

環境試料中全アルファ放射能 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	3
2.1 担体溶液	3
2.2 酸類	3
2.3 アルカリ類	3
2.4 塩類	3
2.5 その他の試薬	4
2.6 混合溶液	4
第3章 大気浮遊じん	5
3.1 試薬・器具・装置	5
3.2 分析操作	5
第4章 土壌	8
4.1 試薬・器具・装置	8
4.2 分析操作	8
第5章 降下物	11
5.1 試薬・器具・装置	11
5.2 分析操作	11
第6章 飲料水	14
6.1 試薬・器具・装置	14
6.2 分析操作	14
第7章 牛乳	17
7.1 試薬・器具・装置	17
7.2 分析操作	17
第8章 葉菜	20
8.1 試薬・器具・装置	20
8.2 分析操作	21
第9章 α 線測定	23

9.1 測定試料の調製	23
9.2 測定	24
9.3 放射能濃度の計算	26
解 説	
解説 A プルトニウム、アメリシウム及びキュリウムのグループ分離・精製法 ..	29
解説 B 全 α 放射能測定試料の調製法	35
解説 C 全 α 放射能測定機器の計数効率と検出下限値	40
解説 D 液体シンチレーションカウンタを用いた全 α 放射能測定法	41
解説 E 本分析法の環境試料への適用結果	54
解説 F クロスチェック結果	57
付 録	
付録 1 主なプルトニウム、アメリシウム及びキュリウム	
同位体の核データと比放射能	61
付録 2 全 α 放射能迅速分析法の流れ図	62
付録 3 参考文献	66

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、プルトニウムなど超ウラン元素の α 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、環境試料中のプルトニウム及び超ウラン元素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。

「原子力施設等の防災対策について」*¹（以下「防災指針」という。）に示された飲食物摂取制限に関する指標は、プルトニウムなど超ウラン元素の α 線放出核種（プルトニウム238、プルトニウム239、プルトニウム240、プルトニウム242、アメリシウム241、キュリウム242、キュリウム243及びキュリウム244）の放射能濃度の合計として示されており、簡便かつ迅速にこれら α 線放出核種をウラン、トリウム等の自然放射性核種と分離し、その濃度レベルを把握する必要がある。

本マニュアルの対象試料は、防災指針及び「緊急時環境放射線モニタリング指針」*²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、分析法は、これら試料中のプルトニウム、アメリシウム及びキュリウムを分離・精製し、種々の α 線測定装置により全 α 放射能を簡易測定するものとした。

アメリシウム241、キュリウム迅速分析法で用いた抽出クロマトグラフィーを用いて、試料中の全 α （プルトニウム、アメリシウム、キュリウム同位体）放射能を迅速に分離精製する方法を検討し、分析開始後 24時間以内に結果を得ることができる緊急時に対応した全 α 放射能迅速分析法を作成した。

本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。

*¹ 「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

*² 「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	ZnS (Ag) ¹⁾ シンチレーション 計数装置	2πガスフロー ¹⁾ 計数装置	シリコン ¹⁾ 半導体 検出器	単位	飲食物摂取制限 に関する指標 ²⁾ (Bq/kg)
大気浮遊じん	1m ³	5	10	5	mBq/m ³	——
土壌	1g乾土	5	10	5	Bq/kg乾土	——
降下物	0.05m ² , 1日	0.1	0.2	0.1	Bq/m ² /日	——
飲料水	2 L	0.002	0.005	0.002	Bq/L	1
牛乳	0.1L	0.05	0.1	0.05	Bq/L	1
葉菜	0.1kg生	0.05	0.1	0.05	Bq/kg生	10

¹⁾ 4時間計測した場合

²⁾ プルトニウム及び超ウラン元素のα線放出核種

第 2 章 試薬の調製

本分析法に必要な試薬の調製方法を示す。

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 担体溶液

鉄(Ⅲ)担体溶液(50mg Fe³⁺/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(5mg Fe³⁺/ml) : 鉄(Ⅲ)担体溶液(50mg Fe³⁺/ml) 10mlに水を加え 100mlとする。

ネオジム担体溶液(1mg Nd³⁺/ml) : 市販品(原子吸光用等)を用いる。

2.2 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。

過塩素酸

フッ化水素酸

ホウ酸

2.3 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。

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%) : 水酸化ナトリウム溶液 40g に水を加えて溶解し 1L とする。

2.4 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。

2.5 その他の試薬

過酸化水素水

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 50ml に溶解した後、水を加えて 100ml とする。

2.6 混合溶液

硝酸-フッ化水素酸混合溶液^{*1} : 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+14) 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+13) 500ml にアスコル
ビン酸 13g を溶解する。

塩酸(4mol/L) - アスコルビン酸(0.3mol/L) 混合溶液 : 塩酸(1+2) 500ml にアスコル
ビン酸 13g を溶解する。

^{*1} 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。

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。

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 50 分間プルトニウム、アメリシウム及びキュリウムを浸出する。浸出液中のプルトニウムを Pu^{3+} に調整した後、抽出クロマトグラフィーによりプルトニウム、アメリシウム及びキュリウムを分離・精製する。精製した試料を塩酸溶液とし、フッ化ネオジム共沈法により α 線計測用試料とし、 ZnS(Ag) シンチレーション計数装置等を用いて全 α 放射能を定量する。

試料の前処理、化学分離から α 線測定までに要する時間は、約 13 時間である。

3.1 試薬・器具・装置

試薬(第 2 章参照)

担体溶液	鉄(Ⅲ)担体溶液(5mg Fe^{3+} /ml)
酸類	硝酸(3+2) 塩酸(3+1)、(1+2) 硝酸－フッ化水素酸混合溶液* ¹ 硝酸(2mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液
アルカリ類	水酸化ナトリウム アンモニア水
塩類	亜硝酸ナトリウム溶液(20W/V%)
樹脂類	TRU レジンカラム(市販品、Eichrom Technologies 社製、樹脂量:5ml)
器具	TRU レジン用カラム立て、ホットプレート、メンブランフィルター(孔径 0.45 μm , 47mm ϕ)、分離型ろ過器(内径 45mm)
装置	マイクロウェーブ分解装置* ² 、アスピレーター、遠心分離機

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*³に設定し、マイクロウェーブ分解を行う。*⁴

*¹ 混合比は、2.6 を参照

*² マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA等。

- (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^{*5}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を加えてかくはん後、ホットプレート上で約 30 分間加熱する。^{*6}
- (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) 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、不溶物は水で洗浄する。ろ液及び洗液は 300ml ビーカーに受け分析用試料溶液とする。

3.2.2 水酸化鉄(III)共沈法によるプルトニウム、アメリシウム、キュリウムの捕集

- (1) 分析用試料溶液に鉄(III)担体溶液(5mg Fe³⁺/ml) 2mlと水を加え、溶液量を約 200ml とする。
- (2) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを加え、pH を 10 以上とした後、時計皿をかぶせ、ホットプレート上で加熱・沸騰する。
- (3) 水浴中に約 1 時間静置後、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。
- (4) 3,000rpm で約 10 分間遠心分離を行う。上澄み液を捨てる。
- (5) 沈殿に塩酸(1+2)を加え溶解後、200ml ビーカーに移し水を加えて約 150ml とする。

^{*3} 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。温度が上がりすぎ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

^{*4} サポート材を含まないろ紙の場合は、(3) ~ (6) の操作は省く。

^{*5} 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

^{*6} Pu⁴⁺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。

- (6) かき混ぜながらアンモニア水を加えて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加熱・沸騰する。
- (8) 水浴中に約 1 時間静置後、デカンテーションにより上澄み液を捨て、沈殿物を遠沈管（容量 50ml）に移す。
- (9) 3,000rpm で約 10 分間遠心分離を行う。上澄み液を捨てる。
- (10) 硝酸(2mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30ml で沈殿物を溶解し、TRU レジンカラム分離溶液とする。^{*7}

3.2.3 TRU レジンカラムによる分離・精製

- (1) TRU レジンカラム(樹脂量:5ml)にTRU レジンカラム分離溶液を流す。^{*8}
- (2) 硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30ml、次いで塩酸(3+1) 20ml でカラムを洗浄後、塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30ml を流し、プルトニウム、アメリシウム、キュリウムを溶離してフッ化物沈殿調製溶液とする。^{*9}

3.2.4 全 α 放射能の定量

第 9 章 9.1 に従い、フッ化物沈殿調製溶液から α 線計測用試料を作製し、9.2 に従って全 α 放射能を測定・定量する。

^{*7} 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。アスコルビン酸により Fe^{3+} を Fe^{2+} に還元し、樹脂に吸着しないようにする。

^{*8} TRU レジンカラムには予め硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 20ml を通しておく。

^{*9} 塩酸(3+1) 洗浄時にはビスマスが溶出する。トリウム、ウランは樹脂に残る。

第 4 章 土壌

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によりプルトニウム、アメリシウム及びキュリウムを浸出する。浸出液中のプルトニウムを Pu^{3+} に調整した後、抽出クロマトグラフィーによりプルトニウム、アメリシウム及びキュリウムを分離・精製する。精製した試料を塩酸溶液とし、フッ化ネオジム共沈法により α 線計測用試料を調製し、ZnS(Ag)シンチレーション計数装置等を用いて全 α 放射能を定量する。

試料の前処理、化学分離から α 線測定までに要する時間は、約 12 時間である。

4.1 試薬・器具・装置

試薬(第 2 章参照)

酸類	硝酸(3+2) 塩酸(3+1)、(1+2) 硝酸-フッ化水素酸混合溶液* ¹ 硝酸(2mol/L)-アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 硝酸(1mol/L)-アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 塩酸(4mol/L)-アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液
アルカリ類	水酸化ナトリウム アンモニア水
塩類	亜硝酸ナトリウム溶液(20W/V%)
樹脂類	TRU レジンカラム(市販品、Eichrom Technologies 社製、樹脂量:5ml)
器具	TRU レジン用カラム立て、ホットプレート、メンブランフィルター(孔径 0.45 μm , 47mm ϕ)、分離型ろ過器(内径 45mm)
装置	マイクロウェーブ分解装置* ² 、アスピレーター、遠心分離機

4.2 分析操作

4.2.1 試料の前処理

- (1) 試料 1g 乾土をテフロン製の高圧分解容器(容量 100ml)に分取し、硝酸-フッ化水素酸混合溶液 30ml を加える。*³
- (2) 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。

*¹ 混合比は、2.6 を参照

*² マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA 等。

*³ (1) ~ (5) の操作はテフロンビーカーとホットプレートを用いて行うことができる。この場合の加熱時間は 3 時間程度とする。

- (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*⁴に設定し、試料を分解する。
- (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、硝酸(3+2)を用いて内容物を 200ml テフロンビーカーに移す。
- (6) 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。*⁵
- (7) 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。
- (8) 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、不溶物は水で洗浄する。ろ液及び洗液を 300ml ビーカーに受け分析用試料溶液とする。

4.2.2 水酸化鉄(III)共沈法によるプルトニウム、アメリシウム、キュリウムの捕集

- (1) 分析用試料溶液に水を加え、溶液量を約 200ml とする。
- (2) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを加え、pH を 10 以上とした後、時計皿をかぶせ、ホットプレート上で加熱・沸騰する。
- (3) 水浴中に約 1 時間静置後、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。
- (4) 3,000rpm で約 10 分間遠心分離を行う。上澄み液を捨てる。
- (5) 沈殿に塩酸(1+2)を加え溶解後、200ml ビーカーに移し水を加えて約 150ml とする。
- (6) かき混ぜながらアンモニア水を加えて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加熱・沸騰する。
- (8) 水浴中に約 1 時間静置後、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。
- (9) 3,000rpm で約 10 分間遠心分離を行う。上澄み液を捨てる。
- (10) 硝酸(2mol/L)ーアスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30mlで沈殿物を溶解し、TRUレジニカラム分離溶液とする。*⁶

*⁴ マイルストーン社製 MLS-1200 MEGAを用いる時の一例

350W 5 分ー400W 25 分

*⁵ Pu⁴⁺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。

*⁶ 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。アスコルビン酸によりFe³⁺をFe²⁺に還元し、樹脂に吸着しないようにする。

4.2.3 TRU レジンカラムによる分離・精製

- (1) TRUレジンカラム(樹脂量:5ml)にTRUレジンカラム分離溶液を流す。^{*7}
- (2) 硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30ml、次いで塩酸(3+1) 20mlでカラムを洗浄後、塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30mlを流し、プルトニウム、アメリシウム、キュリウムを溶離してフッ化物沈殿調製溶液とする。

^{*8}

4.2.4 全 α 放射能の定量

第9章 9.1に従い、フッ化物沈殿調製溶液を用いて α 線計測用試料を作製し、9.2に従って全 α 放射能を測定・定量する。

^{*7} TRUレジンカラムには予め硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 20mlを通しておく。

^{*8} 塩酸(3+1)洗浄時にはビスマスが溶出する。トリウム、ウランは樹脂に残る。

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。

難溶性のプルトニウム及び可溶性プルトニウムを合わせて分析する。

試料をろ過する。残留物を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を用いて 30 分間加熱し、含まれている難溶性のプルトニウムを浸出する。浸出液をろ液に合わせた後、溶液中のプルトニウム、アメリシウム及びキュリウムを、水酸化鉄(Ⅲ)共沈法により捕集する。沈殿に硝酸を加え溶解し、プルトニウムを Pu^{3+} に調整した後、抽出クロマトグラフィーによりプルトニウム、アメリシウム及びキュリウムを分離・精製する。精製した試料を塩酸溶液とし、フッ化ネオジム共沈法により α 線計測用試料とし、 ZnS(Ag) シンチレーション計数装置等を用いて全 α 放射能を定量する。

試料の前処理、化学分離から α 線測定までに要する時間は、約 14 時間である。

5.1 試薬・器具・装置

試薬(第 2 章参照)

担体溶液	鉄(Ⅲ)担体溶液(50mg Fe^{3+} /ml)
酸類	硝酸(3+2) 塩酸(3+1)、(1+2) 過酸化水素水(30%) 硝酸－フッ化水素酸混合溶液* ¹ 硝酸(2mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液
アルカリ類	水酸化ナトリウム アンモニア水
その他	フェノールフタレイン－エタノール溶液(0.5W/V%)
樹脂類	TRU レジンカラム (市販品、Eichrom Technologies 社製、樹脂量：5ml)
器具	TRU レジンカラム立て、ホットプレート、ガスコンロ、メンブランフィルター(孔径 0.45 μm , 47mm ϕ)、分離型ろ過器(内径 45mm)
装置	マイクロウェーブ分解装置* ² 、アスピレーター、遠心分離機

5.2 分析操作

5.2.1 試料の前処理

(1) 採取した試料を 1L 分取する(全量が 1L に達しない場合は全量を用いる)。

*¹ 混合比は、2.6 を参照

*² マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA等

- (2) メンブランフィルターを用いて吸引ろ過する。ろ液を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*³に設定し、試料を分解する。
- (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 当り、鉄(III)担体溶液(50mg Fe³⁺/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) 時計皿をかぶせ、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、遠心分離する。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
- (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) 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、不溶物は水で洗浄する。ろ液及び洗液を 500ml ビーカーに受け、分析用試料溶液とする。

5.2.2 水酸化鉄(III)共沈法によるプルトニウム、アメリシウム、キュリウムの捕集

- (1) 分析用試料溶液に水を加え、溶液量を約 400ml とする。
- (2) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを加えて pH を 10 以上とした後、時計皿をかぶせ、ホットプレート上で加熱・沸騰する。
- (3) 水浴中に約 1 時間静置後、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。
- (4) 3,000rpm で約 10 分間遠心分離を行う。上澄み液は捨てる。

*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 Pu⁴⁺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。

- (5) 沈殿に塩酸(1+2)を加え溶解後、200ml ビーカーに移し水を加えて約 150ml とする。
- (6) かき混ぜながらアンモニア水を加えて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加熱・沸騰する。
- (8) 水浴中に約 1 時間静置後、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。
- (9) 3,000rpm で約 10 分間遠心分離を行う。上澄み液は捨てる。
- (10) 硝酸(2mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30mlで沈殿物を溶解し、TRUレジンカラム分離溶液とする。^{*5}

5.2.3 TRU レジンカラムによる分離・精製

- (1) TRUレジンカラム(樹脂量:5ml)にTRUレジンカラム分離溶液を流す。^{*6}
- (2) 硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30ml、次いで塩酸(3+1) 20mlでカラムを洗浄後、塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30mlを流し、プルトニウム、アメリシウム、キュリウムを溶離してフッ化物沈殿調製溶液とする。^{*7}

5.2.4 全 α 放射能の定量

第9章 9.1 に従い、フッ化物沈殿調製溶液を用いて α 線計測用試料を作製し、9.2 に従って全 α 放射能を測定・定量する。

^{*5} 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。アスコルビン酸により Fe^{3+} を Fe^{2+} に還元し、樹脂に吸着しないようにする。

^{*6} TRUレジンカラムには予め硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 20mlを通しておく。

^{*7} 塩酸(3+1)洗浄時にはビスマスが溶出する。トリウム、ウランは樹脂に残る。

第 6 章 飲料水

難溶性のプルトニウム及び可溶性プルトニウムを合わせて分析する。

試料をろ過する。残留物を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を用いて 30 分間加熱し、含まれている難溶性のプルトニウムを浸出する。浸出液をろ液に合わせた後、溶液中のプルトニウムを、水酸化鉄(Ⅲ)共沈法により捕集する。沈殿に硝酸を加え溶解し、プルトニウムを Pu^{3+} に調整した後、抽出クロマトグラフィーによりプルトニウム、アメリカシウム及びキュリウムを分離・精製する。精製した試料を塩酸溶液とし、フッ化ネオジム共沈法により α 線計測用試料とし、 ZnS(Ag) シンチレーション計数装置等を用いて全 α 放射能を定量する。

試料の前処理、化学分離から α 線測定までに要する時間は、約 14 時間である。

6.1 試薬・器具・装置

試薬(第 2 章参照)

担体溶液	鉄(Ⅲ)担体溶液(50mg Fe^{3+} /ml)
酸類	硝酸(3+2) 塩酸(3+1)、(1+2) 過酸化水素水(30%) 硝酸－フッ化水素酸混合溶液* ¹ 硝酸(2mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液
アルカリ類	水酸化ナトリウム アンモニア水
塩類	亜硝酸ナトリウム溶液(20W/V%)
指示薬	フェノールフタレイン－エタノール溶液(0.5W/V%)
樹脂類	TRU レジンカラム (市販品、Eichrom Technologies 社製、樹脂量：5ml)
器具	TRU レジン用カラム立て、ホットプレート、ガスコンロ、メンブランフィルター(孔径 0.45 μm , 47mm ϕ)、分離型ろ過器(内径 45mm)
装置	マイクロウェーブ分解装置* ² 、アスピレーター、遠心分離機

6.2 分析操作

6.2.1 試料の前処理

- (1) 試料 2L を分取する。
- (2) メンブランフィルターを用いて吸引ろ過する。

*¹ 混合比は、2.6 を参照

*² マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA等。

- (3) 残留物をろ紙ごとテフロン製の高圧分解容器(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。
- (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、試料を分解をする。
- (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)で得たる液に合わせる。
- (9) ろ液に鉄(Ⅲ)担体溶液(50mg Fe³⁺/ml) 2mlを加え、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) 時計皿をかぶせ、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、遠心分離する。上澄み液を捨てる。
- (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
- (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) 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、不溶物は水で洗浄する。ろ液及び洗液を 500ml ビーカーに受け、分析用試料溶液とする。

6.2.2 水酸化鉄(Ⅲ)共沈法によるプルトニウム、アメリシウム、キュリウムの捕集

- (1) 分析用試料溶液に水を加え、溶液量を約 400ml とする。
- (2) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを加えて pH を 10 以上とした後、時計皿をかぶせ、ホットプレート上で加熱・沸騰する。
- (3) 水浴中に約 1 時間静置後、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。
- (4) 3,000rpm で約 10 分間、遠心分離する。上澄み液を捨てる。

*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 Pu⁴⁺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。

- (5) 沈殿に塩酸(1+2)を加え溶解後、200ml ビーカーに移し水を加えて約 150ml とする。
- (6) かき混ぜながらアンモニア水を加えて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加熱・沸騰する。
- (8) 水浴中に約 1 時間静置後、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。
- (9) 3,000rpm で約 10 分間、遠心分離する。上澄み液を捨てる。
- (10) 硝酸(2mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30mlで沈殿物を溶解し、TRUレジンカラム分離溶液とする。^{*5}

6.2.3 TRU レジンカラムによる分離・精製

- (1) TRUレジンカラム(樹脂量:5ml)にTRUレジンカラム分離溶液を流す。^{*6}
- (2) 硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30ml、次いで塩酸(3+1) 20mlでカラムを洗浄後、塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30mlを流し、プルトニウム、アメリシウム、キュリウムを溶離してフッ化物沈殿調製溶液とする。^{*7}

6.2.4 全 α 放射能の定量

第9章 9.1に従い、フッ化物沈殿調製溶液を用いて α 線計測用試料を作製し、9.2に従って全 α 放射能を測定・定量する。

^{*5} 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。アスコルビン酸により Fe^{3+} を Fe^{2+} に還元し、樹脂に吸着しないようにする。

^{*6} TRUレジンカラムには予め硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 20mlを通しておく。

^{*7} 塩酸 (3+1) 洗浄時にはビスマスが溶出する。トリウム、ウランは樹脂に残る。

第 7 章 牛乳

牛乳は、プルトニウムの移行経路を考慮すると、高温に加熱されたプルトニウム（焼結プルトニウム）が混入する可能性は少ないので、これを考慮した分析法は必要としない。

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。灰化した試料を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 Pu^{3+} に調整した後、抽出クロマトグラフィーによりプルトニウム、アメリシウム及びキュリウムを分離・精製する。精製した試料を塩酸溶液とし、フッ化ネオジム共沈法により α 線計測用試料を調製し、 ZnS(Ag) シンチレーション計数装置等を用いて全 α 放射能を定量する。

試料の前処理、化学分離から α 線測定までに要する時間は約 18 時間である。

7.1 試薬・器具・装置

試薬（第 2 章参照）

担体溶液	鉄(Ⅲ)担体溶液(5mg Fe^{3+} /ml)
酸類	硝酸(3+2) 塩酸(3+1)、(1+2) 硝酸(2mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液
アルカリ類	水酸化ナトリウム アンモニア水
塩類	亜硝酸ナトリウム溶液(20W/V%)
樹脂類	TRU レジンカラム(市販品、Eichrom Technologies 社製、樹脂量:5ml)
器具	磁製皿、TRU レジン用カラム立て、ホットプレート、メンブランフィルター(孔径 0.45 μm , 47mm ϕ)、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* ¹ 又は電気炉、マイクロウェーブ分解装置* ² 、アスピレーター、遠心分離機

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－炭化する。*³
- (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°C から 600°C まで順次上げて 3 時間程度加熱し(例えば、250°C:60 分, 500°C:90 分, 600°C: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°C とし、5 時間程度加熱する。

*¹ マイルストーン社製 MLS-1200 PYRO等。

*² マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA等。

*³ 40 分程度を要する。

- (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*⁴に設定し、試料を分解する。
- (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 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。*⁵
- (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) 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、不溶物を水で洗浄する。ろ液及び洗液を 300ml ビーカーに受け分析用試料溶液とする。

7.2.2 水酸化鉄(III)共沈法によるプルトニウム、アメリシウム、キュリウムの捕集

- (1) 分析用試料溶液に鉄(III)担体溶液(5mg Fe³⁺/ml) 2mlと水を加え、溶液量を 200ml とする。
- (2) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを加えて pH を 10 以上とした後、時計皿をかぶせホットプレート上で加熱・沸騰する。
- (3) 水浴中に約 1 時間静置後、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。
- (4) 3,000rpm で約 10 分間、遠心分離する。上澄み液を捨てる。
- (5) 沈殿に塩酸(1+2)を加え溶解後、200ml ビーカーに移し水を加えて約 150ml とする。
- (6) かき混ぜながらアンモニア水を加えて水酸化物沈殿を生成する。
- (7) アンモニア水 5ml を加え、時計皿をかぶせホットプレート上で加熱・沸騰する。
- (8) 水浴中に約 1 時間静置後、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。
- (9) 3,000rpm で約 10 分間、遠心分離する。上澄み液を捨てる。
- (10) 硝酸(2mol/L)ーアスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30mlで沈殿物を溶解し、TRU レジンカラム分離溶液とする。*⁶

*⁴ 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

*⁵ Pu⁴⁺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。

*⁶ 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。アスコルビン酸によりFe³⁺をFe²⁺に還元し、樹脂に吸着しないようにする。

7.2.3 TRU レジンカラムによる分離・精製

- (1) TRUレジンカラム(樹脂量:5ml)にTRUレジンカラム分離溶液を流す。^{*7}
- (2) 硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30ml、次いで塩酸(3+1)20mlでカラムを洗浄後、塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30mlを流し、プルトニウム、アメリシウム、キュリウムを溶離してフッ化物沈殿調製溶液とする。^{*8}

7.2.4 全 α 放射能の定量

第9章9.1に従い、フッ化物沈殿調製溶液を用いて α 線計測用試料を作製し、9.2に従って全 α 放射能を測定・定量する。

^{*7} TRUレジンカラムには予め硝酸(1 mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 20mlを通しておく。

^{*8} 塩酸(3+1)洗浄時にはビスマスが溶出する。トリウム、ウランは樹脂に残る。

第 8 章 葉菜

緊急時の際には、高温加熱されたプルトニウム（焼結プルトニウム）が含まれているものと仮定して分析する。

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。灰化した試料から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 30 分間プルトニウムを浸出する。浸出液中のプルトニウムをPu³⁺に調整した後、抽出クロマトグラフィーによりプルトニウム、アメリカシウム及びキュリウムを分離・精製する。精製した試料を塩酸溶液とし、フッ化ネオジム共沈法により α 線計測用試料を調製し、ZnS (Ag) シンチレーション計数装置等を用いて全 α 放射能を定量する。

試料の前処理、化学分離から α 線測定までに要する時間は、約 20 時間である。

8.1 試薬・器具・装置

試薬（第 2 章参照）

担体溶液	鉄(III)担体溶液(5mg Fe ³⁺ /ml)
酸類	硝酸(3+2)、(1+13) 塩酸(3+1) 硝酸－フッ化水素酸混合溶液* ¹ 硝酸(2mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液
アルカリ類	水酸化ナトリウム アンモニア水
樹脂類	TRU レジンカラム（市販品、Eichrom Technologies 社製、樹脂量：5ml）
器具	磁製皿、TRU レジン用カラム立て、ホットプレート、メンブランフィルター（孔径 0.45 μm, 47mm φ）、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* ² 又は電気炉、マイクロウェーブ分解装置* ³ 、電子レンジ* ⁴ 又は乾燥器、アスピレーター、遠心分離機

*¹ 混合比は、2.6 を参照

*² マイルストーン社製 MLS-1200 PYRO等。

*³ マイルストーン社製 MLS-1200 MEGA等。

*⁴ 家庭用(高周波出力 500W程度)。

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。^{*5}
- (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压分解容器(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^{*6}に設定し、試料を分解する。
- (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。^{*7}
- (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) 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、不溶物は水で洗浄する。ろ液及び洗液を 300ml ビーカーに受け分析用試料溶液とする。

8.2.2 水酸化鉄(Ⅲ)共沈法によるプルトニウム、アメリシウム、キュリウムの捕集

- (1) 分析用試料溶液を 300ml ビーカーに移し、鉄(Ⅲ)担体溶液(5mg Fe³⁺/ml) 2mlと水を加え、溶液量を 200mlとする。
- (2) かき混ぜながら水酸化ナトリウムを加え、pH を 10 以上とした後、時計皿をかぶせ、ホットプレート上で加熱・沸騰する。
- (3) 水浴中に約 1 時間静置後、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。
- (4) 3,000rpm で約 10 分間、遠心分離する。上澄み液を捨てる。
- (5) 沈殿に塩酸(1+2)を加え溶解後、200ml ビーカーに移し水を加えて約 150ml とする。
- (6) かき混ぜながらアンモニア水を加えて水酸化物沈殿を生成する。

^{*5} 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。

^{*6} 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

^{*7} Pu⁴⁺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。

- (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加熱・沸騰する。
- (8) 水浴中に約 1 時間静置後、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。
- (9) 3,000rpm で約 10 分間、遠心分離する。上澄み液は捨てる。
- (10) 硝酸(2mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30ml で沈殿物を溶解し、TRU レジンカラム分離溶液とする。^{*8}

8.2.3 TRU レジンカラムによる分離・精製

- (1) TRU レジンカラム (樹脂量:5ml) に TRU レジンカラム分離溶液を流す。^{*9}
- (2) 硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30ml、次いで塩酸(3+1)20ml でカラムを洗浄後、塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液 30ml を流し、プルトニウム、アメリシウム、キュリウムを溶離してフッ化物沈殿調製溶液とする。^{*10}

8.2.4 全 α 放射能の定量

第 9 章 9.1 に従い、フッ化物沈殿調製溶液を用いて α 線計測線源を作製し、9.2 に従って全 α 放射能を測定・定量する。

^{*8} 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。アスコルビン酸により Fe^{3+} を Fe^{2+} に還元し、樹脂に吸着しないようにする。

^{*9} TRU レジンカラムには予め硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)混合溶液20mlを通しておく。

^{*10} 塩酸(3+1)洗浄時にはビスマスが溶出する。トリウム、ウランは樹脂に残る。

第 9 章 α 線測定

フッ化ネオジム共沈法により、プルトニウム、アメリシウム及びキュリウムをメンブランフィルター上にろ別し乾燥した α 線計測用試料について、ZnS(Ag)シンチレーション計数装置等を用いて α 線測定を行う。

この方法により、プルトニウム同位体(プルトニウム 238、プルトニウム 239、プルトニウム 240)、アメリシウム 241 及びキュリウム同位体(キュリウム 242、キュリウム 243、キュリウム 244)の合計の放射能濃度を定量することができる。定量には、予め標準線源を用いて決定した計数効率を用いる。また、Si 半導体検出器を用いた場合、その α 線スペクトルから、核種ごとの定量も可能である。

なお、本法では、化学分離工程において損失があるが、回収率を補正することはできない。回収率は分析を行う人の経験等にもよるが、最大で 90%程度である。

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(1mg Nd³⁺/ml)

酸類 硝酸

 塩酸(1+11)

 過塩素酸

 フッ化水素酸

 アスコルビン酸

器具 ホットプレート、メンブランフィルター(孔径 0.1 μ m、25mm ϕ)、分離型ろ過器(内径 23mm)^{*1}、ステンレス鋼板(直径 24mm、厚さ 1mm)、ピンセット、両面テープ

9.1.2 操作

- (1) 第 3～8 章で調製したフッ化物沈殿調製溶液に硝酸 10ml を加え、ホットプレート上で蒸発乾固する。
- (2) 硝酸 5ml と過塩素酸 2ml を加え蒸発乾固する。
- (3) 塩酸(1+11) 5ml を加え時計皿をかぶせ、ホットプレート上で加温する。
- (4) 駒込ピペット等を用いて溶液をポリプロピレンビーカー(容量 30ml)に移し、ビーカーを塩酸 5ml (2.5ml \times 2 回)を用いて洗浄し、洗浄液を溶液に合わせる。
- (5) ネオジム担体溶液(1mg Nd³⁺/ml) 0.1ml とフッ化水素酸 1ml を加えた後、アスコルビン酸 50 mg を加え溶解する。溶解後、フッ化水素酸 1ml を加え、約 30 分放置する。^{*2}

^{*1} プラスチック製、Gelman Sciences製 Magnetic Filter Funnel 等。

^{*2} フッ化物沈殿は、量が少ないため目に見えない。

- (6) 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、フッ化物沈殿をろ紙上にマウントする。
- (7) フッ化物沈殿を少量の水で洗浄する。
- (8) ろ紙を取りはずし、ペーパータオル上で約5分間自然乾燥する。
- (9) ステンレス鋼板上に、両面テープを用いてろ紙をはりつけ、 α 線計測用試料とする。

9.2 測定

9.2.1 測定装置

測定装置の一例を以下に示す。

(1) ZnS(Ag) シンチレーション計数装置

1) 検出器の構成と特性

- ・ ZnS(Ag) シンチレーション検出器
 - シンチレータ ZnS(Ag) 50mm ϕ
 - 光電子増倍管 2 インチ ϕ
 - バックグラウンド計数率 0.15cpm 以下

2) 計数装置、他

- ・ 前置増幅器、スケーラー、高圧電源、プリンター、タイマー等一式

(2) 2π ガスフロー計数装置

1) 検出器

- ・ 2π ガスフロー比例計数管(PR ガス使用)
 - プラトー長 (α 領域) 150V 以上
 - 傾斜(α 領域) 10%/100V 以下
 - バックグラウンド計数率 0.05cpm 以下

2) 計数装置、他

- ・ 前置増幅器、スケーラー、プリンター、サンプルチェンジャー等一式

(3) シリコン半導体 α 線スペクトロメータ

1) 検出器の構成と特性

- ・ シリコン半導体検出器
 - 有効面積 450mm²、空乏層厚 100 μ m 程度で、5.3MeVの α 線に対するエネルギー分解能(FWHM)が 20~40keV 程度のもの

2) 計数装置、他

- ・ 前置増幅器*³
- ・ 主増幅器*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)
- ・ プリンター、プロッター
- ・ 検出器用電源*³

*³ NIMモジュールに内蔵されているタイプのものが多い。

- ・ビン電源
- ・真空チャンバー*³(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)
- ・油回転式真空ポンプ

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遠く離して設置し、電源を別系統とすることが望ましい。
- (2) ケーブル類の配線はできるだけ短くし、接地のとり方に注意して、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 モジュール式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) ZnS(Ag) シンチレーション計数装置*⁴

下記 1)～4)までは、機器の保守・管理として平常時に適宜行っておく。

- 1) α 線源を用いてプラトー曲線を作成し、印加電圧を決定する。
- 2) 1)で決定した電圧に設定し、1時間以上放置する。
- 3) バックグラウンドを測定する。(4時間)
- 4) 標準線源(U_3O_8 、アメリシウム 241 等)を計数し、計数効率を決定する。
- 5) 9.1 で調製した α 線計測用試料を標準 α 線源と同じ位置(検出器-線源間距離 ± 0.1 mm程度)で4時間程度計数する。*⁵
- 6) 試料名(番号)、計数值、計数開始時刻、計数時間を記録する。

(2) 2π ガスフロー計数装置

下記 1)～4)までは、機器の保守・管理として平常時に適宜行っておく。

- 1) カウンターガス(PR ガス)を測定時より多めに流し、検出器内の空気を完全に置換する。その後、メーカーが指定する流速に調整する。ただし、入射窓付き検出器における流速の急激な上昇は薄窓を破損することがあるので注意する。

*⁴ 試料と検出器間の空気及び遮光膜による吸収によって、 α 線のエネルギーによって計数効率が多少異なる場合がある。ステンレス板等を用いて試料と検出器間の距離を短くし、また対象核種とエネルギーが近い α 線を放出する標準線源を用いて校正し、測定する。

*⁵ 計数率が高い試料については、適宜計数時間を減らしてもよい。

- 2) 標準 α 線源を用いてプラトー曲線を作成し、印加電圧を決定する。
 - 3) 2)で決定した電圧に設定し、1時間以上放置する。
 - 4) バックグラウンドを測定する。(4時間)
 - 5) 標準線源(U_3O_8 、アメリシウム 241 等)を計数し、計数効率を決定する。
 - 6) 9.1 で調製した α 線測定用試料を標準 α 線源と同じ幾何学的条件で 4 時間程度計数する。
 - 7) 試料名(番号)、計数值、計数開始時刻、計数時間を記録する。
- (3) シリコン半導体 α 線スペクトロメータ
- 1) 検出器の印加電圧が零になっていることをダイヤル位置等で確認する。
 - 2) リークバルブを開き、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 α 線計測用試料を固定する。

*6

- 4) 試料交換口を閉じ、検出器チェンバー内を真空にする。
 - 5) 十分排気し、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まで上げる。*
- 7
- 6) 4 時間程度計数する。
 - 7) 測定終了後、各チャンネルにおける計数值とスペクトル図をプリンターなどに打ち出す。
 - 8) 検出器印加電圧を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、正味の計数率、使用した検出器の計数効率及び分析供試量が必要である。

全 α 放射能濃度を次式に従って計算する。

$$A = \frac{n \cdot 100}{E \cdot W} \qquad \sigma_A = \frac{\sigma_s}{n} A$$

A : 全 α 放射能濃度(Bq/kg、Bq/L等) W : 分析供試量(kg、L等)

σ_A : 全 α 放射能濃度の計数誤差(Bq/kg、Bq/L等) E : 計数効率(%)

n : 正味の計数率(cps)

σ_s : 正味の計数率に対する計数誤差(cps)

*6 検出器から試料までの距離は 5mm 程度が適当である。

なお、増幅器等の条件は、予め標準線源を用いて設定した値にする。

*7 高電圧用バッファがついていない場合には、電圧を徐々に上げなければならない。

解 說

解説 A プルトニウム、アメリシウム及びキュリウムのグループ分離・精製法

全 α 放射能として、プルトニウム、アメリシウム及びキュリウムをグループ分離し、ZnS (Ag) シンチレーション計数装置または 2π ガスフロー計数装置を用いて全 α 放射能を測定する方法を検討した。

試料の分解には焼結プルトニウムの共存を考慮して「環境試料中プルトニウム迅速分析法」と同様に硝酸(10mol/L)－フッ化水素酸(1mol/L)を用いることとした。また、プルトニウム等のグループ分離には「アメリシウム 241、キュリウム迅速分析法」で用いた Eichrom Technologies 社製 TRU レジンカラムを用いることとした。なお、土壌の分析供試量は迅速性を考慮して 1g とした。

1. TRU レジンカラム分離用試料溶液の調製方法

試料抽出液から TRU レジンカラム分離用試料溶液を調製するには、フッ素イオンの除去と溶液量を少なくするため、「アメリシウム 241、キュリウム迅速分析法」で用いた水酸化鉄共沈－硝酸(2mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)溶液で溶解する方法を用いた。つまり、鉄(III)担体を加え、水酸化ナトリウムを加えて水酸化鉄を沈殿させ、これにプルトニウム等を共沈させ、塩酸で溶解後再度アンモニア水を加えて水酸化鉄沈殿を生成し、それを硝酸(2mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)溶液 30ml で溶解する方法を用いた。

2. TRU レジンカラムの分離条件

「アメリシウム 241、キュリウム迅速分析法」ではプルトニウムを除去する必要があるので、硝酸(1mol/L)－0.2%亜硝酸ナトリウム溶液をカラムに通すことによって、プルトニウムの酸化状態を塩酸(4mol/L) (アメリシウム、キュリウムの溶離液) では溶出しない 4 価に調整して、樹脂に吸着したままプルトニウムを残すことで分離した。しかし、本法ではプルトニウムをアメリシウム等と一緒に溶離しなければならないため、全ての溶液にアスコルビン酸を共存させてプルトニウムの酸化状態を 3 価に保ったまま分離することとした。

(1) 検討方法

プルトニウム 242(2dpm)とアメリシウム 243(3dpm)を含む試料溶液(硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L))30ml と硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L) 30ml、塩酸(9mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L) 20ml、塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L) (溶離液)30ml を逐次 TRU レジンカラムに通し、溶出液中のプルトニウム 242 を ICP-MS、アメリシウム 243 を α 線スペクトロメトリーで定量した。

(2) 結果及び考察

プルトニウム 242 及びアメリシウム 243 の溶出率を図 A.1 に示す。また、ここで得られるプルトニウムとアメリシウムの回収率(溶離液を合わせた値)を表 A.1 に示す。硝酸(1mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)溶液中からは、95%以上のプルトニウム、アメリシウムが樹脂に吸着し、さらにその 80%以上が塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)

20ml で溶離した。なお、アメリシウム 243 の回収率がやや低いのは電着操作時の損失によるものと思われる。

この結果から設定した TRU レジンカラムの分離条件を表 A. 2 に示す。また、作成した全 α 放射能迅速分析法のフローシートを図 A. 2 に示す。

表 A. 1 TRU レジンカラムの分離後のプルトニウム、アメリシウムの回収率

試料	プルトニウム 242 (ICP-MS)	アメリシウム 243 (α 線スペクトロメトリー)
試料-1	0.94 \pm 0.08	0.83 \pm 0.03
試料-2	0.93 \pm 0.08	0.81 \pm 0.03

注) アメリシウム 243 の回収率は電着操作時の損失も含む。

表 A. 2 全 α 放射能迅速測定のための TRU レジンカラムによる分離条件

溶液	溶液量
試料溶液 (硝酸 (1mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L))	30ml
硝酸 (1mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L)	30ml
塩酸 (9mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L)	20ml
塩酸 (4mol/L) - アスコルビン酸 (0.3mol/L) (溶離液)	30ml

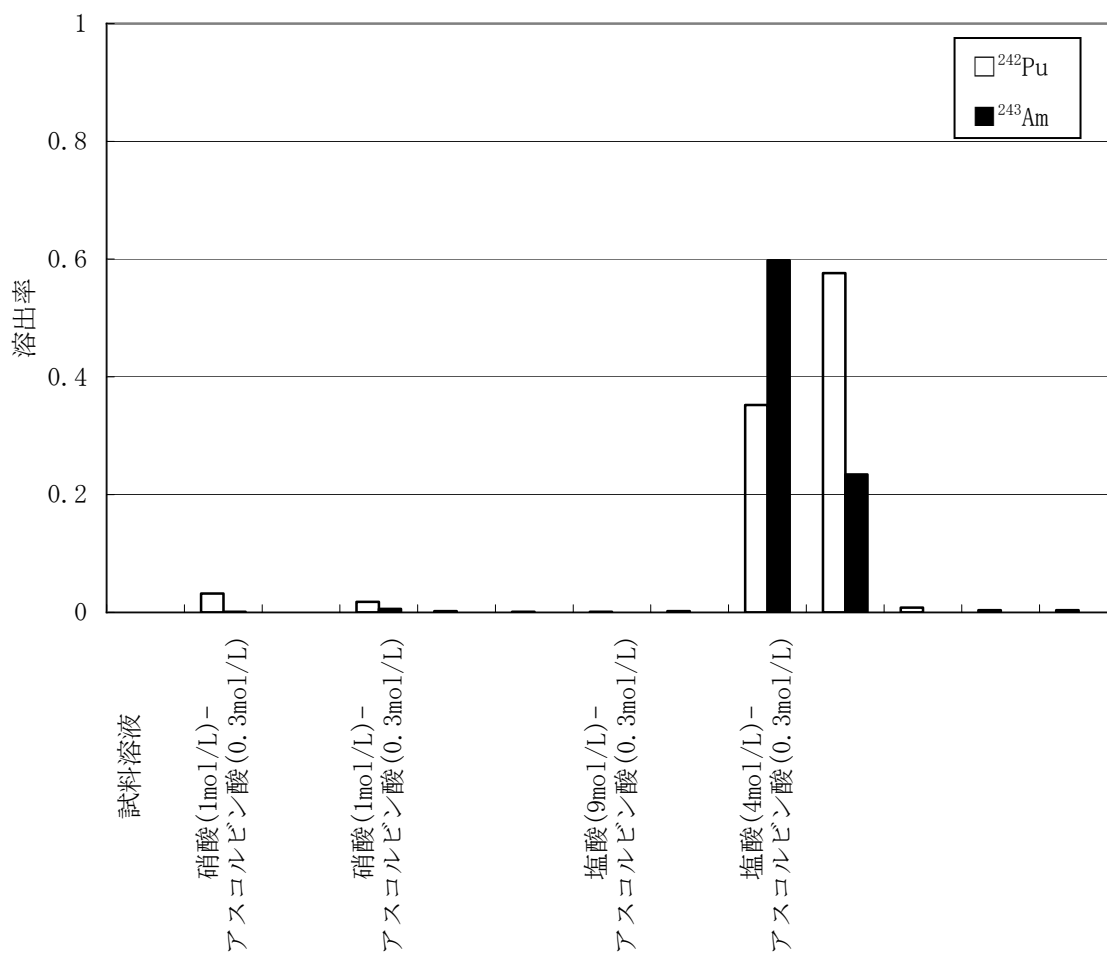


図 A.1 TRU レジンカラムにおけるプルトニウム、アメリシウムの分離

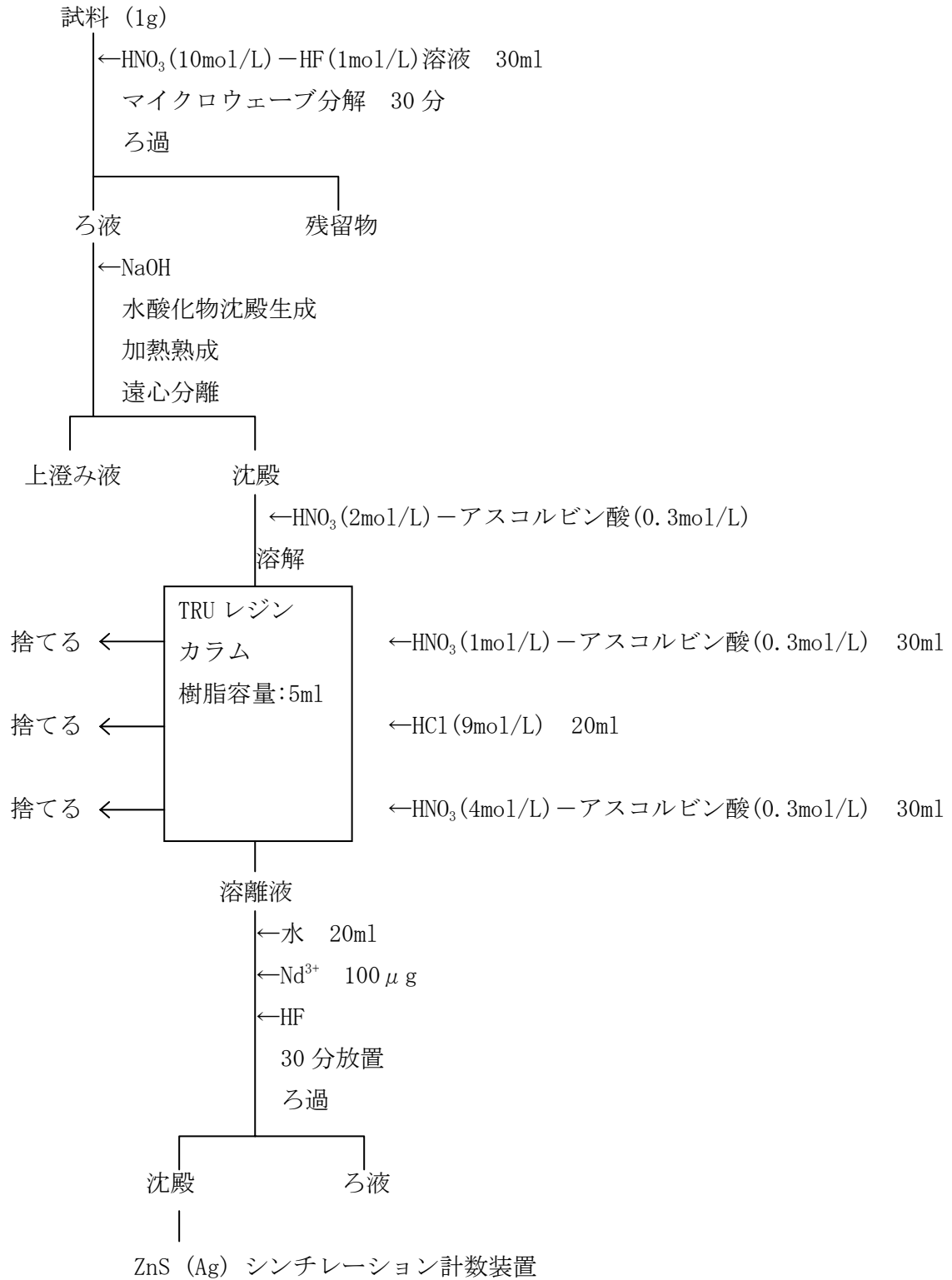


図 A.2 全 α 放射能の迅速分析法（土壌試料）

3. 土壌試料への適用

設定した分離条件が環境試料に適用できることを確認するため、土壌にプルトニウム 242 を添加して分離後、回収量を測定した。なお、アメリカシウムについては希土類元素が混入し正確な定量が難しいためプルトニウムのみを対象とした。

(1) 方法

土壌 1g にプルトニウム 242 を 1dpm 添加し、硝酸(10mol/L)－フッ化水素酸(1 mol/L) 30ml を加えてマイクロウェーブ分解装置で抽出後、ろ過した。ろ液に水酸化ナトリウムを加え水酸化物沈殿を生成後、遠心分離した。沈殿を硝酸(2mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L) 30ml で溶解し、TRU レジンカラムを用い図 A.2 の条件で分離し、分離液中のプルトニウム 242 を ICP-MS で定量した。

(2) 結果

プルトニウム 242 の回収率を表 A.3 に示す。

土壌試料のプルトニウムの回収率は、ほぼ 100%を示した。このことから、水酸化物沈殿操作と TRU レジンカラム分離操作を通じて、プルトニウムの損失は殆どなく、環境試料に適用できる分離法であることを確認した。

表 A.3 土壌試料からのプルトニウムの回収率

試料	プルトニウム 242 の回収率 (ICP-MS)
試料-1	1.10±0.10
試料-2	1.11±0.10
試料-3	0.94±0.10

4. IAEA-135 への適用(プルトニウム価数調整操作の追加)

本分離法を標準試料の海底堆積物 IAEA-135 に適用した結果、推奨値より 10～20%低い値を得た。このため、フッ化ネオジム沈殿を溶解し ICP-MS でプルトニウム 239、プルトニウム 240 を定量するとともに、ろ液についても再度フッ化ネオジム沈殿を生成し全 α 放射能を測定した。結果を表 A.4 に示す。

フッ化ネオジム沈殿を溶解し ICP-MS で定量したプルトニウム 239+240 の結果は、推奨値に対して 30%程度低い値を示した。また、ろ液中には α 放射能は殆ど検出されなかった。

このことから、TRU レジンカラム分離溶液においてプルトニウムの 3 価への酸化状態調整が不完全であり、カラム分離時に損失した可能性が考えられる。このため、試料抽出液に亜硝酸ナトリウムを加えてプルトニウムを 4 価に調整する操作を加えて、再度 IAEA-135 の分析を行った。結果を表 A.4 に示す。

プルトニウムを 4 価に調整する操作を加えて IAEA-135 の分析を行った結果は、添加値と一致した。この結果から、プルトニウムを 4 価に調整する操作を加えることとした。

表A.4 亜硝酸ナトリウム処理の有無によるIAEA-135の全 α 放射能分析結果

亜硝酸ナトリウム 処理操作の有無	分析供試量	沈殿		ろ液 ²⁾
	(g)	全 α 放射能 (Bq/kg)	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu ¹⁾ (Bq/kg)	全 α 放射能 (Bq/kg)
無し	1	462 \pm 19	167 \pm 6	—
	1	410 \pm 17	141 \pm 6	—
	1	481 \pm 20	167 \pm 7	6 \pm 1
	1	432 \pm 20	139 \pm 4	12 \pm 1
	1	477 \pm 21	147 \pm 6	12 \pm 1
	平均	446 \pm 31	154 \pm 14	10 \pm 3
有り	1	566 \pm 26	—	—
	1	583 \pm 27	—	—
	1	604 \pm 25	—	—
	平均	584 \pm 19		
(推奨値)		574 (557-596)		
		²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am
		43 (41.6-45.0)	213 (205-226)	318 (310-325)

1) 硝酸を加え加熱溶解後ICP-MSで定量した。

2) ろ液を蒸発乾固し、ネオジム担体を加えて再度フッ化物沈殿を生成した。

解説 B 全 α 放射能測定試料の調製法

TRU レジンカラムによりプルトニウム等を分離・精製した溶離液（塩酸(4mol/L)－アスコルビン酸(0.3mol/L)20ml）から α 線計測試料を調製する方法として、迅速性を重視しプルトニウム等をフッ化ネオジム沈殿に共沈させる方法（塩酸酸性溶液にネオジム担体とフッ化水素酸を加え、プルトニウム、アメリカシウム等をフッ化ネオジム沈殿に共沈させる方法）を検討した。

1. ネオジムの添加量とアメリカシウムの回収率

(1) 検討方法

塩酸(1mol/L) 10ml にアメリカシウム 241(20dpm)と 0.1～1.0mg のネオジムを加え、フッ化ネオジム沈殿を生成した。沈殿をろ紙上にマウント後、ZnS (Ag) シンチレーション計数装置を用いて α 線を計測した。

(2) 結果

得られたアメリカシウム 241 の回収率を表 B.1 に示す。

ネオジム量が 0.1 から 1.0mg の範囲でアメリカシウム 241 はほぼ 100%フッ化物沈殿に共沈した。

2. 塩酸濃度とアメリカシウムの回収率

(1) 検討方法

塩酸(1～5mol/L) 10ml にアメリカシウム 241(20dpm)と 0.1mg のネオジムを加え、フッ化ネオジム沈殿を生成した。沈殿をろ紙上にマウント後、ZnS (Ag)シンチレーション計数装置を用いて α 線を計測した。

(2) 結果

得られたアメリカシウム 241 の回収率を表 B.2 に示す。

アメリカシウム 241 回収率は塩酸濃度が 2mol/L まではほぼ 100%であったが、塩酸濃度が 3mol/L 以上になると減少する傾向が見られた。

3. 沈殿生成液量とアメリカシウムの回収率

(1) 検討方法

塩酸(1mol/L) 10～150ml にアメリカシウム 241 と 0.1mg のネオジムを加え、フッ化ネオジム沈殿を生成した。沈殿をろ紙上にマウント後、ZnS (Ag)シンチレーション計数装置を用いて α 線を計測した。

(2) 結果

得られたアメリカシウム 241 の回収率を表 B.3 に示す。

塩酸(1mol/L) 10～150ml ではアメリカシウム 241 の回収率に大きな差は見られなかった。

表 B.1 ネオジムの添加量とアメリシウムの回収率

ネオジム添加量	²⁴¹ Am回収率
0.1 mg	0.99±0.03
0.2 mg	0.97±0.04
0.3 mg	1.06±0.04
0.5 mg	1.02±0.04
1.0 mg	1.01±0.03

表 B.2 塩酸濃度とアメリシウムの回収率

塩酸濃度	²⁴¹ Am回収率
1mol/L	0.99±0.03
2mol/L	1.00±0.04
3mol/L	0.93±0.04
4mol/L	0.92±0.04
5mol/L	0.89±0.03

表 B.3 沈殿生成液量とアメリシウムの回収率

溶液量	²⁴¹ Am回収率
10ml	0.99±0.03
20ml	0.94±0.04
50ml	0.87±0.03
100ml	0.92±0.03
150ml	0.94±0.04

4. フッ化ネオジム共沈操作における塩酸及びアスコルビン酸濃度の検討

フッ化ネオジム共沈操作において 3mol/L 以上の塩酸溶液ではアメリシウムの回収率がやや低くなる傾向が見られた(表 B.2 参照)。TRU レジンカラム分離によるアメリシウム、プルトニウム溶離液は、塩酸(4mol/L)ーアスコルビン酸 30ml である。これまで、フッ化ネオジム共沈操作を行うためにこの溶液中のアスコルビン酸を分解ー蒸発乾固し、塩酸(1mol/L) 10ml に溶解してきた。この操作は 3~4 時間を要するため所要時間短縮を目的として、溶離液から直接フッ化ネオジム沈殿を生成する方法を検討した。

プルトニウム 242、アメリシウム 243 を用い、アスコルビン酸濃度の異なった溶液及びその希釈溶液についてフッ化ネオジム沈殿を生成し、そのろ液中のプルトニウム 242、アメリ

シウム 243 を定量した。結果を表 B. 4 に示す。

表 B. 4 の結果から、プルトニウムはフッ化ネオジム沈殿と共沈するが、アメリシウムは塩酸(4mol/L)溶液では5~20%が溶液中に残る結果が得られた。

TRU レジンカラムの溶離液が塩酸(4mol/L)ーアスコルビン酸(0.3mol/L)溶液 30ml であり、また回収率補正ができないことから、本分析法では、溶離液を蒸発乾固・分解後塩酸(1 mol/L) 10ml に溶解し、フッ化物沈殿を生成することとした。

5. 本法によるアメリシウムの回収率

本分析法の α 線計測試料の調製操作における回収率を確認するため、アメリシウム 243 を添加してフッ化ネオジム沈殿を生成後マウントした 10 個の試料を調製し、ZnS(Ag)シンチレーション計数装置を用いて回収率を求めた。結果を表 B. 5 に示す。

本法で α 線計測試料を 10 試料調製したアメリシウムの回収率は、85-104%の範囲であり、平均 93%であった。この操作は、生成した沈殿が目に見えなく本分析法において α 核種が損失する可能性が最も高い操作である。

全 α 放射能分析法では、トレーサーを添加できないことから、化学回収率を補正することが難しく、本分析法においても補正を行っていない。このため、本分析法においては上記の結果等から判断すると、その定量値は 10%程度低くなる。

表 B. 4 フッ化物沈殿操作における溶液組成の影響

調製溶液の組成	プルトニウム			アメリシウム		
	²⁴² Pu添加量	ろ液中の ²⁴² Pu	ろ液中のNd	²⁴³ Am添加量	ろ液中の ²⁴³ Am	ろ液中の ²⁴³ Am
塩酸(1mol/L) 10ml+アスコルビン酸 50mg	2mBq	0.8±0.4 %	0.3%	0.25Bq 0.25Bq	94±5 %	0.3±0.2 %
	2mBq	0.6±0.4 %	0.2%		94±4 %	0.7±0.2 %
塩酸(4mol/L) -アスコルビン酸(0.3mol/L)30ml → 蒸発乾固・分解→ 塩酸(1mol/L) 10ml+アスコルビン酸 50mg	2mBq	1.0±0.2 %	0.1%			
	2mBq	0.4±0.3 %	0.1%			
塩酸(4mol/L) -アスコルビン酸(0.3mol/L)30ml	2mBq	1.5±0.1 %	1.1%	0.25Bq 0.25Bq	70±4 %	12.7±0.6 %
	2mBq	1.3±0.3 %	0.3%		90±4 %	9.2±1.0 %
塩酸(4mol/L) -アスコルビン酸(0.3mol/L)30ml 水で2倍に希釈	2mBq	4.1±0.3 %	0.1%	0.25Bq 0.25Bq	77±4 %	5.9±0.8 %
	2mBq	1.3±0.4 %	0.1%		85±4 %	3.7±0.9 %
塩酸(4mol/L) -アスコルビン酸(0.3mol/L)30ml 水で4倍に希釈	2mBq	5.1±0.6 %	1.1%	0.25Bq 0.25Bq	81±3 %	5.8±1.0 %
	2mBq	2.8±0.3 %	0.9%		76±4 %	3.9±0.5 %

- 1) ネオジウム添加量:100 μg
- 2) フッ化水素酸添加量:溶液量の10%
- 3) 定量方法 プルトニウム:ICP-MS, アメリシウム:ZnS(Ag)シンチレーション計数装置による全α放射能測定
- 4) ろ液中のアメリシウムは、ろ液を蒸発乾固・分解後、塩酸(1mol/L)10 mlに溶解し、アスコルビン酸50 mgとネオジウム、フッ化水素酸を加えてフッ化物沈殿を生成し、全α放射能を計測した。

表 B.5 α 線計測試料の調製操作におけるアメリシウムの回収率

試料番号	^{243}Am 回収率
1	1.00 ± 0.02
2	0.90 ± 0.03
3	0.85 ± 0.03
4	0.85 ± 0.03
5	1.02 ± 0.02
6	0.88 ± 0.02
7	1.04 ± 0.03
8	0.95 ± 0.02
9	0.91 ± 0.02
10	0.96 ± 0.02
平均	0.93 ± 0.07

解説 C 全 α 放射能測定機器の計数効率と検出下限値

1. 全 α 放射能測定機器の計数効率とバックグラウンド計数率

全 α 放射能測定に用いる ZnS (Ag) シンチレーション計数装置との効率とバックグラウンド計数率の一例を表 C.1 に示す。

表 C.1 全 α 放射能測定機器計数効率とバックグラウンド計数率

ZnS (Ag) シンチレーション計数装置		2 π ガスフロー計数装置	
計数効率 (U_3O_8)	バックグラウンド	計数効率 (U_3O_8)	バックグラウンド
0.42 \pm 0.01	0.0022 \pm 0.0002cps	0.30 \pm 0.01	0.0002 \pm 0.0005cps

計数効率は ZnS (Ag) シンチレーション計数装置を用いる方がやや高いが、両者の間に大きな違いはなく、全 α 放射能測定にはどちらの測定器を用いても同程度の結果が得られると判断される。なお、フッ化ネオジム共沈法で計測試料を調製する場合には、シリコン半導体検出器を用いる α 線スペクトロメトリーを行うことにより、核種の定量も可能である。

2. 検出下限値

全 α 放射能測定法の検出下限値を、分析試料の種類、分析供試量ともに、また飲食物摂取制限に関する指標と比較して表 C.2 に示す。

表 C.2 全 α 放射能測定法における検出下限値

種類	分析供試量	検出下限値*1		指標*2
		ZnS (Ag)	2 π ガスフロー	
大気浮遊じん	1m ³	0.005Bq/m ³	0.01Bq/m ³	
降下物	0.05m ² 、1日	0.1Bq/m ² /日	0.2Bq/m ² /日	
土壌	1g	5Bq/kg	10Bq/kg	
飲料水	2L	0.002Bq/L	0.005Bq/L	1Bq/kg
牛乳	0.1L	0.05Bq/L	0.1Bq/L	1Bq/kg
葉菜	0.1kg	0.05Bq/kg	0.1Bq/kg	10Bq/kg

*1：測定時間を4時間とし、正味の計数値が計数誤差の3倍のときの値とした。

*2：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）。

対象核種はプルトニウム 238、プルトニウム 239、プルトニウム 240、プルトニウム 242、アメリシウム 241、キュリウム 242、キュリウム 243、キュリウム 244 である。

解説D 液体シンチレーションカウンタを用いた全 α 放射能測定法

液体シンチレーション測定法は、液体状での測定が可能のため測定試料の調製が容易で、しかも α 線及び β 線に対して高い計数効率を有している。また最近の液体シンチレーションカウンタは、 β 線や γ 線(バックグラウンド計数となる)が混在する中から、 α 線のパルスのみを取り出し測定する α/β 波形弁別機能を持っている。

そこで、既に本調査研究で確立した環境試料中の全 α 放射能(プルトニウム、アメリシウム及びキュリウム同位体)迅速分析法により分離・精製した試料溶液に、波形弁別用乳化シンチレータを加えて測定試料を調製し、液体シンチレーションカウンタを用いて全 α 放射能を測定する方法を検討した。検討方法及び結果を以下に記す。

1. 測定試料の調製

J. A. Sanchez-Cabeza(参考文献①)らの調査結果に基づき、いくつかの市販乳化シンチレータの中から、 α/β 線パルスの分離性能が高く、測定試料中に試料水を約50%まで導入でき、かつ、最も α 線測定領域のバックグラウンドが低いと評価されたワラック社製 Optiphase HiSafe 3を選定した。

また、測定容器は、試料溶液をホットプレート上で加熱、乾固する必要があるため、一般的な低カリガラス製バイアル(容量20ml)を用いることとした。

測定試料は最終的に塩酸溶液とし乳化シンチレータと混合するが、その塩酸濃度については0.1~1mol/Lとするのが一般的である(参考文献②、③、④及び⑤)。また、文部科学省放射能測定法シリーズ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」によれば、塩酸(1mol/L) 5mlに溶解することとしている。しかし、塩酸(1mol/L) 5mlにOptiphase HiSafe 3を15ml加えた場合(含水率25%)、混合直後に試料が白濁する現象が見られたこと、また塩酸濃度が高くなるとクエンチングの度合いが増し α/β 波形弁別にとって支障が生じる可能性があったことから、塩酸(0.1mol/L)に溶解することとした。測定試料の調製法を図D. 1に示す。

本法は、簡便に測定試料を調製することができるが、試料溶液をホットプレート上で乾固する操作に時間がかかるため、分離・精製後測定試料調製まで約2.5時間を要することが判った。

2. α 線に対する計数効率の確認

アメリシウム241及びプルトニウム242標準溶液から、各々約10dpmを低カリガラス製バイアルに分取し、一旦乾固した後、塩酸(0.1mol/L)溶液5mlに溶解し、乳化シンチレータ(Optiphase HiSafe 3)15mlを加え、液体シンチレーションカウンタ(ワラック社製1220クワンタラス)を用いて1000分間測定した。 α 線のピーク領域を確認すると共に正味計数率(cpm)を求め、添

加放射能(dpm)で除して計数効率を求めた。アメリカシウム241及びプルトニウム242の計数効率を表D. 1に示す。これら2核種の α 線ピーク領域は、アメリカシウム241の場合550~710チャンネル、プルトニウム242の場合550~670チャンネルの範囲にあり、正味計数率と添加放射エネルギーから求めた計数効率はほぼ100%であった。

また、この結果から、プルトニウムとアメリカシウムいずれも塩酸(0.1mol/L) 5mlで溶解できることが確認できた。

3. α/β 波形弁別条件の最適化

本分析法ではプルトニウム、アメリカシウム及びキュリウム同位体を分離・精製した後に測定試料とするため、プルトニウム241以外の β 線放出核種は存在しない。また、このプルトニウム241の β 線最大エネルギーは21keVと低いため、スペクトル上でのウィンドウ幅の設定だけで α 線と β 線を分別することも十分可能である。しかしながら、 α 線と β 線によるパルスの減衰時間が異なる(図D. 2参照)ことを利用する α/β 波形弁別法により、 α 線の測定時に β 線に起因するバックグラウンドの低減化が可能と考えられるため、両者を弁別する最適条件を検討した。

この手法は、液体シンチレータの発光が減衰時間の短い成分と長い成分からなり、 α 線では長い成分が電子(β 線、二次電子)より多いため、波形整形を行った出力パルスが α 線パルスと β 線パルスで異なった波形をもつことを利用した方法である。検討に用いた液体シンチレーションカウンタ(ワラック社製1220クワンタラス)では、 α/β パルスシエーブアナライザ(PSA)機能と呼ばれる。

検討用測定試料は、標準試料であるIAEA-135海底堆積物1gから分離・精製した溶液(α 核種としてプルトニウム238、プルトニウム239、プルトニウム240、アメリカシウム241及び β 核種であるプルトニウム241を含む)を、先の図D. 1に示す方法に従って調製し、模擬的な α/β 混合線源として用いた。この α/β 混合線源とブランク試料をセットにして α/β 波形弁別のための減衰時間の指定値(PSAレベル)の設定を10から110まで変化させて各々200分間ずつ測定し、 α 線ピーク領域(550~710チャンネル)におけるそれぞれの計数率の変化を調べた。

減衰時間の指定値(PSAレベル)の変化に伴う、 α 線ピーク領域における α/β 混合線源及びブランク試料の α 線ピーク領域(550~710チャンネル)の計数率を図D. 3に示す。PSAレベルが、10から95までは α/β 混合線源の正味計数率はほぼ一定(約24cpm)であり、95を超えると次第に減少する傾向が認められた。また、ブランク試料の計数率(バックグラウンド計数率)はPSAレベルの増加と共に次第に減少する傾向が見られた。この結果を基に、減衰時間の指定値(PSAレベル)を今回は75に設定した。この条件におけるバックグラウンド計数率は、0.13cpmであり、本機能を用いない場合(1.38cpm)に対して、ほぼ1/10に減少した。この条件で測定した α/β 混合線源の α 線スペクトル例(α/β 弁別の有無)を図D. 4(1)及び図D. 4(2)に示す。

4. 検出下限値の比較

α 線に対する計数効率100%とし、 α/β 波形弁別を適用した場合のバックグラウンド計数率0.13cpm、適用しない場合のバックグラウンド計数率を1.38cpmとした場合の検出下限値を求めるとともに他の全 α 放射能測定法と比較した。

測定試料あたりの検出下限値の測定時間に対する変化を図D.5に示す。また、分析対象試料毎の検出下限値を試料の種類、分析供試量と共に、また飲食物摂取制限に関する指標と比較して表D.2に示す。 α/β 波形弁別を用いない場合は、ZnS(Ag)シンチレーション計数装置及び 2π ガスフロー計数装置を用いた測定法とほぼ同程度の検出下限値が得られたが、この機能を用いた場合には、検出下限値がほぼ1/3に低下することが判った。

5. 標準試料への適用

本法を標準試料「IAEA-135海底堆積物」に適用し、その分析結果を推奨値と比較した。なお、測定時間は250分(50分×5回)とした。分析結果を表D.3に示す。

3回並行分析の平均値は推奨値に比べ6%低い値であったが、変動係数が約30%と大きく、結果にばらつきが認められた。この原因は、測定試料の調製等分析工程での目的核種の一部損失があったものと考ええる。

6. まとめと今後の検討課題

液体シンチレーションカウンタを用いた全 α 放射能測定法が迅速分析法として有効性があることが判った。すなわち、核種に関する情報は得られないが、測定試料の調製が容易であり、 α/β 波形弁別法を適用することにより、ZnS(Ag)シンチレーション計数装置及び 2π ガスフロー計数装置に比べ、さらに1/3程度低レベルまで定量できるためである。

標準試料の分析結果にばらつきが認められることから、今後、化学分離条件等について引き続き検討を行う必要があると考える。

7. 参考文献

本検討を行う上で参考とした文献を以下に記す。

① J. A. Sanchez-Cabeza and Ll. Pujol

A rapid method for the simultaneous determination of gross alpha and beta activities in water samples using a low background liquid scintillation counter, Health Physics, Vol.68, No.5, 674-681 (1995)

② T. K. Ikaheimonen

Measurement of ^{241}Pu in environmental samples

- Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol.243, No.2, 535-541(2000)
- ③ Jussi Paatero and Timo Jaakkola
Determination of the ^{241}Pu deposition in Finland after the Chernobyl Accident
Radiochimica Acta, 64, 139-144(1994)
- ④ 植頭康裕、宮河直人、片桐裕実、赤津康夫
環境試料中の ^{241}Pu 測定法の開発
動燃技報、No. 101, 75-80(1997)
- ⑤ L. Salonen and H. Hukkanen
Advantages of low-background liquid scintillation alpha-spectrometry and pulse shape analysis in measuring ^{222}Rn , uranium and ^{226}Ra in groundwater samples
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol.226, No.1-2, 67-74(1997)
- ⑥ 石河寛昭
最新液体シンチレーション測定法
南山堂 (1992)
- ⑦ 高橋千太郎、栗原紀夫
シリーズ・バイオサイエンスのためのアイソトープ測定機器、V. 液体シンチレーションカウンタの新しい機能
Radioisotopes, 43, 24-33 (1994)

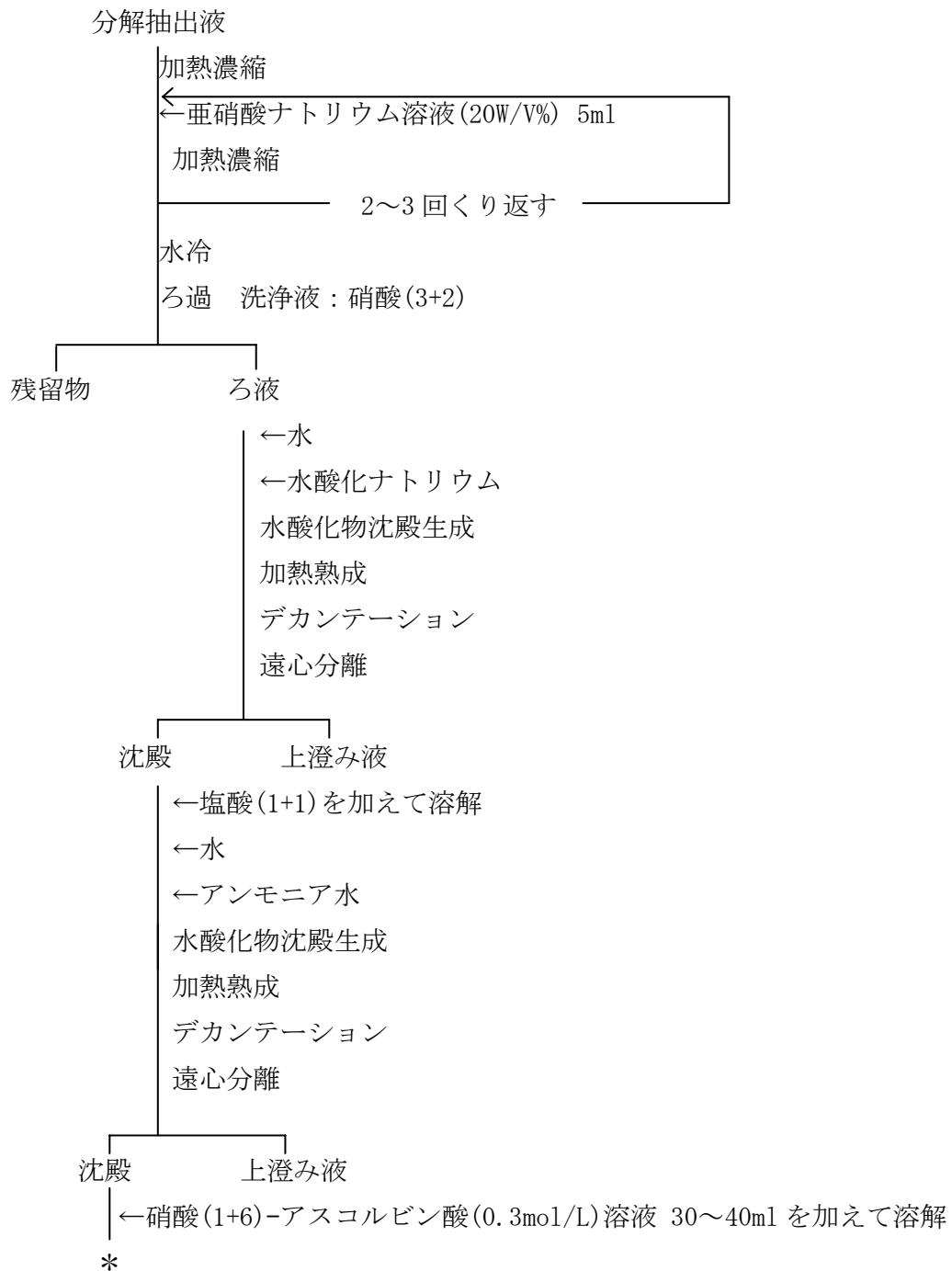


図 D.1 全 α 放射能迅速分析法流れ図 (液体シンチレーションカウンタを用いる方法)

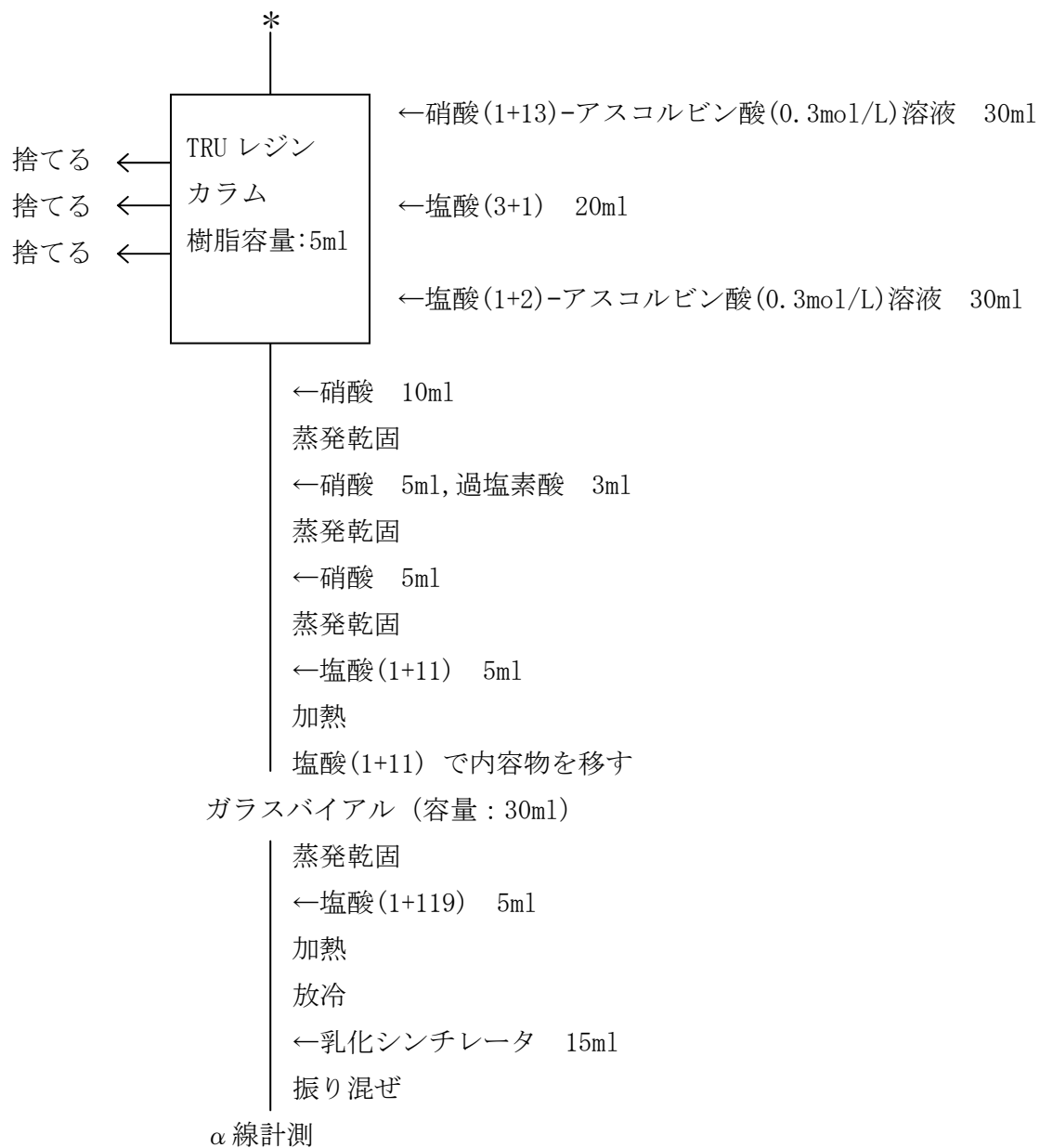


図 D.1 全α放射能迅速分析法流れ図 (液体シンチレーションカウンタを用いる方法)
(つづき)

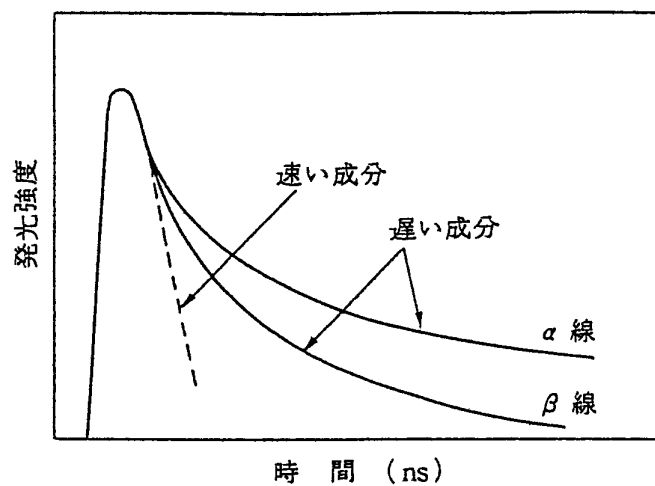


図 D. 2 α/β 波型弁別測定 の原理

α 線によるパルスは β 線のパルスよりも減衰時間が長いので、このパルスの形状を分析し、 α/β 線を波形弁別測定する
参考文献⑥より転写

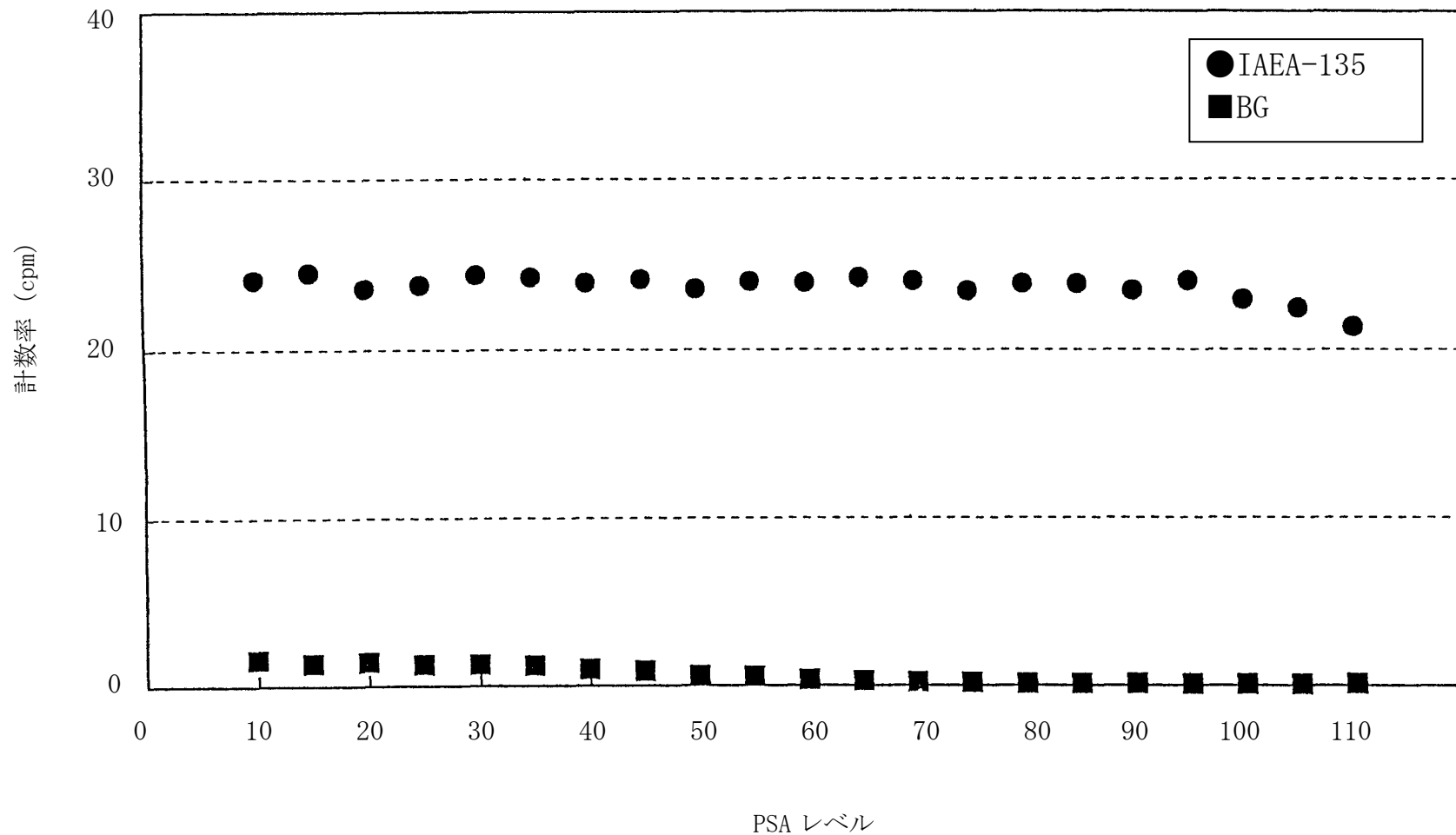
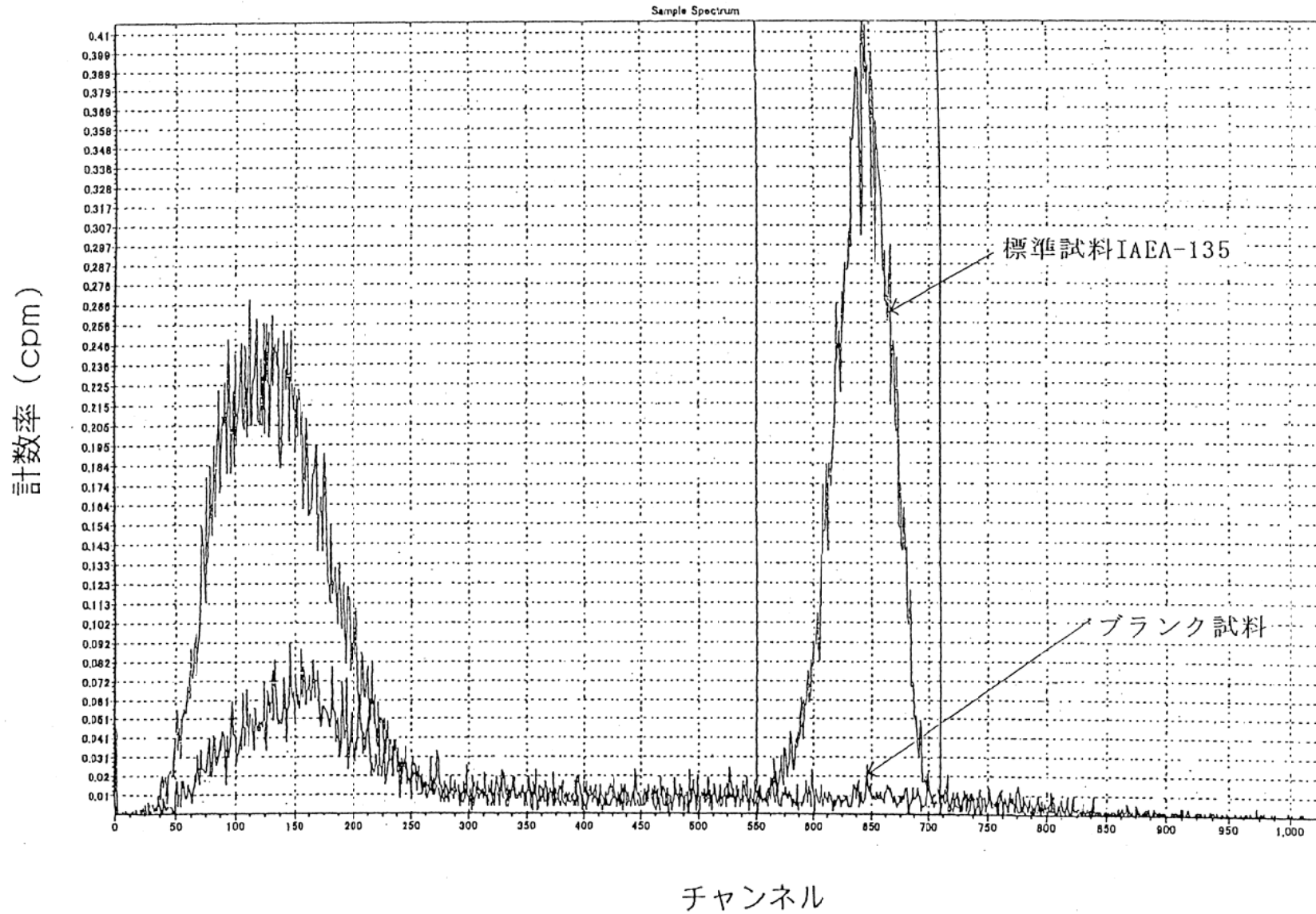
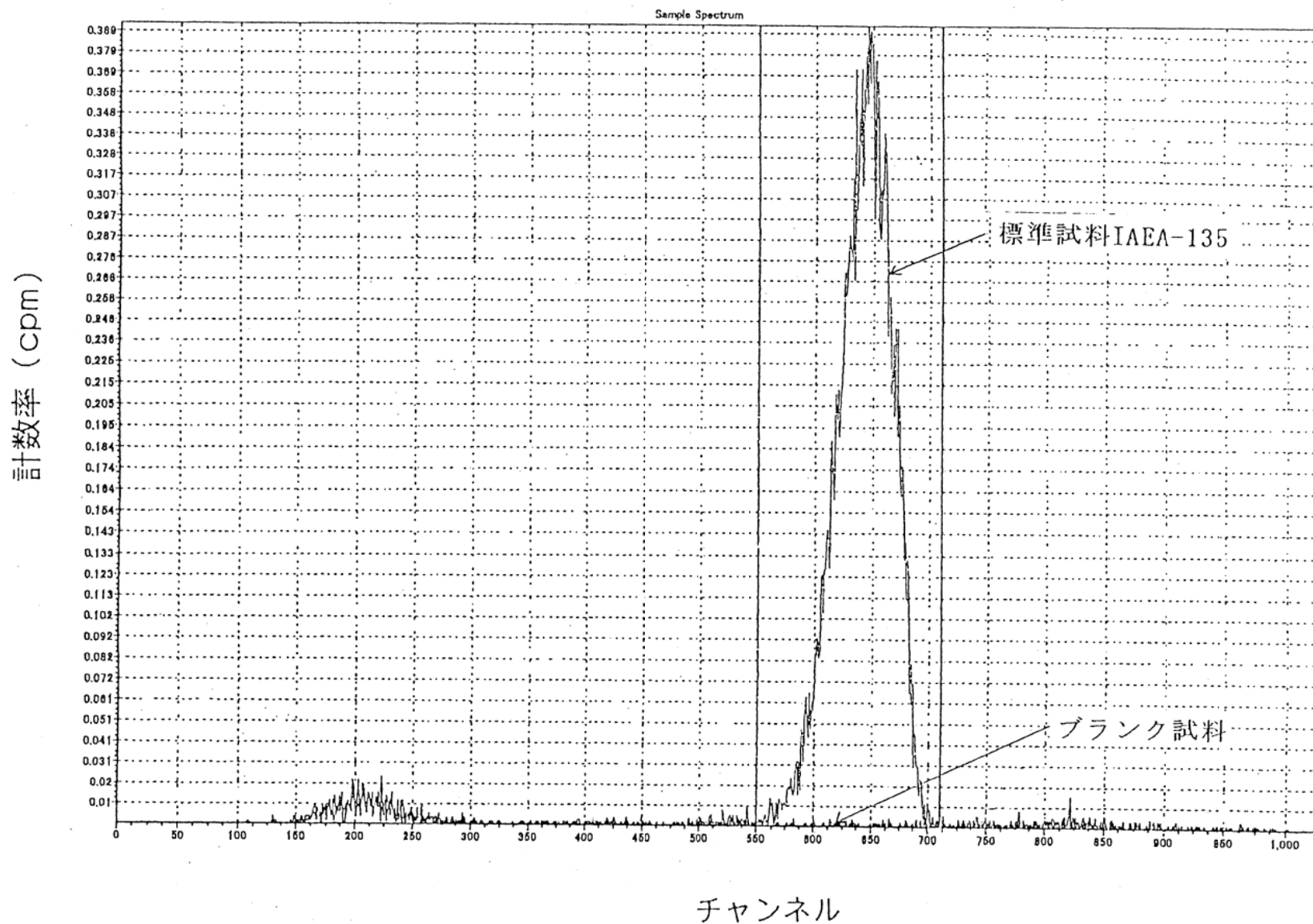


図 D.3 減衰時間の指定値 (PSA レベル) の変化に伴う α ピーク領域の計数率



図D. 4-(1) IAEA135の測定結果 (α / β 弁別無し)



図D. 4-(2) IAEA135の測定結果 (α / β 弁別有り)

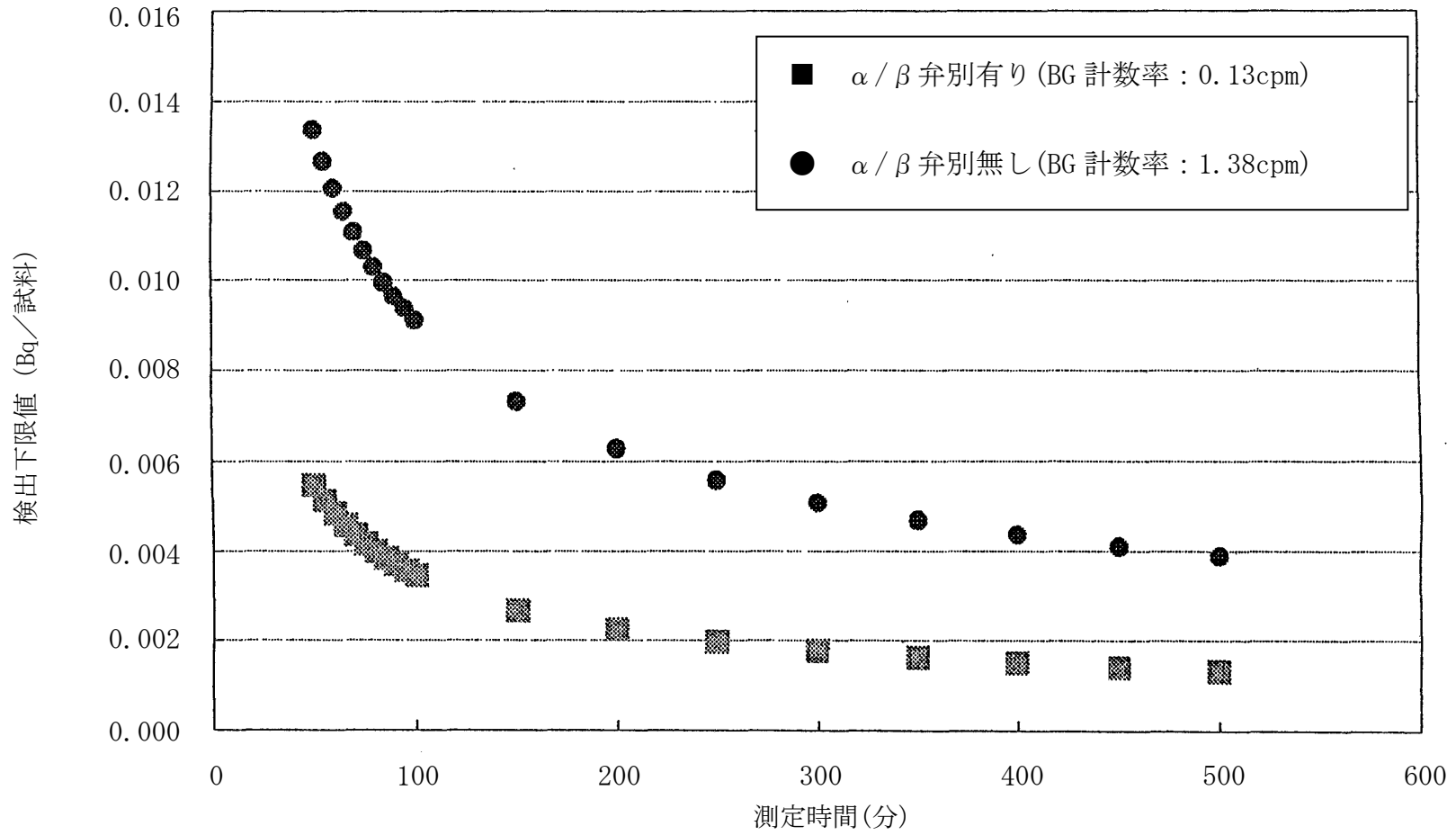


図 D.5 液体シンチレーション測定法による全 α 放射能の検出下限値

表 D.1 アメリシウム 241 及びプルトニウム 242 に対する計数効率

核種	添加量 (dpm)	正味計数率 (cpm)	計数効率 (%)
²⁴¹ Am	9.87	10.245 ± 0.109	103 ± 1.1
²⁴² Pu	8.52	8.298 ± 0.104	97.4 ± 1.2

測定時間：1,000分

表D.2 全α放射能測定法における検出下限値

分析 対象試料	分析供試量	検出下限値*1				指標*2	単位
		ZnS	2πガスフロー	LSC	LSC (α/β)		
大気浮遊 じん	1 m ³	0.007	0.006	0.008	0.003		Bq/m ³
降下物	0.05 m ² , 1日	0.1	0.1	0.2	0.06		Bq/m ² /日
土壌	1 g	7	6	8	3		Bq/kg
飲料水	2L	0.004	0.003	0.004	0.002	1	Bq/kg
牛乳	0.1L	0.07	0.06	0.08	0.03	1	Bq/kg
葉菜	0.1kg	0.07	0.06	0.08	0.03	10	Bq/kg

*1：測定時間を2時間とし、正味の計数値が計数誤差の3倍のときの値とした。

*2：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)

対象核種はプルトニウム238、プルトニウム239、プルトニウム240、プルトニウム242、
アメリシウム241、キュリウム242、キュリウム243、キュリウム244である。

表D.3 標準試料IAEA-135の分析結果

供試量(g)	全 α 放射能 (Bq/kg)	推奨値との比
1.0	477 \pm 6	0.83
1.0	730 \pm 7	1.3
1.0	408 \pm 6	0.71
平均 \pm 標準偏差	538 \pm 170	0.94
(推奨値)	574 (557-596)	
^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
43 (41.6-45.0)	213 (205-226)	318 (310-325)

測定時間 : 250分

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、降水物、水道水、牛乳)に適用した結果を表 E.1 に示す。なお、環境試料のアメリカシウム濃度が低いことから、アメリカシウム 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検討した。

2. 標準試料への適用結果

本法をアメリカシウム 241 濃度既知の標準試料に適用して、得た結果を表 E.2 に示す。

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			全 α 放射能		
		粉末	抽出液	全 α (Bq)*	Bq/試料	添加量との比	放射能濃度
水道水	2L	—	—	—	0.0005 \pm 0.0006	—	0.2 \pm 0.3mBq/L
	2L	0.285g	0.25g 相当	0.308	0.295 \pm 0.016	0.95 \pm 0.05	—
降下物	1L	—	—	—	0.0003 \pm 0.0004	—	0.2 \pm 0.2mBq/L
	1L	0.288g	0.25g 相当	0.309	0.325 \pm 0.016	1.05 \pm 0.05	—
牛乳	灰 1g	—	—	—	-0.0007 \pm 0.0007	—	-0.7 \pm 0.7mBq/g 灰
	灰 1g	—	0.25g 相当	0.144	0.147 \pm 0.009	1.02 \pm 0.06	—
大気浮遊じん	HE40T (2 インチ)	—	—	—	0.0005 \pm 0.0009	—	0.5 \pm 0.9mBq/試料
	HE40T (2 インチ)	0.267g	—	0.154	0.161 \pm 0.008	1.05 \pm 0.05	—

*: ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am を加算した

表 E.2 標準試料への適用結果

試料名	分析供試量 (g)	全 α 放射能 (Bq/kg)
IAEA-135	1	566 ± 26
	1	583 ± 27
	1	604 ± 25
	(推奨値)	574 (557-596) *1
IAEA-375	1	0.6 ± 0.6
	1	2.3 ± 0.5
	1	0.5 ± 0.6
	(推奨値)	0.50 (0.43-0.58) *2
NIST-4354	1	5.2 ± 0.6
	1	5.5 ± 0.6
	1	5.0 ± 0.8
	(推奨値)	5.4 (3.7-6.0) *3

	²³⁸ Pu (Bq/kg)	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu (Bq/kg)	²⁴¹ Am (Bq/kg)
*1	43 (41.6-45.0)	213 (205-226)	318 (310-325)
*2	0.0071 (0.06-0.09)	0.30 (0.26-0.34)	0.13 (0.11-0.15)
*3	0.26 (0.18-0.30)	4.0 (3.3-4.3)	1.1 (0.2-1.4)

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： 海底堆積物 (IAEA-135) *

配布試料： 乾土 5g をポリエチレン容器に分取し、各機関に配布した。

* IAEA-135 のプルトニウムとアメリシウムの推奨値は以下のとおりである。

^{238}Pu	43	(41.6-45.0)	Bq/kg
$^{239+240}\text{Pu}$	213	(215-226)	Bq/kg
^{241}Am	318	(310-325)	Bq/kg
$^{238}\text{Pu}+^{239+240}\text{Pu}+^{241}\text{Am}$	574	(557-596)	Bq/kg

2. 参加機関

青森県環境保健センター、茨城県公害技術センター、核燃料サイクル開発機構東海事業所、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
測定方法	Si 半導体検出器	Si 半導体検出器	ZnS (Ag) 検出器	ZnS (Ag) 検出器
検出器	ORTEC SOLOIST -U0450	ORTEC 576A	ALOKA TGC-511	ALOKA ZDS-551B
計数効率	23-24%	34-39%	22%	44%
測定時間	14,400 秒	20,000 秒	14,400 秒	10,000 秒

4. クロスチェック結果

分析機関	A		B		C		D	
	分析 供試量 (g)	全α放射能 (Bq/kg)	分析 供試量 (g)	全α放射能 (Bq/kg)	分析 供試量 (g)	全α放射能 (Bq/kg)	分析 供試量 (g)	全α放射能 (Bq/kg)
IAEA-135	1	450 ± 12	1	520 ± 8	1	470 ± 12	1	510 ± 10
	1	480 ± 11	1	580 ± 9	1	490 ± 13	1	490 ± 10
	1	440 ± 11	1	510 ± 9	1	460 ± 12	1	520 ± 10
	平均値	460 ± 21	平均値	540 ± 38	平均値	470 ± 11	平均値	510 ± 15

各分析機関の分析結果は、推奨値(5,74Bq/kg) に対して 5~20%低い値であった。これは、化学回収率の補正が行えないことに起因した化学分離過程における損失によるものと判断される。損失の可能性が大きい分離操作は、水酸化物沈殿分離における遠心分離後の上澄み液の除去操作、フッ化物沈殿の生成マウント操作があり、特に後者においては10%程度を損失する可能性が大きい。(詳細は〔解説B〕参照)

これらの原因で、クロスチェックの結果は推奨値に比べてやや低い値となったが、推奨値との差は全てが20%以内であり、平均値は推奨値の90%の値である。

以上のクロスチェック結果から、本法は化学分離操作における損失の補正ができないため、実際の濃度よりも10%程度低い値となるが、その範囲5~20%程度であり、緊急時の迅速分析法として十分適用できるものと判断される。

付 録

付録1 主なプルトニウム、アメリシウム及びキュリウム同位体の核データと比放射能

付表 1.1 プルトニウム、アメリシウム及び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 ・エネルギー・放出率 MeV (%)	比放射能 Bq/g (g/Bq)	主な生成反応
^{236}Pu	2.851 y	α 100%	α 5.721 (30.6) 5.768 (69.3)	1.97×10^{13} (5.08×10^{-14})	$^{235}\text{U}(\alpha, 3n)$ $^{236}\text{Np} \rightarrow$
^{237}Pu	45.2 d	EC 100% α 0.0033%	γ 0.05954(3.3)	4.51×10^{14} (2.22×10^{-15})	$^{235}\text{U}(\alpha, 2n)$ $^{237}\text{Np}(d, 2n)$
^{238}Pu	87.7 y	α 100%	α 5.456 (29.0) 5.499 (70.9)	6.34×10^{11} (1.58×10^{-12})	$^{238}\text{Np} \rightarrow$ $^{242}\text{Cm} \rightarrow$
^{239}Pu	2.411×10^4 y	α 100%	α 5.106 (11.9) 5.144 (17.1) 5.157 (70.8)	2.30×10^9 (4.35×10^{-10})	$^{239}\text{Np} \rightarrow$
^{240}Pu	6564 y	α 100%	α 5.124 (27.1) 5.168 (72.8)	8.41×10^9 (1.19×10^{-10})	$^{239}\text{Pu}(n, \gamma)$
^{241}Pu	14.35 y	β^- 100% α 0.00245%	β^- 0.0208	3.83×10^{12} (2.61×10^{-13})	$^{240}\text{Pu}(n, \gamma)$
^{242}Pu	3.74×10^5 y	α 100%	α 4.858 (23.5) 4.902 (76.5)	1.46×10^8 (6.83×10^{-9})	$^{241}\text{Pu}(n, \gamma)$
^{244}Pu	8.0×10^7 y	α \sim 100% SF \sim 0.1%	α 4.546 (19.4) 4.589 (80.5)	6.78×10^5 (1.47×10^{-6})	$^{243}\text{Pu}(n, \gamma)$
^{241}Am	432.2 y	α 100%	α 5.443 (13.0) 5.486 (84.5)	1.27×10^{11} (7.87×10^{-12})	$^{241}\text{Pu} \rightarrow$
^{243}Am	7370 y	α 100%	α 5.181 (1.4) 5.233 (11.2) 5.275 (87.1)	7.39×10^9 (1.35×10^{-10})	$^{243}\text{Pu} \rightarrow$
^{242}Cm	162.9 y	α 100%	α 6.069 (25.9) 6.113 (74.1)	3.36×10^{11} (2.98×10^{-12})	$^{242}\text{Am} \rightarrow$
^{243}Cm	29.1 y	α 99.7% EC 0.26%	α 5.742 (11.5) 5.785 (73.0) 5.992 (5.68) 6.058 (4.7)	1.87×10^{12} (5.34×10^{-13})	$^{242}\text{Cm}(n, \gamma)$
^{244}Cm	18.1 y	α 100%	α 5.763 (23.6) 5.805 (76.4)	3.00×10^{12} (3.33×10^{-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 全 α 放射能迅速分析法の流れ図

1. 全 α 放射能迅速分析法の概略

付図 2.1 に全 α 放射能迅速分析法の概略を示す。

2. 試料の乾燥－灰化－灰化

それぞれの試料を乾燥－灰化－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)

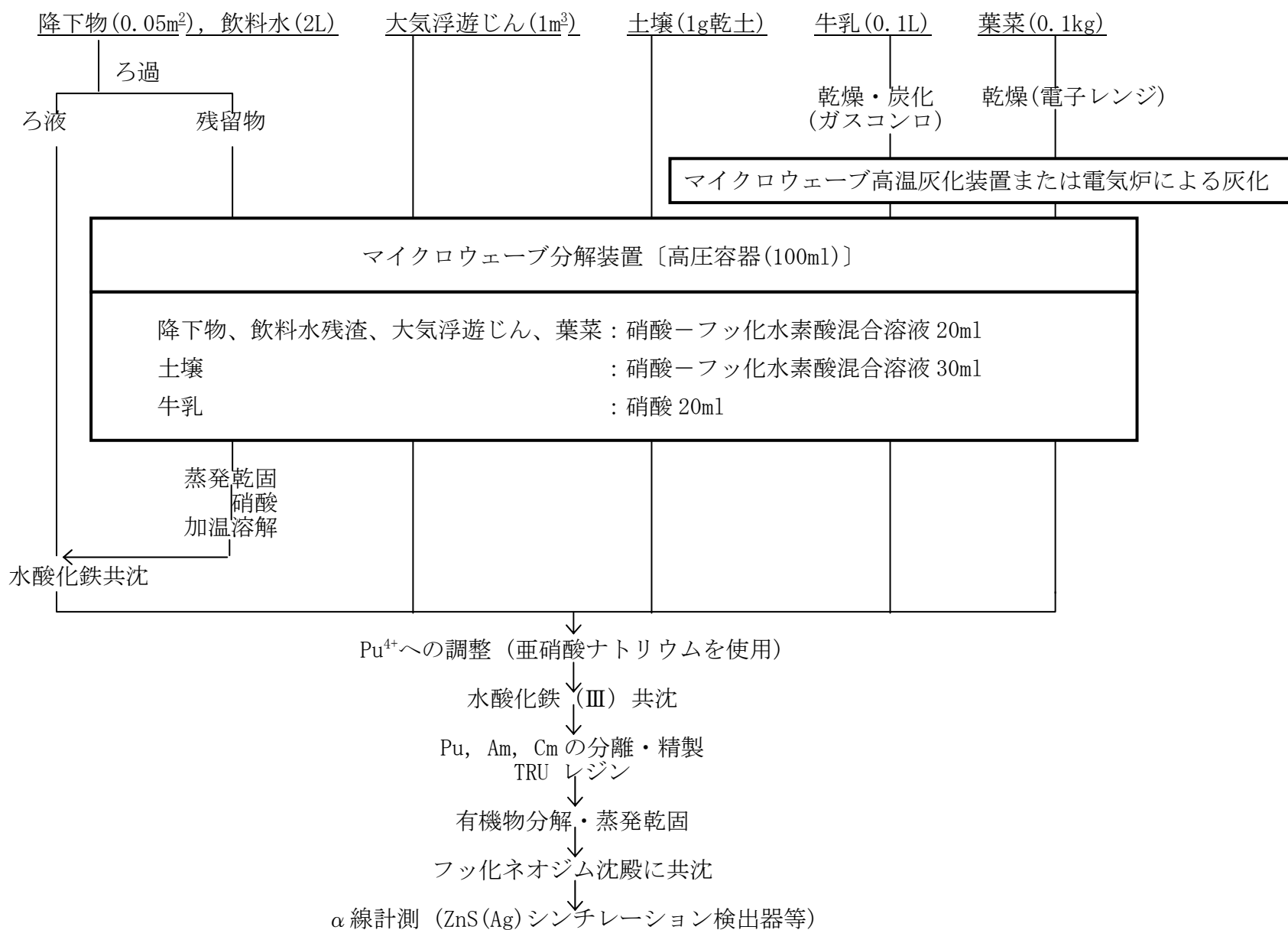
種類	供試量	乾燥・炭化	灰化		
			設定温度 ($^{\circ}$ C)	高周波出力 (W)	加熱時間 (分)
牛乳	100ml	磁製皿、ガスコンロ 加熱時間：40分	250	350	60
			500	500	90
			600	500	45
葉菜	100g	電子レンジ（家庭用） 高周波出力：500W, 加熱時間：25分	250	350	60
			500	500	90
			600	500	45

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。

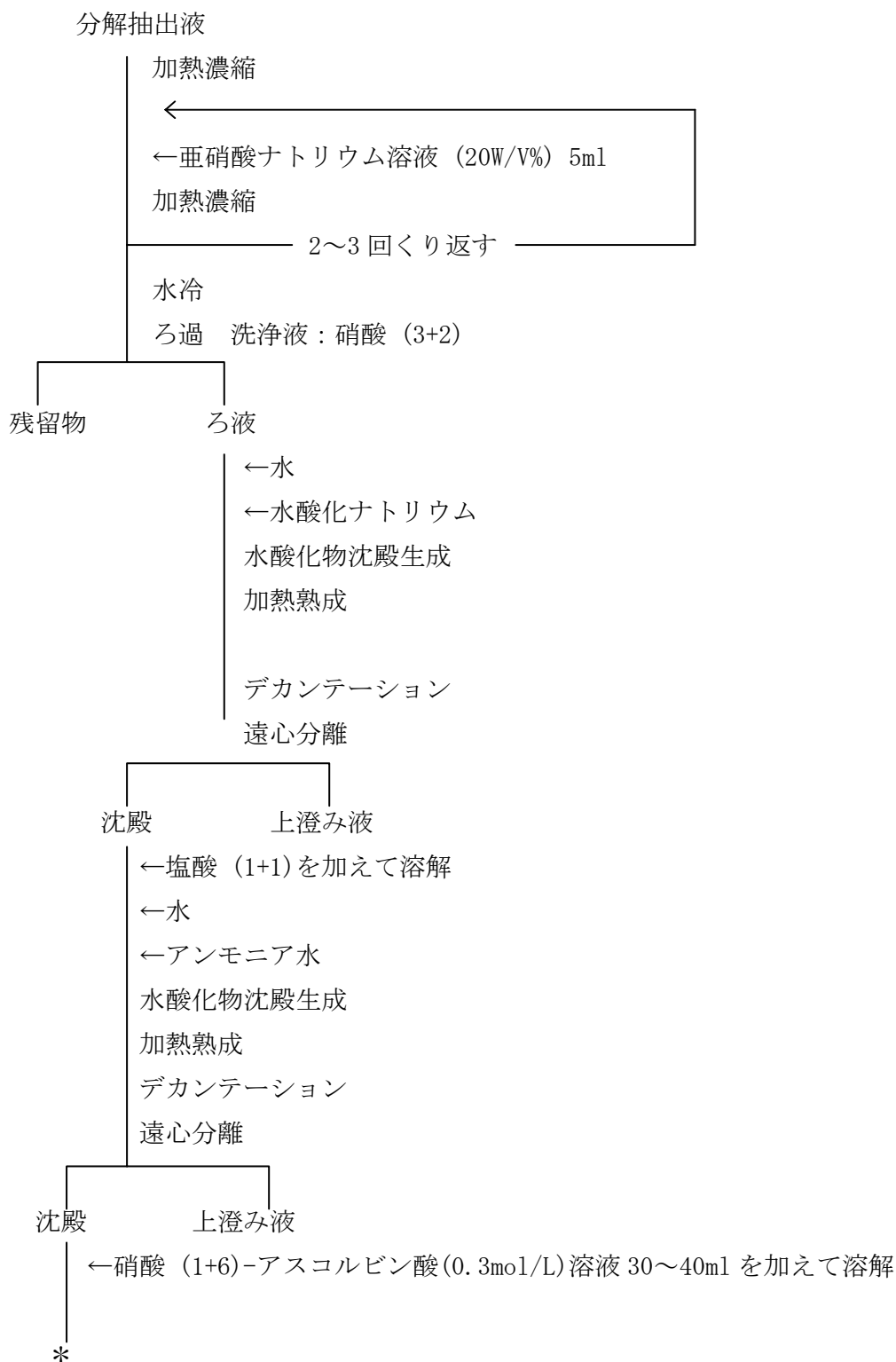
(使用機器：マイルストーン社製 MSL-1200 MEGA)

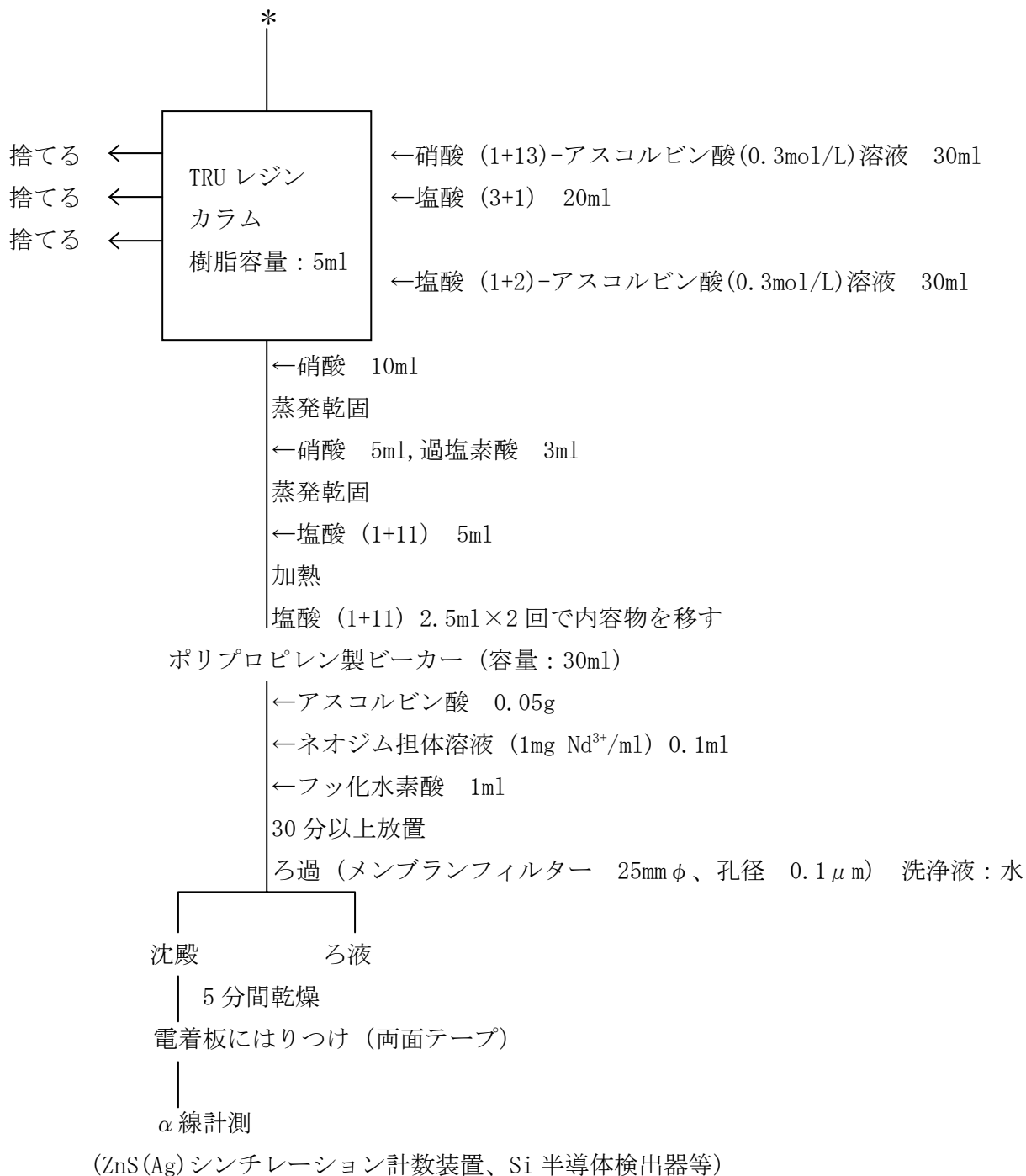
種類	分解容器	分解液	分解条件	
			(W)	(分)
大気浮遊じん	高压分解容器 (容量：100ml)	硝酸－フッ化水素酸	350	10
		混合溶液 20ml	400	20
土壌	高压分解容器 (容量：100ml)	硝酸－フッ化水素酸	350	5
		混合溶液 30ml	400	25
降下物、 飲料水、葉菜	高压分解容器 (容量：100ml)	硝酸－フッ化水素酸	350	10
		混合溶液 20ml	400	20
牛乳	高压分解容器 (容量：100ml)	硝酸 20ml	350	10
			400	20



付図 2.1 全α放射能迅速分析法概略図

4. α線放出核種（プルトニウム、アメリシウム、キュリウム）の分離・精製





付図 2.2 全 α 放射能迅速分析法流れ図
(α 線放出核種の分離・精製)

付録3 参考文献

- (1) E. L. Cooper
Radiological monitoring in the environment at the Chalk River Nuclear Laboratories
AECL-8834, (1985)
- (2) 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)
- (3) 液体シンチレーションカウンタの新しい機能
高橋千太郎、栗原紀夫
RADIOISOTOPES, 43, 24-33 (1994)
- (4) J. Paatero and T. Jaakkola
Determination of the ^{241}Pu Deposition in Finland after the Chernobyl Accident
Radiochimica Acta, 64, 139-144 (1994)
- (5) J. A. Sanchez-Cabeza and Ll. Pujol
A rapid method for the simultaneous determination of gross alpha and beta activities
in water samples using a low background liquid scintillation counter
Health Physics, 68, 5, 674-681 (1995)
- (6) 植頭康裕、宮河直人、片桐裕実、赤津康夫
技術報告 環境試料中 ^{241}Pu 測定法の開発
動燃技報 No. 101, 75-80(1997)
- (7) L. Salonen and H. Hukkanen
Advantages of low-background liquid scintillation alpha-spectrometry and pulse shape
analysis in measuring ^{222}Rn , uranium and ^{226}Ra in groundwater samples
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 226, 1-2, 67-74 (1997)
- (8) J. Moreno, J. J. LaRosa, P. R. Danesi, K. Burns, P. DeRegge, N. Vajda and M. Sinojmeri
Determination of ^{241}Pu by Liquid-Scintillation Counting in the Combined Procedure for
Pu Radionuclides, ^{241}Am and ^{90}Sr Analysis in Environmental Samples
Radioactivity & Radiochemistry, 9, 2, 35-44 (1998)
- (9) 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)
- (10) 桑原 潤、清水 勇、大山幸夫、臼田重和、森 千鶴夫
講座 放射線防護用機器 XV III. 放射線管理計測技術の最近の進歩 放射線管理計測・防
護計測における波形弁別技術の応用
RADIOISOTOPES, 47, 222-232 (1998)

- (11) 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)
- (12) Ingvar Friberg and Raine Vesanen
Detection limits for ^{90}Sr , Pu, Am and Cm in soil and pasture vegetation shortly after a nuclear accident
Applied Radiation and Isotopes, 51, 229-237 (1999)
- (13) 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)
- (14) 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 α -sources
Applied Radiation and Isotopes, 52, 357-364 (2000)
- (15) Riitta Pilviö and Michael Bickel
Actinide separations by extraction chromatography
Applied Radiation and Isotopes, 53, 273-277 (2000)
- (16) T. K. Ikäheimonen
Measurement of ^{241}Pu in environmental samples
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 243, 2, 535-541 (2000)
- (17) 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)
- (18) 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)
- (19) L. Liong Wee Kwong, J. J. La Rosa, S. H. Lee and P. P. Povinec
Liquid scintillation spectrometry of beta-emitters in marine samples
Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 248, 3, 751-755 (2001)
- (20) 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)

- (21) 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)
- (22) D. Bellis, R. Ma, N. Bramall and C. W. McLeod
Airborne emission of enriched uranium at Tokai-mura, Japan
The Science of the Total Environment, 264, 283-286 (2001)
- (23) G. Rosner and R. Winkler
Long-term variation (1986-1998) of post-Chernobyl ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{238}Pu and $^{239,240}\text{Pu}$ concentrations in air, depositions to ground, resuspension factors and resuspension rates in south Germany
The Science of the Total Environment, 273, 11-25 (2001)
- (24) 関 李紀
環境中の長半減期核種の分析
ぶんせき, 12, 684-689 (2001)
- (25) 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)
- (26) Yang Dazhu, Zhu Yongjun and S. Mobius
Rapid Method For Alpha Counting With Extractive Scintillator And Pulse Decay Analysis
<http://ww2.packardinst.com/Packard/Ecom/...sf/LiteratureByFile/ABA-002?opendocument>
App Note:ABA-002
- (27) Anil Thakkar, Michael Fern, Thomas Kupka, and James Harvey, J. Passo, Jr. and James Thomson
A New Approach to Gross Alpha Measurements in Aqueous Samples Using Extraction Chromatography and Liquid Scintillation Counting
<http://ww2.packardinst.com/Packard/Ecom/...sf/LiteratureByFile/ABA-008?opendocument>
App Note:ABA-008
- (28) J. Eikenberg, I. Zumsteg, M. Rüthi, S. Bajo, Paul Scherrer and C. J. Passo
A Rapid Procedure for Screening Transuranium Nuclides in Urine Using Actinide Resin and Low Level α/β -LSC
<http://ww2.packardinst.com/Packard/Ecom/...sf/LiteratureByFile/ABA-009?opendocument>
App Note:ABA-009
- (29) Donald L. Horrocks
Applications of Liquid Scintillation Counting
ACADEMIC PRESS, 276-289 (1974)

○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	橋本 和子	茨城県公害技術センター
磯貝 啓介	(財)日本分析センター	樋口 英雄	(財)日本分析センター
大西 俊彦	日本原燃(株)	平井 保夫	茨城県公害技術センター
津浦 伸次	日本原燃(株)	福嶋 浩人	(財)日本分析センター
沼宮内弼雄	(財)放射線計測協会	森本 隆夫	(財)日本分析センター
野口 正安	元(財)日本分析センター	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
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 γ 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 γ 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 γ 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 |
| 27. 蛍光ガラス線量計を用いた環境 γ 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 |