



環境試料中の ^{241}Pu 測定法の開発

住谷 秀一 林 直美

片桐 裕実 成田 脩

東海事業所安全管理部

資料番号：66-9

Development of an Analytical Method of ^{241}Pu in Environmental Samples

Shuichi Sumiya Naomi Hayashi

Hiroshi Katagiri Osamu Narita

(Health and Safety Division, Tokai Works.)

環境試料（土壌）中の ^{241}Pu の測定法の開発を行った。試料からのPuの分離・精製法には、シェウ酸カルシウム共沈法及び陰イオン交換法を用いた。分離・精製したPu溶液は、 ^{241}Pu 測定用とその回収率補正用とに分割し、 ^{241}Pu は低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタで測定を行い、分析回収率は α スペクトロメトリにより分析当初に添加した ^{239}Pu トレーサを定量することにより求めた。検出下限値は、供試量200g、測定時間500分で0.2Bq/kg・乾土であった。また、検討のために採取した土壌中の ^{241}Pu 濃度は、0.57~4.9Bq/kg・乾土であり、 $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比は約4であった。

1. はじめに

^{241}Pu は、半減期が14.4年と比較的短い軟 β 線放出核種（ β 線最大エネルギー21keV）であり、環境中にも過去の大気圏内核実験の累積寄与として存在し、その放射能量はプルトニウム同位体中最も多い¹⁾。

また、 ^{241}Pu は、アクチニド元素のうち環境中での挙動が注目されている ^{241}Am （半減期433年）と ^{237}Np （半減期 2.14×10^6 年）の親核種でもあり、その環境中における放射能レベルを把握しておくことは、施設影響の評価だけでなく、将来の高レベル放射性廃棄物の処分に係る環境影響評価上も重要である。

従来の ^{241}Pu の放射能測定は、試料中のプルトニウムを分離・精製し、 α 線計測（ α 線スペクトロメトリ）により ^{239}Pu 及び $^{239,240}\text{Pu}$ を測定した後、測定試料を数年間放置して、 ^{241}Pu の娘核種として成長した ^{241}Am の放射能を測定することにより算出されてきた²⁾。しかし、この方法は、 α 線測定に十分な ^{241}Am の成長を持った後測定するため、迅速性に欠ける欠点を持っている。

このため、今回低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ（以下、LSCと略す）を利用し

て、環境試料中の低レベル ^{241}Pu を直接測定する迅速測定法を検討したので、その検討結果と土壌中の ^{241}Pu の測定結果を報告する。

2. 使用機器及びトレーサ

2.1 使用機器

(1) 低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ（LSC）

低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ：LB-1 20ml用（ALOKA社製）

(2) α 線測定装置

表面障壁型シリコン半導体検出器：BR-025-450-100（ORTEC社製）

多重波高分析器（MCA）：8603A-RM型4096チャンネル（CANBERRA社製）

ミニコンピュータ（CPU）：PDP 11/03 5700LX型（DEC社製）

2.2 トレーサ

分析回収率補正用トレーサ

^{239}Pu 溶液：100mBq/ml、添加量：1~2 ml/試料

電着収率補正用トレーサ

 ^{242}Pu 溶液: 58mBq/ml, 添加量: 0.5ml/試料3. ^{241}Pu 分析法の概要

3.1 プルトニウムの分離・精製

本測定で用いたプルトニウム分析法は、動燃でこれまで実施してきた環境試料中のプルトニウム分析法⁴⁾と HAKANEN らによるプルトニウム分析法⁵⁾とを組み合わせたものである。今回、分析対象とした土壌の分析手順を図 1 に示す。

供試量は、 ^{241}Pu の β 線測定及び環境中での濃度並びに本測定法の特色である分割測定法を考慮し、土壌 200g を用いた。

分析は分析回収率補正用トレーサとして ^{242}Pu を試料に添加した後、硝酸浸出を行った。その後、シュウ酸カルシウム共沈法⁶⁾により試料中に多量に含まれている鉄やリン酸塩等の妨害元素の除去を行った。次に、陰イオン交換法により、プルトニウムを精製・分離し、その溶液を ^{241}Pu 測定用とその分析回収率補正用に二分割 (^{241}Pu 測定用: 分析回収率補正用 = 3 : 1) した。

3.2 ^{241}Pu 測定用試料の調製

^{241}Pu 測定用として分割した溶液は、蒸発乾固した後、低トリチウム水で調製した 1 N HCl 1 ml で溶解し、20ml ポリエチレン製バイアルに移した。そ

の後、バイアルにシンチレータ (アクアゾル II : NEW ENGLAND NUCLEAR 社製) 19ml を入れ、よく振とうした後、冷暗所 (LSC 内) で一晚放置し、測定用試料とした。また、B.G.測定用試料は、1N HCl 1ml とシンチレータ 19ml をポリエチレン製バイアルに入れ、測定用試料と同様に調製した。

3.3 分析回収率補正用試料の調製

^{241}Pu 分析回収率補正用として分割した溶液は、電着収率補正用トレーサとして ^{242}Pu を添加した後、蒸発乾固した。次に、希硫酸 (2 N) 10ml で溶解した後、アンモニア水を加え、pH 2 に調整しステンレス板に電着した。電着は、1 アンペアで 2 時間行った。

4. 測定法

4.1 ^{241}Pu の測定

^{241}Pu の測定は、 ^{241}Pu とほぼ同様の β 線最大エネルギーを持つ ^3H (18.6keV) の測定用チャンネル (H チャンネル) を用いて行った。

測定条件は、H チャンネルにおいて ^{241}Pu のスペクトルの測定を行い、 ^{241}Pu のスペクトルの 95% 以上が測定できるようにウィンド幅 (0.5~6.5) を設定した。なお、H チャンネルにおいて、実試料中に存在する α 線放出プルトニウム ($\text{Pu}(\alpha)$) の影響をプルトニウム同位体混合線源 (^{241}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu) を用いて検討を行い、 $\text{Pu}(\alpha)$ の影響がないことを確認した (図 2)。

また、試料の測定時間は 500 分 (50 分 $\times$ 10 回) とし、このときのバックグラウンド計数率は 3.5cpm であった。

LSC における ^{241}Pu の計数効率、クエンチングの異なる ^3H 標準線源を用い、 ^{137}Cs による外部標準チャンネル比 (ESCR) 法により、計数効率曲線を作成して求めた。

図 3 に計数効率曲線を示す。

実試料を用いた場合の ESCR は、10~12.5 の範囲にあり、計数効率は約 35% であった。

4.2 分析回収率補正用試料の測定 (α スペクトロメトリ)

Pu 電着板を Si 半導体検出器にセットし、チェンバー内を真空にした後、測定を行った。測定条件としては、測定エネルギーレンジを 4~6 MeV、測定時間を 8×10^4 秒とした。

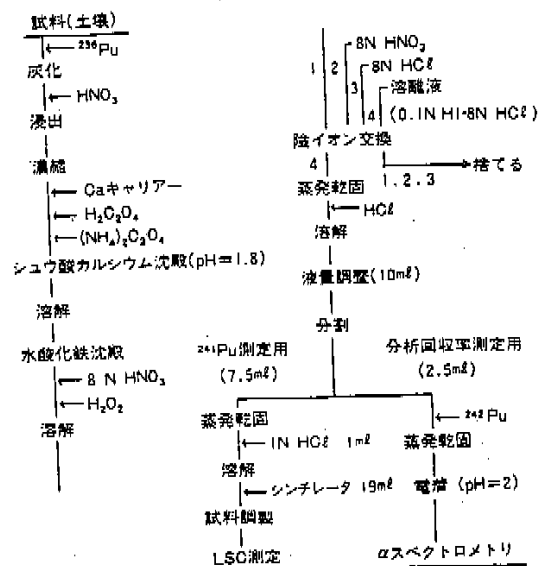
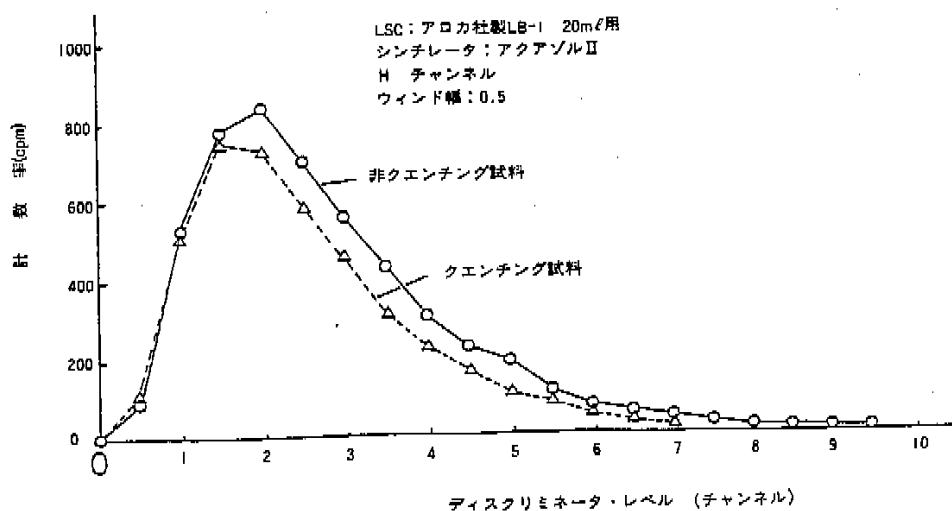
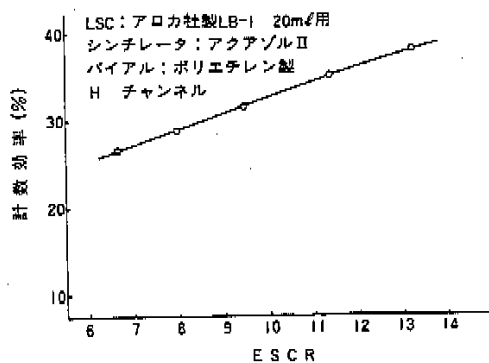
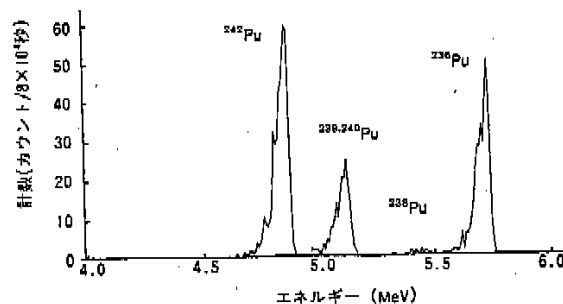


図 1 土壌中 ^{241}Pu の分析手順

図2 ^{241}Pu の液体シンチレーション・スペクトル図3 液体シンチレーション測定における
 $^{241}\text{Pu}(5\text{H})$ の計数効率図4 プルトニウム同位体の α 線スペクトル

5. 結果と考察

5.1 分析回収率

^{241}Pu の分析回収率は、分析操作の当初に添加した ^{236}Pu の α スペクトロメトリにより求めた。また、電着前に添加した ^{242}Pu により、 ^{236}Pu の電着効率の補正を行った。得られた α 線スペクトルの例を図4に示す。

分析回収率の平均は、22件の分析を行った結果では約平均60%であった。

5.2 繰り返し分析結果

本測定法により同一土壌試料を用いて10回の繰り返し分析を行った。その結果を表1に示す。

^{241}Pu 濃度の測定結果は1.5~1.7Bq/kg・乾土の範囲で変動し、平均は1.6Bq/kg・乾土、標準偏差は0.1、変動係数は6.3%であった。

また、 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の測定結果は0.39~0.44Bq/

表1 繰り返し分析結果

回数	$^{239,240}\text{Pu}$ 濃度 (Bq/kg・乾土)	^{241}Pu 濃度 (Bq/kg・乾土)	$^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比
1	0.39 $\pm$ 0.03	1.7 $\pm$ 0.1	4.4 $\pm$ 0.4
2	0.41 $\pm$ 0.02	1.7 $\pm$ 0.1	4.1 $\pm$ 0.3
3	0.40 $\pm$ 0.02	1.6 $\pm$ 0.1	4.0 $\pm$ 0.3
4	0.39 $\pm$ 0.02	1.5 $\pm$ 0.1	3.8 $\pm$ 0.3
5	0.39 $\pm$ 0.03	1.5 $\pm$ 0.1	3.8 $\pm$ 0.4
6	0.40 $\pm$ 0.03	1.5 $\pm$ 0.1	3.8 $\pm$ 0.4
7	0.44 $\pm$ 0.03	1.6 $\pm$ 0.1	3.6 $\pm$ 0.3
8	0.43 $\pm$ 0.02	1.6 $\pm$ 0.1	3.7 $\pm$ 0.3
9	0.39 $\pm$ 0.02	1.7 $\pm$ 0.1	4.4 $\pm$ 0.3
10	0.42 $\pm$ 0.02	1.6 $\pm$ 0.1	3.8 $\pm$ 0.3
平均 (Mean)			
標準偏差 (S.D.)	0.02	0.1	0.3
変動係数(%) (C.V.)	4.9	6.3	7.7

(注) 誤差は計数誤差(1 σ)を示す。

表2 土質の異なる土壌中の ^{241}Pu 濃度及び
 $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比

採取場所	採取年月	$^{239,240}\text{Pu}$ 濃度 (Bq/kg・乾土)	^{241}Pu 濃度 (Bq/kg・乾土)	$^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比
A	1 1985, 11	1.3 ± 0.1	4.6 ± 0.1	3.5 ± 0.3
	2	1.3 ± 0.1	4.9 ± 0.1	3.9 ± 0.3
B	1 1985, 11	0.20 ± 0.02	0.84 ± 0.09	3.3 ± 0.6
	2	0.15 ± 0.01	0.57 ± 0.09	3.8 ± 0.7
C	1 1985, 11	0.16 ± 0.01	0.87 ± 0.07	5.4 ± 0.6
	2	0.15 ± 0.01	0.60 ± 0.08	4.1 ± 0.6
D	1 1985, 11	0.76 ± 0.04	3.0 ± 0.1	4.0 ± 0.2
	2	0.86 ± 0.03	2.9 ± 0.1	3.4 ± 0.2
E	1 1985, 11	0.41 ± 0.02	2.0 ± 0.1	4.7 ± 0.3
	2	0.47 ± 0.02	2.1 ± 0.1	4.4 ± 0.3
F	1 1985, 11	0.15 ± 0.02	0.81 ± 0.14	5.4 ± 1.2
	2	0.18 ± 0.02	0.75 ± 0.09	4.3 ± 0.7
平均				4.2 ± 0.7

(注) 誤差は計数誤差(1 σ)を示す。

kg・乾土の範囲で変動し、平均は 0.41Bq/kg ・乾土、標準偏差は 0.02 、変動係数は 4.9% であった。

5.3 環境試料中の ^{241}Pu 濃度

本測定法により、土質の異なると思われる土壌中の ^{241}Pu 濃度の測定を行った。その測定結果を表2に示す。 ^{241}Pu 濃度は、 $0.57\sim 4.9\text{Bq/kg}$ ・乾土と採取試料により大きく変動していた。しかし、 ^{241}Pu と $^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比は $3.3\sim 5.4$ の範囲にあり、その放射能比の平均は 4.2 で、標準偏差は 0.7 とほぼ一定した値を示した。

また、昭和55年に採取し、 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の測定を実施した土壌試料の電着板から、Puを再溶出した試料(4件)中の ^{241}Pu と $^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比は、平均 4.2 (変動幅： $3.1\sim 5.0$)であった。

海外における土壌中の ^{241}Pu と $^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比は、1984年のイギリスのバークシャー地方で採取した試料では6と報告されており⁶⁾また、Perkinsらが示している世界各地のプルトニウム濃度⁷⁾からは 3.8 (1987)と算出される。

これに対し、原子炉において燃焼度が約 $30,000\text{MWd/ton}$ の使用済燃料中の ^{241}Pu と $^{239,240}\text{Pu}$ の放

射能比は、約 120 と算出⁷⁾される。

以上のことから、今回採取した試料と昭和55年に採取した試料中のプルトニウムは、大気圏内核実験によるフォールアウトの影響によるものと思われる。

6. まとめ

本測定法によれば、環境試料中に含まれる ^{241}Pu の定量を約7日で行うことが可能である。検出下限値は、供試量 200g を用い、LSCの測定時間を 500 分、計数効率を 35% 、B.G.計数率を 3.5cpm 、分析回収率を 60% とした場合、 0.2Bq/kg ・乾土であった。

また、本測定法は、 ^{241}Pu の定量とともに ^{239}Pu 、 $^{239,240}\text{Pu}$ も同時に定量できるほか、 ^{241}Am を含めた系統分析も可能である。

以上のことから、今後、土壌を始めとする環境試料中の ^{241}Pu 及びプルトニウム同位体の水準調査を実施して行くとともに、 ^{241}Am との放射能比の関係についても調査して行く予定である。また、回収ウランの再利用に伴って必要となる回収ウラン中の放射性不純物の分析にも本測定法を適用していきたいと考えている。

参考文献

- 1) The United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) (国連科学委員会) 報告書、1982年版第1試「放射線とその人間への影響」放射線医学総合研究所要報、株式会社テクノ・プロジェクト
- 2) H HOLM, R.B.R.PERSON: Biophysical Aspects of Am-241 and Pu-241 in the Environment, Rad and Environm, Biophys.15 261-276 (78)
- 3) 動燃東海燃焼分析作業法(周辺環境管理編), PNCT N852-83-15 (Rev.)
- 4) HAKANEN M, JAAKKOLA T, KORPELA H: Simultaneous determination of ^{241}Pu , ^{239}Pu , and ^{238}Pu in low activity environmental samples, Nucl Instrum Methods Phys Res Sect A (NLD) 223 [2/3] 382-385 (84)
- 5) A YAMATO: An anion exchange method for the determination of ^{241}Am and plutonium in environmental and biological samples, J. Radioanal.Chem.75 265-273 (82)
- 6) MAJOR R.O., WILKINS B.T.: The determination of plutonium-241 in environmental materials, Radiol Prot Bull (GBR) [72] 14-17 (85)
- 7) PERKINS R.W., THOMAS C.W.: "Transuranic Elements in the Environment.", p53-82, DOE/TIC-22800(1980)