

ラジウム分析法に関する基礎的研究 (4)

— 2π ガスフロー型比例計数装置を用いた重量法の実試料への応用—

清水光郎, 森上嘉亮, 西村佳恵, 宮崎 清, 信森達也 (放射能科)

【資 料】

ラジウム分析法に関する基礎的研究 (4)

— 2 π ガスフロー型比例計数装置を用いた重量法の実試料への応用 —

Fundamental Study on the Analytical Method of Radium (IV)

— Application of the gravimetric method to the real samples
by use of 2 π Gas Flow Proportional Counter —

清水光郎, 森上嘉亮, 西村佳恵, 宮崎 清, 信森達也 (放射能科)

Mitsuo Shimizu, Yoshiaki Morikami, Yoshie Nishimura Kiyoshi, Miyazaki, Tatsuya Nobumori

要 旨

公定法である全 α 計数装置法によるラジウム分析法は、放射性同位元素の ^{226}Ra 、 ^{133}Ba を用いるため管理区域内での作業が必要であるが、法令改正により免除レベル以下の濃度なら管理区域外においても使用が可能となった。しかし、放射性同位元素の購入や取扱に関する管理及び廃棄物保管・処分には厳しい法規制がある。

そのため、著者らは昨年度、 ^{226}Ra の回収率補正に際し、 ^{133}Ba を使用しないラジウム分析法を開発し報告した。本年度は、改良法を実試料(陸水, 土壌, 生物質及び標準土壌)へ応用して公定法との並行試験を行った結果、全試料による相関係数は0.997(n=30)であり、良く一致することが明らかとなった。また、改良法の採用により ^{133}Ba の購入・廃棄物保管及び処分が不要となり、作業の効率化が図られた。

[キーワード：ラジウム分析, 重量法, 2 π ガスフロー型比例計数装置]

[Key words : Radium analysis, Gravimetric method, 2 π Gas Flow Proportional Counter]

1 はじめに

人形峠環境技術センター周辺の環境放射線等監視測定において、ラジウム分析を行っている。現行法は、公定法の2 π ガスフロー型比例計数装置(以下、「全 α 計数装置法」という。)を用いているが、ガス置換によりバックグラウンドを低く保つ特徴があり、高精度なラジウム分析法¹⁾である。しかし、 ^{133}Ba を用いた γ 線測定により回収率補正をするので、管理区域内での作業が必要とされてきた。法令改正により免除レベル以下の濃度の場合、管理区域外においても使用が可能となったが、放射性同位元素の購入や取扱に関する管理及び廃棄物保管・処分等には厳しい法規制がある。

そこで、 ^{226}Ra の回収率補正に際し、放射性同位元素である ^{133}Ba の代わりに BaSO_4 沈殿重量による化学的回収率の補正(以下、「重量法」という。)を行うラジウム分析法に改良し、昨年度に報告²⁾した。今回は実試料である陸水, 土壌, 生物質及び標準土壌を用いて、改良法と公定法との比較検討を行ったので報告する。

2 実験方法

2.1 公定法から重量法への改良点

全 α 計数装置法を用いた公定法から重量法への改良点は次のとおりである(図1)。

① ^{133}Ba を使用しない ② Ba^{2+} 担体溶液の添加量増加(6.7mgから50mg) ③測定試料皿径の大型化(25mm ϕ ステンレス製から36mm ϕ アルミニウム製) ④回収率補正法の変更(波高分析装置による γ 線測定 → 電子上皿天秤による重量法)

2.2 試料

実試料には、サンプリング測定に用いた陸水(河川水・排水・坑内水及び温泉水), 土壌(河底土・水田土・畑土及び未耕土), 生物質(樹葉・牧草・野菜・精米及び淡水魚)と標準土壌(平成20年度に、(財)日本分析センターより配布されたクロスチェック用の試料)を使用した。

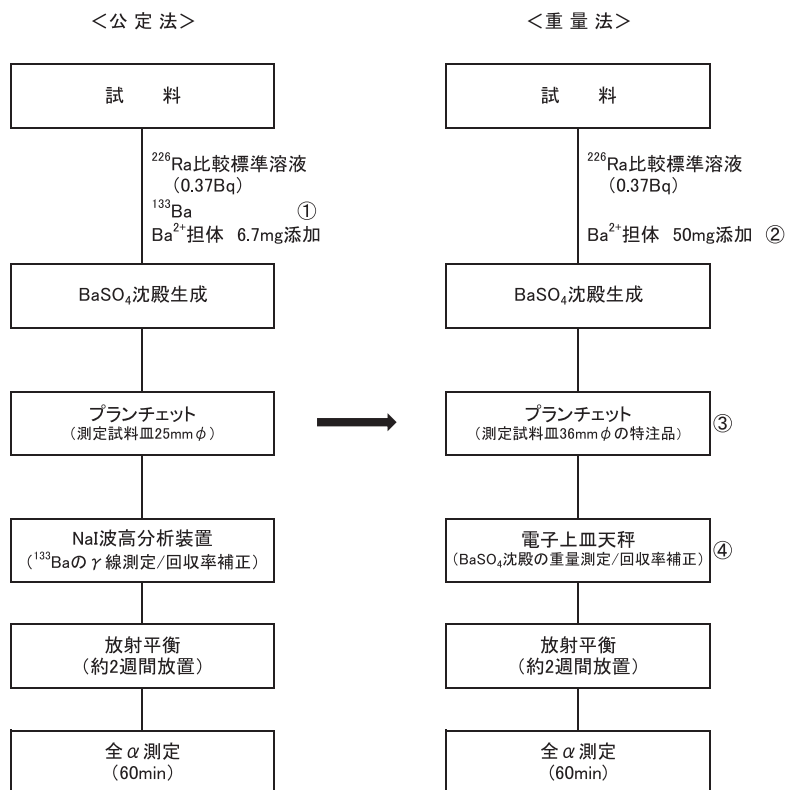


図1 全α計数装置法を用いた公定法から重量法への改良点

2.3 試薬

^{226}Ra 標準溶液は、0.37Bq/mlの濃度を用いた。

Ba^{2+} 担体溶液は、6.7 mg/ml ($\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$)と50 mg/ml ($\text{Ba}(\text{OH})_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$)の2種類を用いた。

ConcHNO₃(有害金属用)、ConcH₂SO₄(精密分析用)及びEDTA・4Na(特級)は和光純薬製を用いた。

2.4 測定装置

全α計数装置は、アロカ(株)製のLBC-4311型(低バックグラウンド型)を使用した。検出器の径は25 mmφ(薄窓なし)、計数ガスはPRガス(流量40 cc/min)、測定時間は60分間による計測を行った。

2.5 電子上皿天秤

電子上皿天秤は、カールツァイス(株)製のSARTORIUS1712型を使用した。

3 結果及び考察

3.1 Ba^{2+} 担体溶液の添加量

公定法では Ba^{2+} 担体溶液6.7 mgを添加してBaSO₄沈殿を生成させる。一方、改良法では電子上皿天秤により秤

量するため、BaSO₄沈殿量を増加させ秤量精度を向上させることが重要となる。そこで、環境試料中に微量含まれる天然由来のBaの影響を排除し、更にBaSO₄沈殿の生成を安定化させるために、添加する Ba^{2+} 担体量は50 mgとした。

3.2 測定試料皿への封入

公定法で用いる測定試料皿25 mmφに多量のBaSO₄沈殿を封入すると、BaSO₄沈殿の厚みが増加すると共に自己吸収の影響²⁾が現れた。このことから、測定試料皿に薄く均一に分散させることが高い測定効率に繋がるため、特注の径36 mmφの測定試料皿へ封入した。

3.3 公定法との比較検討

実試料(陸水、土壌、生物質及び標準土壌)を前処理後、 Ba^{2+} 担体溶液を50 mg添加して多量のBaSO₄沈殿を生成させる。その後、測定試料皿36 mmφに封入し電子上皿天秤を用いて、重量法により回収率補正を行う。BaSO₄沈殿の生成後は、 ^{226}Ra と ^{222}Rn とが放射平衡状態(^{222}Rn 生成が約95%)に達する約2週間以上放置した後、測定を行い公定法との比較検討を行った。

公定法と重量法との比較結果を表1に示す。重量法/公定法の比を求めると、陸水が0.87～1.07(n=10)、土壌(標準土壌含)が0.89～1.05(n=10)、生物質が0.84～1.09(n=10)の範囲であった。また、図2-1及び図2-2に陸水の比較図を示すが、高濃度の温泉水は公定法に比べて重量法がやや低い傾向であった。一方、低濃度領域でも重

量法がやや低い傾向であった。図3及び図4には土壌と生物質の比較図を示すが、公定法と重量法は各試料とも一致していた。また、図5には全試料による相関図を示すが、相関係数は $r=0.997$ (n=30)であり、実試料の測定においても、改良した重量法は公定法と良く一致していた。

表1 陸水・土壌・生物質及び標準土壌の公定法と重量法との比較

	試料名	公定法	重量法	重量法/公定法
陸水 (Bq/l)	河川水 1	0.0015 ± 0.0009	0.0016 ± 0.0007	1.07
	河川水 2	0.0023 ± 0.0011	0.0024 ± 0.0008	1.04
	河川水 3	0.0039 ± 0.0013	0.0037 ± 0.0009	0.95
	河川水 4	0.0028 ± 0.0009	0.0030 ± 0.0007	1.07
	排水 1	0.0078 ± 0.0017	0.0068 ± 0.0013	0.87
	排水 2	0.0080 ± 0.0017	0.0070 ± 0.0012	0.88
	坑内水 1	0.0095 ± 0.0018	0.0090 ± 0.0014	0.95
	坑内水 2	0.0091 ± 0.0018	0.0080 ± 0.0013	0.88
	温泉水 1	0.4258 ± 0.0325	0.3843 ± 0.0128	0.90
	温泉水 2	0.4121 ± 0.0335	0.3691 ± 0.0121	0.90
土壌 (Bq/g)	河底土 1	0.087 ± 0.008	0.082 ± 0.004	0.94
	河底土 2	0.081 ± 0.007	0.076 ± 0.004	0.94
	水田土 1	0.053 ± 0.005	0.051 ± 0.004	0.96
	水田土 2	0.055 ± 0.005	0.054 ± 0.004	0.98
	畑土 1	0.052 ± 0.005	0.052 ± 0.004	1.00
	畑土 2	0.057 ± 0.005	0.051 ± 0.004	0.89
	未耕土 1	0.093 ± 0.008	0.088 ± 0.005	0.95
	未耕土 2	0.081 ± 0.007	0.085 ± 0.005	1.05
	標準土壌 1	0.370 ± 0.029	0.370 ± 0.010	1.00
	標準土壌 2	0.368 ± 0.029	0.355 ± 0.009	0.96
生物質 (Bq/Kg・生)	樹葉 1	0.430 ± 0.050	0.396 ± 0.052	0.92
	樹葉 2	0.620 ± 0.060	0.519 ± 0.051	0.84
	樹葉 3	1.260 ± 0.110	1.235 ± 0.057	0.98
	樹葉 4	0.730 ± 0.070	0.648 ± 0.043	0.89
	牧草 1	0.310 ± 0.040	0.336 ± 0.054	1.08
	牧草 2	0.310 ± 0.040	0.300 ± 0.051	0.97
	野菜 1	0.083 ± 0.020	0.090 ± 0.042	1.08
	野菜 2	0.038 ± 0.010	0.033 ± 0.013	0.87
	精米 1	0.011 ± 0.010	0.012 ± 0.059	1.09
	淡水魚 1	0.050 ± 0.010	0.050 ± 0.033	1.00

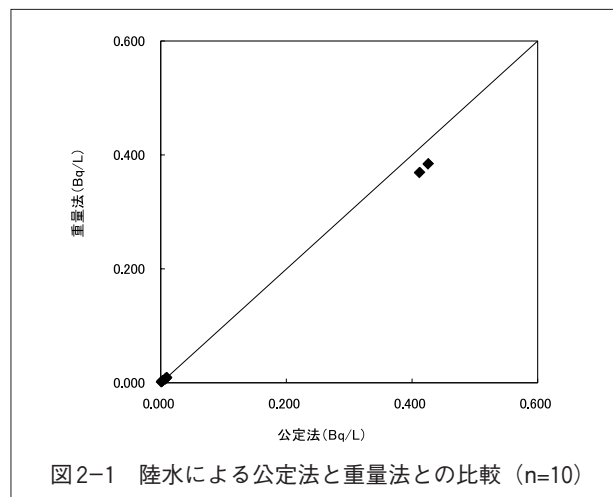


図2-1 陸水による公定法と重量法との比較 (n=10)

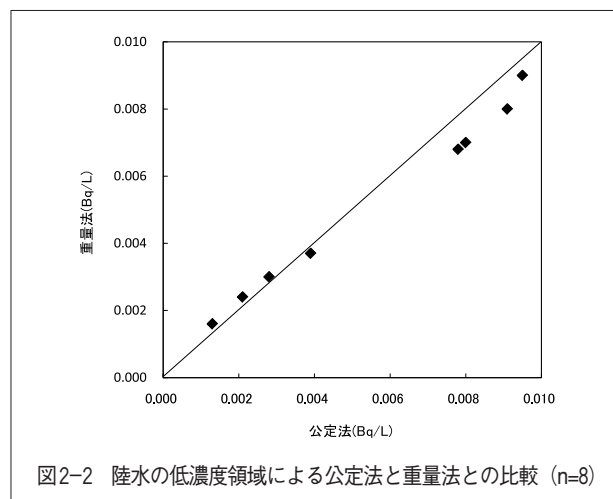


図2-2 陸水の低濃度領域による公定法と重量法との比較 (n=8)

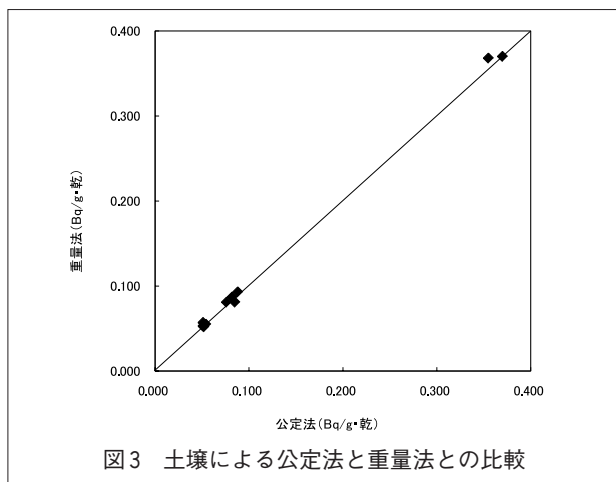


図3 土壌による公定法と重量法との比較

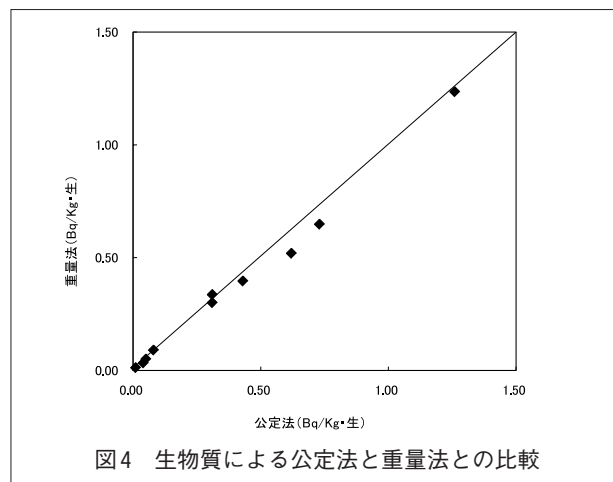


図4 生物質による公定法と重量法との比較

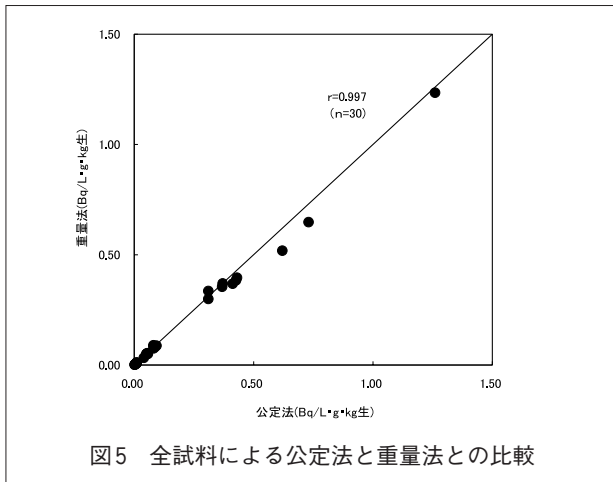


図5 全試料による公定法と重量法との比較

4 まとめ

実試料(陸水, 土壌, 生物質及び標準土壌)を用いて, 「 ^{133}Ba を使用する公定法」と「改良した重量法」との比

較検討を行った。

- 1) 実試料を用いた公定法と重量法との並行試験は, 全試料による相関係数が $r=0.997$ ($n=30$)であり, 公定法とは良く一致していた。
- 2) 重量法の採用は, ^{133}Ba の購入・廃棄物保管及び処分が不要となり, 作業の効率化に寄与するものと考えられた。

文 献

- 1) 文部科学省監修：放射能測定法シリーズ(19), ラジウム分析, 1990
- 2) 清水光郎, 道広憲秀, 信森達也, 森上嘉亮：ラジウム分析法に関する研究(3)― 2π ガスフロー型比例計数装置を用いる基礎的な研究―
岡山県環境保健センター年報, 33, 87-90, 2009