌と海底堆積物（IAEA-368\*）100gを試料として用い、LEPSで測定した時のアメリシウム 241 ピーク領域（バックグラウンド領域を含む。2keV、50ch）とバックグラウンドの計数率から、アメリシウム 241 の検出下限値（2 時間計測した場合）を算出した。結果を表 D.4 に示す。

\* IAEA-368 に含まれる  $\alpha$  核種の濃度

ラジウム 226 21.4Bq/kg、ウラン 235 1.9Bq/kg、ウラン 238 31.0Bq/kg、

プルトニウム 238 8.5Bq/kg、プルトニウム 239+240 31.0Bq/kg、アメリシウム 241 1.3 Bq/kg

表 D. 4 バックグラウンドへのウランの影響とアメリシウム 241 の検出下限値

|                          | ウラン 1 % を含む土壌 | 海底堆積物 (IAEA-368) | バックグラウンド  |
|--------------------------|---------------|------------------|-----------|
| <sup>241</sup> Am 領域の計数率 | 0.048cps      | 0.0026cps        | 0.0016cps |
| 2 時間の計数值                 | 346           | 19               | 12        |
| 検出下限値 (試料 100g の場合)      | 24Bq/kg       | 6Bq/kg           | 5Bq/kg    |

表 D. 4 から、ウラン濃度が高くなるとアメリシウム 241 の検出下限値がやや高くなる。しかし、1%と高いウラン濃度の場合でもアメリシウム 241 の検出下限値は環境試料の 4~5 倍程度であった。

### 3. LEPS を用いた非破壊測定法の特徴

LEPS を用いる非破壊測定法の特徴を以下に示す。

- (1) アメリシウム 241 の定量を可能にすると同時にアメリシウム 243 についての知見が得られる。
- (2)  $\alpha$  線スペクトロメトリーに比べ検出下限値が高くなるが、採取試料そのままを非破壊で定量できる。
- (3) アメリシウム 241 濃度の高い試料への適用とスクリーニングに適している。
- (4) 牛乳、葉菜については、灰試料を用いることによって飲食物摂取制限に関する指標（プルトニウム及び超ウラン元素の  $\alpha$  核種対象核種）である 1Bq/kg 以下の濃度の試料にも適用できる。

## 解説 E 本分析法の環境試料への適用結果

### 1. 環境試料への適用結果

本法を環境試料（大気浮遊じん、降下物、水道水、牛乳）に適用した結果を表 E. 1 に示す。  
なお、環境試料中のアメリシウム濃度が低いので、アメリシウム 241 濃度が既知の海底堆積物（IAEA-135）またはその抽出液を添加した試料についても実施した。

### 2. 標準試料への適用結果

本法をアメリシウム 241 濃度が既知の標準試料に適用した結果を表 E. 2 に示す。  
なお、プルトニウム-アメリシウム系統分析を行ったので、参考としてプルトニウムの結果も合わせて示した。

表E. 1 環境試料への適用結果

| 試料名    | 分析供試量            | IAEA-135添加量 |          |                        | 回収率       | <sup>241</sup> Am |           |               | <sup>243+244</sup> Cm |
|--------|------------------|-------------|----------|------------------------|-----------|-------------------|-----------|---------------|-----------------------|
|        |                  | 粉末          | 抽出液      | <sup>241</sup> Am(mBq) |           | mBq/試料            | 添加量との比    | 放射能濃度         | 放射能濃度                 |
| 水道水    | 2L               | —           | —        | —                      | 0.66±0.03 | 0.5±0.2           | —         | 0.2±0.1mBq/L  | *                     |
|        | 2L               | 0.147 g     | 0.1 g 相当 | 78.5                   | 0.80±0.03 | 66±4              | 0.83±0.05 | —             | 0.09±0.06mBq/L        |
| 降下物    | 1L               | —           | —        | —                      | 0.72±0.03 | 0.4±0.1           | —         | 0.4±0.1mBq/L  | 0.1±0.1mBq/L          |
|        | 1L               | 0.143 g     | 0.1 g 相当 | 77.3                   | 0.84±0.04 | 72±4              | 0.93±0.05 | —             | 0.09±0.09mBq/L        |
| 牛乳     | 灰1 g             | —           | —        | —                      | 0.78±0.03 | 0.8±0.3           | —         | 0.8±0.3mBq/g灰 | *                     |
|        | 灰1 g             | —           | 0.1 g 相当 | 31.8                   | 0.73±0.03 | 33±2              | 1.03±0.08 | —             | 0.3±0.2mBq/g灰         |
| 大気浮遊じん | HE40T (2<br>インチ) | —           | —        | —                      | 0.77±0.03 | 0.2±0.1           | —         | 0.2±0.1mBq/試料 | *                     |
|        | HE40T (2<br>インチ) | 0.115 g     | —        | 36.6                   | 0.82±0.04 | 40±3              | 1.10±0.07 | —             | *                     |

定量方法：α線スペクトロメトリー

\*：対象とするエネルギー領域のカウント数0

表E.2 標準試料への適用結果

| 試料名                 | 分析供試量<br>(g) | アメリシウム、キュリウム (Bq/kg) |                   |                       | プルトニウム (Bq/kg) |                   |                   |                       |
|---------------------|--------------|----------------------|-------------------|-----------------------|----------------|-------------------|-------------------|-----------------------|
|                     |              | 回収率                  | <sup>241</sup> Am | <sup>243+244</sup> Cm | 回収率            | <sup>239</sup> Pu | <sup>240</sup> Pu | <sup>239+240</sup> Pu |
| IAEA-135<br>(海底堆積物) | 1            | 0.57±0.01            | 294±9             | 0.4±0.2               | 1.00±0.05      | 139±6             | 111±7             | 250±9                 |
|                     | 1            | 0.60±0.01            | 318±9             | 0.3±0.2               | 0.76±0.05      | 129±7             | 93±3              | 223±7                 |
|                     | 1            | 0.66±0.01            | 325±9             | 0.8±0.3               | 0.91±0.04      | 131±4             | 97±1              | 227±4                 |
| (推奨値)               |              | 318 (310-325)        |                   | —                     |                | —                 | —                 | 213 (205-226)         |
| IAEA-368<br>(海底堆積物) | 5            | 0.76±0.02            | 1.5±0.2           | 0.02±0.03             | 0.82±0.05      | 30.4±1.9          | 3.6±0.5           | 34.0±2.0              |
|                     | 5            | 0.81±0.02            | 1.6±0.2           | *                     | 0.75±0.01      | 29.4±0.9          | 3.8±0.5           | 33.2±1.0              |
|                     | (推奨値)        |                      | 1.3 (1.2-1.5)     |                       | —              |                   | —                 | —                     |
| NIST-4354<br>(土壌)   | 5            | 0.80±0.03            | 1.5±0.2           | 0.02±0.02             | 0.90±0.04      | 3.5±0.3           | 1.2±0.1           | 4.7±0.3               |
|                     | 7            | 0.75±0.03            | 1.1±0.1           | 0.02±0.02             | 0.90±0.08      | 3.0±0.3           | 1.4±0.2           | 4.4±0.3               |
|                     | 10           | 0.73±0.03            | 0.9±0.1           | *                     | 0.96±0.09      | 2.9±0.3           | 1.7±0.3           | 4.6±0.4               |
|                     | (推奨値)        |                      | 1.1 (0.2-1.5)     |                       | —              |                   | —                 | —                     |

定量方法：アメリシウム、キュリウム（α線スペクトロメトリー），プルトニウム（ICP-MS）

\*：対象とするエネルギー領域のカウント数0

## 解説 F クロスチェック結果

作成した分析法の妥当性を確認するためクロスチェックを実施した。

### 1. クロスチェック試料とその調製方法

試料 : 土壌 (福井県奥越高原で採取した土壌)

前処理 : 105℃で24時間乾燥後、2mmのふるいを通し、木片及び石礫等を取り除いた。  
ふるい下をトップグラインダーを用いて100メッシュ以下に粉碎した後、Vブレンダーを用いて均一に混合し、乾燥細土とした。

配布試料 : 乾土50gをポリエチレン容器に分取し、各機関に配布した。

### 2. 参加機関

青森県環境保健センター、核燃料サイクル開発機構東海事業所、  
金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設、日本分析センター

### 3. 測定条件

各参加機関が用いた検出器及び測定条件を以下に示す。

| 分析機関  | A                               | B                 | C                 | D                       |
|-------|---------------------------------|-------------------|-------------------|-------------------------|
| 検出器   | ORTEC SOLOIST<br>-U0450, -U0600 | TENNELEC<br>TC257 | TENNELEC<br>TC256 | ORTEC<br>TU-017-450-100 |
| ピーク効率 | 23-27%                          | 24-30%            | 30-33%            | 21-23%                  |
| 回収率   | 95-98%                          | 47-64%            | 19-42%            | 80-85%                  |
| 測定時間  | 14,400 秒                        | 20,000 秒          | 90,000 秒          | 80,000 秒                |

### 4. クロスチェック結果

アメリカシウム<sup>241</sup>のみが検出された。各機関のアメリカシウム<sup>241</sup>の分析結果を以下に示す。  
なお、結果の比較するため、同試料を文部科学省放射能測定法シリーズ21「アメリカシウム分析法」に準じて5回分析し、その平均値をアメリカシウム<sup>241</sup>の基準値とした。

| 分析機関<br>試料名 | A                |                              | B                |                              | C                |                              | D                |                              |
|-------------|------------------|------------------------------|------------------|------------------------------|------------------|------------------------------|------------------|------------------------------|
|             | 分析供<br>試量<br>(g) | <sup>241</sup> Am<br>(Bq/kg) |
| 土壌          | 10               | 0.8 ± 0.15                   | 10               | 0.99 ± 0.22                  | 10               | 0.79 ± 0.12                  | 10               | 0.95 ± 0.08                  |
|             | 10               | 0.8 ± 0.16                   | 10               | 0.80 ± 0.17                  | 10               | 0.69 ± 0.08                  | 10               | 0.99 ± 0.08                  |
|             | 10               | 0.79 ± 0.06                  | 10               | 0.95 ± 0.17                  | 10               | 0.78 ± 0.08                  | 10               | 0.93 ± 0.09                  |
|             | 平均値              | 0.81 ± 0.03                  | 平均値              | 0.91 ± 0.10                  | 平均値              | 0.75 ± 0.06                  | 平均値              | 0.96 ± 0.03                  |

アメリカシウム<sup>241</sup>の基準値 : 1.05 ± 0.11 Bq/kg (5回の並行分析の平均値と標準偏差)

各分析機関の分析結果は、基準値と計数誤差の 3 倍以内で一致しているものの、基準値に対して 10~30%低い結果となった。

これらの試料の $\alpha$ 線スペクトルはピークの広がりが大きく、アメリカシウム 241 のピークの 20%程度がアメリカシウム 243 のピーク領域と重なっていると判断された。この原因は、本クロスチェック試料の希土類含有量が高く、 $\alpha$ 線計測試料の重量が予想したより大きくなったことによるものと考えられる。本分析法では、迅速性を重視していることから、アメリカシウムからの希土類元素の分離は行っていない。このため、通常の土壌試料で予測される希土類量が 1mg までのスペクトルの広がりについては確認している（解説 B 参照）。しかし、本クロスチェック試料のようにスペクトルの広がりが大きくアメリカシウム 241 とアメリカシウム 243 の分離が不完全な場合は、分析供試量を少なくする等の対応が必要である。

付 録

付録1 主なアメリシウム、キュリウム同位体の核データと比放射能

付表1.1 アメリシウム、キュリウム同位体の核データと比放射能

| 核種                | 半減期     | 壊変形式                       | 主な放射線の種類<br>・エネルギー・放出率<br>MeV (%)                                    | 比放射能<br>Bq/g<br>(g/Bq)                              | 主な生成反応                        |
|-------------------|---------|----------------------------|--|---|-------------------------------|
| $^{241}\text{Am}$ | 432.2 y | $\alpha$ 100%              | $\alpha$ 5.443 (13.0)<br>5.486 (84.5)                                | $1.27 \times 10^{11}$<br>( $7.87 \times 10^{-12}$ ) | $^{241}\text{Pu} \rightarrow$ |
| $^{243}\text{Am}$ | 7370 y  | $\alpha$ 100%              | $\alpha$ 5.181 (1.4)<br>5.233 (11.2)<br>5.275 (87.1)                 | $7.39 \times 10^9$<br>( $1.35 \times 10^{-10}$ )    | $^{243}\text{Pu} \rightarrow$ |
| $^{242}\text{Cm}$ | 162.9 y | $\alpha$ 100%              | $\alpha$ 6.069 (25.9)<br>6.113 (74.1)                                | $3.36 \times 10^{11}$<br>( $2.98 \times 10^{-12}$ ) | $^{242}\text{Am} \rightarrow$ |
| $^{243}\text{Cm}$ | 29.1 y  | $\alpha$ 99.7%<br>EC 0.26% | $\alpha$ 5.742 (11.5)<br>5.785 (73.0)<br>5.992 (5.68)<br>6.058 (4.7) | $1.87 \times 10^{12}$<br>( $5.34 \times 10^{-13}$ ) | $^{242}\text{Cm} (n, \gamma)$ |
| $^{244}\text{Cm}$ | 18.1 y  | $\alpha$ 100%              | $\alpha$ 5.763 (23.6)<br>5.805 (76.4)                                | $3.00 \times 10^{12}$<br>( $3.33 \times 10^{-13}$ ) | $^{244}\text{Am} \rightarrow$ |

SF：自発核分裂

出典：ENSDF (Evaluated Nuclear Structure Data File) NNDC (National Nuclear Data Center) (2003)

## 付録2 アメリカシウム 241、キュリウム迅速分析法の流れ図

### 1. アメリカシウム 241、キュリウム迅速分析法の概略

付図 2.1 にアメリカシウム 241、キュリウム迅速分析法の概略を示す。

### 2. 試料の乾燥－炭化－灰化

それぞれの試料を乾燥－炭化－灰化する条件の一例を以下に示す。

(マイクロウェーブ高温灰化装置：マイルストーン社製 MSL-1200 PYRO)

| 種類 | 供試量   | 乾燥・炭化                                 | 灰化           |              |             |
|----|-------|---------------------------------------|--------------|--------------|-------------|
|    |       |                                       | 設定温度<br>(°C) | 高周波出力<br>(W) | 加熱時間<br>(分) |
| 土壌 | 10g   |                                       | 500          | 500          | 100         |
| 牛乳 | 100ml | 磁製皿、ガスコンロ<br>加熱時間：40分                 | 250          | 350          | 60          |
|    |       |                                       | 500          | 500          | 90          |
|    |       |                                       | 600          | 500          | 45          |
| 葉菜 | 100g  | 電子レンジ（家庭用）<br>高周波出力：500W,<br>加熱時間：25分 | 250          | 350          | 60          |
|    |       |                                       | 500          | 500          | 90          |
|    |       |                                       | 600          | 500          | 45          |

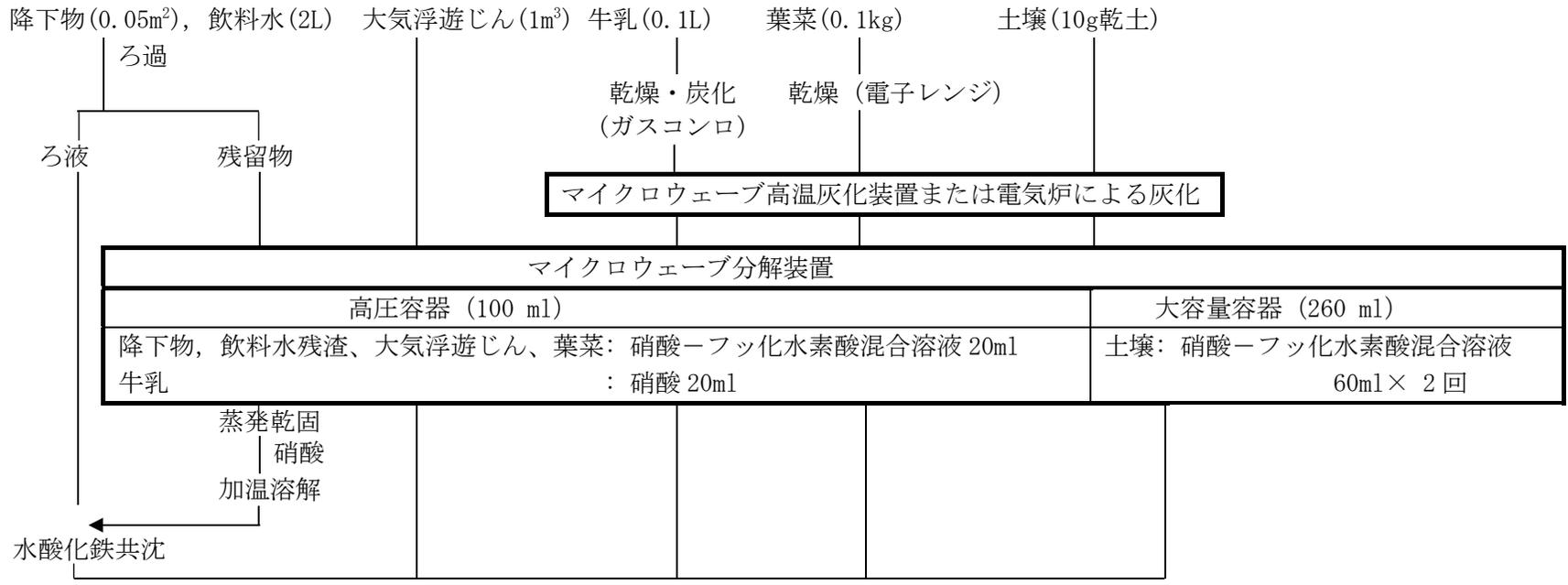
### 3. マイクロウェーブ分解装置の分解条件

マイクロウェーブ分解装置を用いて、それぞれの試料を分解する条件の一例を以下に示す。

(使用機器：マイルストーン社製 MSL-1200 MEGA)

| 種類             | 分解容器                  | 分解液                    | 分解条件 |     |
|----------------|-----------------------|------------------------|------|-----|
|                |                       |                        | (W)  | (分) |
| 大気浮遊じん         | 高圧分解容器<br>(容量：100ml)  | 硝酸－フッ化水素酸<br>混合溶液 20ml | 350  | 10  |
|                |                       |                        | 400  | 20  |
| 土壌*            | 大容量分解容器<br>(容量：260ml) | 硝酸－フッ化水素酸<br>混合溶液 20ml | 350  | 5   |
|                |                       |                        | 400  | 25  |
| 降下物、<br>飲料水、葉菜 | 高圧分解容器<br>(容量：100ml)  | 硝酸－フッ化水素酸<br>混合溶液 20ml | 350  | 10  |
|                |                       |                        | 400  | 20  |
| 牛乳             | 高圧分解容器<br>(容量：100ml)  | 硝酸 20ml                | 350  | 10  |
|                |                       |                        | 400  | 20  |

\*：分解後、デカンテーションにより分解液を別容器に移した後、新たに分解液を入れ、同様の条件で再度分解し、分解液を合わせる。

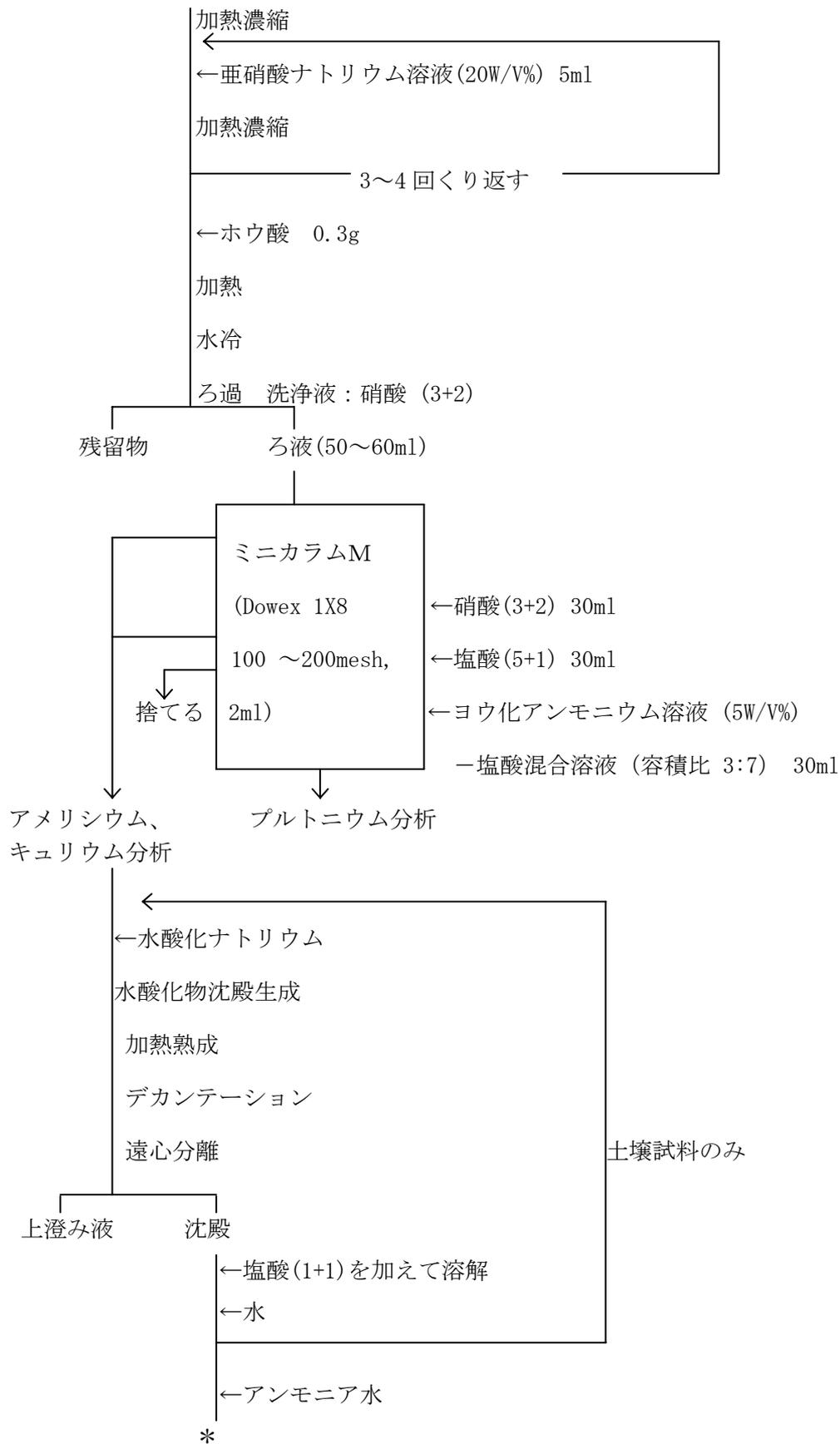


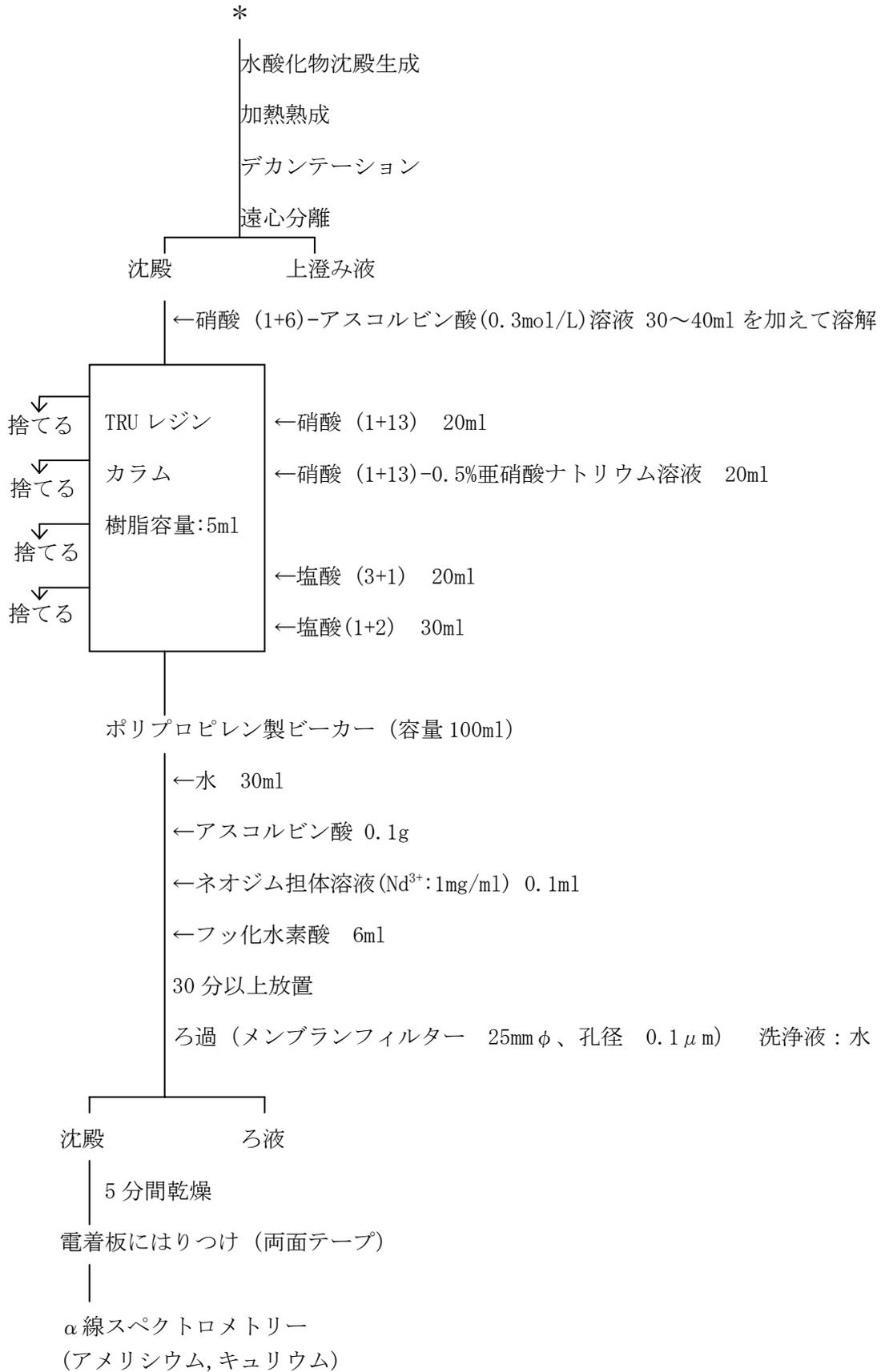
↓  
Pu<sup>4+</sup>への調整 (亜硝酸ナトリウムを使用)  
↓  
プルトニウムの除去  
硝酸系陰イオン交換カラム→プルトニウム分析  
↓  
水酸化鉄(III)共沈  
↓  
アメリシウム, キュリウムの分離・精製  
TRU レジン  
↓  
フッ化ネオジム沈殿に共沈  
↓  
α線スペクトロメトリー (<sup>241</sup>Am, <sup>243+244</sup>Cm)

付図 2.1 アメリシウム 241、キュリウム迅速分析法概略図

4. アメリシウム、キュリウムの分離・精製

分解抽出液





付図 2.2 アメリカシウム 241、キュリウム迅速分析法流れ図  
(アメリカシウム、キュリウムの分離・精製)

### 付録3 参考文献

- (1) M. Bickel, S. Möbius, F. Kilian and H. Becker  
Investigations on a Rapid Method for the Estimation of Alpha Activity Content in Nuclear Power Plant Primary Coolant  
Radiochimica Acta, 57, 141-151 (1992)
- (2) J. Moreno, J. J. LaRosa, P. R. Danesi, K. Burns, P. DeRegge, N. Vajda and M. Sinojmeri  
Determination of  $^{241}\text{Pu}$  by Liquid-Scintillation Counting in the Combined Procedure for Pu Radionuclides,  $^{241}\text{Am}$  and  $^{90}\text{Sr}$  Analysis in Environmental Samples  
Radioactivity & Radiochemistry, 9, 2, 35-44 (1998)
- (3) Jonathan P. Martin and Kevin J. Odell  
The Development of Emergency Radioanalytical Techniques for the Determination of Radiostrontium and Transuranic Radioisotopes in Environmental Materials  
Radioactivity & Radiochemistry, 9, 3, 49-60 (1998)
- (4) Stefan Stürup, Henning Dahlgaard and Steffen Chen Nielsen  
High resolution inductively coupled plasma mass spectrometry for the trace determination of plutonium isotopes and isotope ratios in environmental samples  
Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 13, 1321-1326 (1998)
- (5) Ingvar Friberg  
Prediction of the relative activity levels of the actinides in a fallout from a nuclear reactor accident  
Applied Radiation and Isotopes, 50, 365-373 (1999)
- (6) Ingvar Friberg and Raine Vesanen  
Detection limits for  $^{90}\text{Sr}$ , Pu, Am and Cm in soil and pasture vegetation shortly after a nuclear accident  
Applied Radiation and Isotopes, 51, 229-237 (1999)
- (7) Jerzy W. Mietelski, Jerzy Dorda and Bogdan Was  
Pu-241 in samples of forest soil from Poland  
Applied Radiation and Isotopes, 51, 435-447 (1999)
- (8) V. Tsoupko-Sitnikov, F. Dayras, J. de Sanoit and D. Filossofov  
Application of rotating disk electrode technique for the preparation of Np, Pu and Am  $\alpha$ -sources  
Applied Radiation and Isotopes, 52, 357-364 (2000)
- (9) M. Magara, Y. Hanzawa, F. Esaka, Y. Miyamoto, K. Yasuda, K. Watanabe, S. Usuda, H. Nishimura and T. Adachi  
Development of analytical techniques for ultra trace amounts of nuclear materials in environmental samples  
Applied Radiation and Isotopes, 53, 87-90 (2000)

- (10) Riitta Pilviö and Michael Bickel  
Actinoid separations by extraction chromatography  
Applied Radiation and Isotopes, 53, 273-277 (2000)
- (11) R. F. Payne, S. P. LaMont, R. H. Filby and S. E. Glover  
Optimization and characterization of a sulfate based electrodeposition method for alpha-spectrometry of neptunium and curium  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 248, 2, 449-452 (2001)
- (12) A. H. Thakkar  
Rapid sequential separation of actinides using Eichrom' s extraction chromatographic material  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 248, 2, 453-456 (2001)
- (13) M. Pimpl and R. H. Higgy  
Improvement of Am and Cm determination in soil samples  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 248, 3, 537-541 (2001)
- (14) G. Espinosa and R. J. Silva  
Alpha-particle analysis of a triple isotope  $^{239}\text{Pu}$ - $^{241}\text{Am}$ - $^{244}\text{Cm}$  source by nuclear track methodology  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 248, 3, 575-578 (2001)
- (15) S. H. Lee, J. Gastaud, J. J. LaRosa, L. LiongWeeKwong, P. P. Povinec, E. Wyse, L. K. Fiffield, P. A. Hausladen, L. M. Di Tada and G. M. Santos  
Analysis of plutonium isotopes in marine samples by radiometric, ICP-MS and AMS techniques  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 248, 3, 757-764 (2001)
- (16) J. J. La Rosa, W. Burnett, S. H. Lee, I. Levy, J. Gastaud and P. P. Povinec  
Separation of actinides, cesium and strontium from marine samples using extraction chromatography and sorbents  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 248, 3, 765-770 (2001)
- (17) R. Henry, D. Koller, M. Liezers, O. T. Farmer III, C. Barinaga, D. W. Koppenaal and J. Wacker  
New advances in inductively coupled plasma-mass spectrometry (ICP-MS) for routine measurements in the nuclear industry  
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 249, 1, 103-108 (2001)
- (18) D. Copplestone, M. S. Johnson and S. R. Jones  
Behaviour and transport of radionuclides in soil and vegetation of a sand dune ecosystem  
Journal of Environmental Radioactivity, 55, 93-108 (2001)
- (19) P. McDonald, J. Vives i Batlle, A. Bousher, A. Whittall and N. Chambers  
The availability of plutonium and americium in Irish Sea sediments for re-dissolution  
The Science of the Total Environment, 267, 109-123 (2001)

- (20) M. Agarande, S. Benzoubir, P. Bouisset and D. Calmet  
Determination of  $^{241}\text{Am}$  in sediments by isotope dilution high resolution inductively coupled plasma mass spectrometry  
Applied Radiation and Isotopes, 55, 161-165 (2001)
- (21) Jason B. Truscott, Phil Jones, Ben E. Fairman and E. Hywel Evans  
Determination of actinide elements at femtogram per gram levels in environmental samples by on-line solid phase extraction and sector-field-inductively coupled plasma-mass spectrometry  
Analytica Chimica Acta, 433, 245-253 (2001)
- (22) Rex N. Taylor, Thorsten Warneke, J. Andrew Milton, Ian W. Croudace, Phillip E. Warwick and Robert W. Nesbitt  
Plutonium isotope ratio analysis at femtogram to nanogram levels by multicollector ICP-MS  
Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 16, 279-284 (2001)
- (23) 関 李紀  
環境中の長半減期核種の分析  
ぶんせき, 12, 684-689 (2001)
- (24) Mark W. Huntley  
Sequential separation of americium, curium, plutonium, neptunium and uranium in various matrices from the electrometallurgic treatment of spent-nuclear fuel  
Radiochim. Acta, 89, 605-612 (2001)
- (25) Bruce J. Mincher, Robert V. Fox, Robert G.G. Holmes, Rebecca A. Robbins and Colin Boardman  
Supercritical fluid extraction of plutonium and americium from soil using thenoyltrifluoroacetone and tributylphosphate complexation  
Radiochim. Acta, 89, 613-617 (2001)

## ○専門家会合

本分析法の制定は、下記の専門家会合において行った。

- ・第3回 放射能測定法マニュアル等専門家会合  
平成15年10月20日 文部科学省別館第3会議室
- ・第4回 放射能測定法マニュアル等専門家会合  
平成15年11月20日 文部科学省別館第3会議室
- ・第5回 放射能測定法マニュアル等専門家会合  
平成16年2月5日 文部科学省ビル2F1会議室

(回数は会合設置からの通算回数)

### (専門委員)

|       |                      |
|-------|----------------------|
| 石黒 秀治 | (財)原子力研究バックエンド推進センター |
| 植頭 康裕 | 核燃料サイクル開発機構          |
| 大島 真澄 | 日本原子力研究所             |
| 木村 秀樹 | 青森県原子力センター           |
| 佐藤 兼章 | (財)日本分析センター          |
| 高山 裕美 | 福井県原子力環境監視センター       |
| 武石 稔  | 核燃料サイクル開発機構          |
| 村松 康行 | 独立行政法人放射線医学総合研究所     |
| 山本 政儀 | 金沢大学自然計測応用研究センター     |
| 渡部 和男 | 日本原子力研究所             |

## ○協力者

本分析法の制定に関する調査検討及び本マニュアルの作成は、専門委員他下記の方々のご協力を得て行いました。ご尽力に対し深く御礼申し上げます。

|       |             |       |              |
|-------|-------------|-------|--------------|
| 虻川 成司 | (財)日本分析センター | 野口 正安 | 元(財)日本分析センター |
| 磯貝 啓介 | (財)日本分析センター | 橋本 和子 | 茨城県公害技術センター  |
| 大西 俊彦 | 日本原燃(株)     | 樋口 英雄 | (財)日本分析センター  |
| 岸本 武士 | (財)日本分析センター | 平井 保夫 | 茨城県公害技術センター  |
| 真田 哲也 | (財)日本分析センター | 福嶋 浩人 | (財)日本分析センター  |
| 津浦 伸次 | 日本原燃(株)     | 森本 隆夫 | (財)日本分析センター  |
| 沼宮内弼雄 | (財)放射線計測協会  | 吉田 善行 | 日本原子力研究所     |

(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                         | 平成 15 年 7 月(4 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 14 年 7 月(2 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<br>試料の前処理法 | 昭和 57 年 7 月      |
| 14. ウラン分析法                               | 平成 14 年 7 月(2 訂) |
| 15. 緊急時における放射性ヨウ素測定法                     | 平成 14 年 7 月(1 訂) |
| 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<br>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       |
| 27. 蛍光ガラス線量計を用いた環境 $\gamma$ 線量測定法        | 平成 14 年 7 月      |
| 28. 環境試料中プルトニウム迅速分析法                     | 平成 14 年 7 月      |
| 29. 緊急時におけるガンマ線スペクトル解析法                  | 平成 16 年 2 月      |
| 30. 環境試料中アメリシウム 241、キュリウム迅速分析法           | 平成 16 年 2 月      |
| 31. 環境試料中全アルファ放射能迅速分析法                   | 平成 16 年 2 月      |
| 32. 環境試料中ヨウ素 129 迅速分析法                   | 平成 16 年 2 月      |