

第 2 日 ( 1 0 月 9 日 ) 午前

### アルギンと活性炭による放射性廃液処理

( 名工試 ) 〇田中吉左右・甲田善生

従来種々の吸着剤が放射性廃液の処理を目的として検討されてきたが、ここではおもに塩の濃度が高い放射性廃液とくに核分裂生成物の処理について検討する。放射性廃液の除染の目的で活性炭とアルギン混合物による吸着除去能力を検討し、この結果を活性炭単独の場合あるいはイオン交換樹脂による処理の結果と比較した。

活性炭とアルギンの混合物は市販アルギン酸ソーダの水溶液を、活性炭を懸濁させた水中に滴下し、得られた塊状物を70°Cで一昼夜乾燥したのち1時間真空中において調製した。塊状物は一部を1N硫酸で洗浄して同様に乾燥した。活性炭は市販品を70°Cで同じく乾燥後真空中に1時間放置したのち使用した。イオン交換樹脂はDowex 50 x-4およびDowex 2のいずれも50~100メツシユを1N硫酸で洗浄再生し、水洗後乾燥して用いた。

放射性的汚染核種として $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Y}$ を塩化物の溶液、 $^{106}\text{Ru}$ 、 $^{95}\text{Zr}$ 、 $^{95}\text{Nb}$ を硝酸塩の溶液として選び、放射性廃液としては1.5年を経過した核分裂生成物を希釈して使用した(30%の $^{144}\text{Ce}$ 、10%の $^{147}\text{Pm}$ 、3.5%の $^{90}\text{Sr}$ 、35%の $^{90}\text{Sr}$ 、32%の $^{106}\text{Ru}$ 、2.7%の $^{137}\text{Cs}$  etc.を含む)。

2gの吸着体と20mlの溶液を共栓付三角フラスコに入れ、20°Cで2時間ふりまぜたのち遠心分離する。上澄液1mlの放射能を蒸発乾固したのちGM計数管(1.43mg/cm<sup>2</sup>)で測定した。原液の放射能を測定することによつて、汚染除去率、分配比を求めた。溶液のPHは試験紙で求めたが、必要に応じガラス電極PHメーターを使用した。

この吸着体をガラス管に詰め5ml/minの流速で溶液を流下させ、流下液20mlごとに1mlの試料をとつてその放射能を前と同様にして求め、全吸着率を次式から算出した。

$$\text{全吸着率} \left( 1 - \frac{\sum_{i=1}^N A_i V_i}{A_0 U} \right) \times 100\%$$

ここでNは最終フラクションの番号、 $A_i$ と $A_0$ はそれぞれi番目あるいは原液各1mlの放射能、 $V_i$ はi番目に流下した溶液の容積、 $V$ はi番目あるいはN番目までに流下した溶液の総量を示す。

汚染除去率と分配比をPHをかえて測定し、担体の存在の有無および1価の塩を不純物として含む溶液からの吸着状態を検討した。

500ml中に含まれる $^{90}\text{Sr}$ が80mg/Lの $\text{SrCl}_2$ を含む溶液から5gのアルギン活性炭混合物を詰めたカラムを通すことによつて75%吸着除去されるのに対し、活性炭単独のさいには同じ条件で36%しか除去されないことがわかつた。

## 2.7. パルプおよびその誘導体による放射性廃液処理について

(山陽パルプ)尾上史郎・大久保正道・池田健郎

(広大理)○丸子盛久・品川睦明

目的 本研究はイオン交換能を有するパルプの誘導体について放射性廃液処理の可能性を検討した。パルプの誘導体としては、酸化パルプ、及び磷酸パルプを用い主に $^{90}\text{Sr}$ ( $^{90}\text{Y}$ )の除染について研究した。

実験 綿状試料1gを内径2cmのカラムに充填し流下方式により放射性溶液を通し、20mlまたは25mlのフラクションに分けて採取後、各フラクションにつき1mlづつとり、これを蒸発乾固後計測した。

結果 除染百分率は両者共良好で95%以上であつた。交換容量は酸化パルプで約2.5 meq/g,りん酸パルプで3.6 meq/gであり、イオン交換樹脂(Amberlite IR-120)の4.0 meq/gに比し少し劣るが、除染百分率は大差なく、その上安価であるから放射性廃液処理に用いる上に有望であることが分つた。

## 28. ベントナイト及び沈降剤の併用による放射性汚染除去

(立大理) 奥野久輝 有野博文

1. 目的 さきに本邦産ベントナイトの使用による水溶液中の放射性核種の分離除去について研究を行い、陽イオン系の核種に対して極めて有効なことを報告したが、この方法における困難はベントナイトが安定な懸濁液をつくるため、水溶液相とベントナイトを分離し難いことである。今回われわれは沈降剤の添加によるベントナイトの分離と、あわせて放射性汚染の除去能率の増大をはかる目的をもつて次の実験を行った。

2. 方法 目盛り500CCのビーカーに群馬県横川産ベントナイト5gをとり、之に $^{144}\text{Ce}(\text{NO}_3)_3$ 水溶液500CCを加えて攪拌する。次に沈降剤の適量をピペットでとり添加し攪拌する。更にPH試験紙によりPHを測定する。時間の経過につれて上部に透明な水溶液相を生ずるので一定時間毎にこの容積を記録する。24時間放置後、上部の透明な水溶液相から2CCをポリエチレン製試験管にとり、Baird Atomic社のウエル形シンチレーションカウンターで放射能を測定した。汚染の除去能率は(除去前のR, Iの量)/(除去後のR, Iの量)=A、及び除去率をもつて表わす。

3. 結果 (a)まずベントナイトの $\text{BaCO}_3$ による沈降効果について試験を行った。 $\text{BaCO}_3$ は $\text{BaCl}_2$ と $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ をベントナイト懸濁液500CC中に当量に加えて作ったもので、この結果 $\text{BaCO}_3$  10meq以下においてはベントナイトの沈降を生じなかつた。然し $\text{BaCl}_2$ を単独に添加した場合は4 meqでベントナイトを沈降させることができた。 $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ の沈降作用は極めて小さい。同様に $\text{CaCO}_3$ では15 meqまではベントナイトが沈降しないが、 $\text{CaCl}_2$ のみでは14 meqで沈降作用を示す。 $\text{MgCl}_2$ のみの場合2meqで充分である。然しBa, Ca, Mgと $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ が当量でなく、いずれかが過剰に存在する場合は沈降作用が増大する。例えば $\text{BaCl}_2$  1.5 meq,  $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$  9meqでは単独に加えても沈降作用を示さないが、両者を添加すると沈降作用を示す。以上よりベントナイトの沈降に関しては炭酸塩の沈降作用とコロイドに対する塩の効果が主に影響をもつものと考えられる。

(b) $^{144}\text{Ce}$ の除去能率を第1表に示した。ベントナイトのみによる除去は $^{144}\text{Ce}(\text{NO}_3)_3$ 水溶液にベントナイトを加え吸着平衡に達した後、12000rpmで遠心分離を行い得られた

上澄液について測定したものである。この結果より、ベントナイトのみを使用した場合とベントナイトに沈降剤を添加した場合とは、後者の方が幾分か低い除去能率を示しているが、条件を選べば大体同程度と見られる。沈降剤のみの時は、時として甚だ良好な除去能率を示すが一般にかなり低い値を示している。

第 1 表

	P H	沈降剤の濃度(meq)	除去率(%)	A
ベントナイト	7.0~9.5	0	98.5~99.9	65.9~100.2
ベントナイト+BaCO <sub>3</sub>	7.0~9.4	1.5~15	97.8~99.4	45.0~115.6
ベントナイト+CaCO <sub>3</sub>	8.2~9.3	1.5~15	93.6~98.8	15.1~82.3
ベントナイト+MgCO <sub>3</sub>	8.8~9.4	1.5~15	88.0~99.5	8.34~119.2
BaCO <sub>3</sub>	8.4~9.2	1.5~15	66.8~95.2	3.01~20.9
CaCO <sub>3</sub>	8.4~9.2	1.5~15	83.2~99.4	5.96~115.9

4. 結 語 ベントナイト懸濁液に Ba、Ca、Mg の炭酸塩を添加することにより、ベントナイトの放射性汚染除去能率を低下させることなく、簡便に水溶液相とベントナイトを分離できることが分つた。

## 2.9. 放射能除染に関する研究(予報)バーミキュライトの利用について

(京大化研)重松恒信 (洋水工業所)大塩敏樹

放射性廃液処理として、イオン交換方式はすぐれた方法の一つであるが、再生を行い難い場合には経済的な制約がある。

粘土鉱物にはイオン交換性を有するものが多く、バーミキュライトはこれ等の中イオン交換

能の大きいものの一つであつてわが国においても豊富に産出する未利用鉱物である。

バーミキュライトが同系統の粘土鉱物であるグリーンサンドと同様、強酸性スルホン酸型陽イオン交換樹脂とは異つた交換の選択性を有し、特にセシウムの交換収着に優れた性質を示すことは既に報告したが、今回は東北産の原鉱石について交換能力を測定した結果を報告する。

イオン交換容量の測定法には、酸処理を行いH型としBa<sup>2+</sup>などと置換させ、あるいは水酸化ナトリウムで陽イオン交換樹脂の総交換容量を測定する方法に準じておこなうことが述べられているが、測定方法により結果が異りあるいは酸、アルカリ処理によつて交換体の崩壊が考えられる。これ等の点から、実用的な貫流能力の測定を目的とし、カラム法でNa~Ca交換を行い一定のCa<sup>2+</sup>の流出点を以て交換能力を算定する方法を採つた。すなわち原鉱石を水洗後20~60メツンに選別し、20 mmφのカラムに30 ml充填、3%食塩水で再生、10<sup>-3</sup>MのCa<sup>2+</sup>溶液を通し、流出液はEDTAで滴定、10%貫流点で打切り5回の測定の平均を求めた。

17個の試料について、バーミキュライト1ℓ(容積は原鉱石の水洗選別試料の容積を基準)当り40、100gの食塩再生レベルでそれぞれ0.297~0.541 meq/ml、0.411~0.859 meq/mlの値を得た。1M塩酸を3.3倍使用してH型とした後、H-Ca、Na-Ca交換をおこなつたが、前者では10<sup>-3</sup>M Ca<sup>2+</sup>の交換は困難であるが、後者の場合は同様に0.356~0.672、0.475~0.898 meq/mlであつて、処理により交換能力が増し、最高41.25%の増加率を示し、流出Ca<sup>2+</sup>濃度は10<sup>-5</sup>~10<sup>-7</sup>Mとなっている。

原鉱石の見掛比重は0.86~1.03であるが酸処理により1.3~5.7%容積が増加した。また7試料についての105°Cでの減量は10.4~13.6%で、塩酸による膨潤率とは逆の関係がある。外観茶褐色のものが緑色のものに比し交換能が大きいが、化学分析の結果前者は鉄含量が大きいのに対し後者は2個の鉄が含まれることがわかつた。然しバーミキュライトの成分は複雑である。

塩酸濃度を0.01~6Nとして処理すると4Mで7.6%の容積増加を示し、増加率が極大になる。食塩再生レベルを変えて交換能力を測定すると、40g/ℓでは未処理の場合の0.529 meq/mlに対し0.25Mで0.560 meq/ml、60g/ℓで0.685に対し0.25Mで0.769、100g/ℓでは0.830に対し0.5Mで0.870とそれぞれ極大値を示す。250

g/lでは0.5 Mで0.947 meq/mlなる値を示した。この値は陽イオン交換樹脂例えばDowex 50の実用貫流能力0.80~1.05 meq/mlに匹敵し、経済的には数分の一の経費となる。

パーミキュライトの交換選択係数の一例をあげると、 $Ba^{2+}, Mg^{2+} < Ca^{2+} < K^+ < Na^+ \approx Sr^{2+} < Cs^+ < NH_4^+$ となり、 $Cs^+$ は $Sr^{2+}, Ca^{2+}$ より交換され易く、また $NH_4^+$ の交換吸着はH型からは極めて容易であるが、一部固定される。

なお原鉱石を650~1050°Cで焼成したものについても交換能力の測定をおこなった。焼成による交換能力の変化は、700°C以上で急激に低下し1050°Cで焼成したものは $1/20 \sim 1/30$ 程度におちる。 $^{137}Cs, ^{90}Sr$ を交換吸着させ、Ca形で飽和したものを焼成して各種塩類溶液に浸漬して溶出試験を試みたが、1000°C以上で処理したものは殆んど溶出しない(固定率99.9%)

### 30. 濾紙電気泳動法による $^{90}Sr, ^{90}Y$ の分離

(放医研) ○河村正一, 伊沢正寛

$^{90}Sr + ^{90}Y$ から $^{90}Y$ を分離する方法は種々ある。演者等は濾紙電気泳動法により簡単に迅速に $^{90}Y$ を分離しようと試みた。電解液としては酒石酸、クエン酸、マロン酸、シュウ酸、酢酸、ギ酸、塩酸および、これらの酸にアンモニア水を添加したものをを用い、濃度、PH等を変え最適条件を求めたところ無担体ではクエン酸、マロン酸、酢酸で、また担体を加えたときはクエン酸で迅速に分離出来ることが分つたので報告する。方法は特に断りのない限りは東洋濾紙No.3、 $2 \times 40cm$ の陽極側から10cmの箇所に試料( $^{90}Sr - ^{90}Y$ 水溶液に電解液または必要に応じてSrYの担体を加えたもの)0.005ccをスポットしプラスチック板で濾紙を挟み電圧10v/cmで30分乃至2時間泳動し風乾後、1cm宛切り取りG. Mカウンターで計数

するか、切り取らないでペーパークロマトグラフスキヤナー(GM管式)で計数した。その結果をまとめるとつぎのようになった。

(1)0.05Mギ酸、0.01M塩酸を電解液としたときは一応分離したが極めて接近しており担体を加えると分離しなくなる。

(2)無担体の試料は0.05Mシユウ酸にアンモニア水を加えたPH2と4の電解液で分離は最大となり2時間の泳動でPH4附近で $^{90}\text{Y}$ は原点に止り $^{90}\text{Sr}$ は10cm移動する。

(3)0.1M酒石酸を電解液としたときは無担体の試料では2時間の泳動で $^{90}\text{Sr}$ と $^{90}\text{Y}$ の差は10cmでアンモニア水を添加すると分離は悪くなる、なお担体を添加すると分離はよくない。

(4)0.05Mクエン酸電解液では2時間の泳動で $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Y}$ の差は10cmでアンモニア水を添加してPH2.5にしたときは13cmとなる。担体を加えても移動距離が変わらないのが特長である。

(5)0.1M酢酸電解液では90分の泳動で $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Y}$ の差は17cmで30分の泳動でも6cmの差があるので分離可能である。なお担体を加えると完全に分離しない。

以上の実験結果から無担体の $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Y}$ の分離に最も適している電解液は、この実験の範囲内では0.1M酢酸で、担体を加えたときは0.05Mクエン酸アンモニウム(PH2.5)であることが分つた。

### 3.1. 各種土壌による核分裂生成物の吸着

(池新田高・静岡大放射化研) ○桜井忠一郎・八木益男

・塩川孝信

土壌による核分裂生成物の吸着は、放射性廃棄物の処理や、フールアウトによる汚染等で注目されているので、天然の各種土壌による核分裂生成物の吸着の特異性を検討しようとして、

静岡県の土壌を主体として実験した。

50 ml の三角フラスコに土壌試料の0.5 g及び核分裂生成物の水溶液50 mlを入れ、1分間強く振って混合した後、18時間放置した。

核分裂生成物の吸着率についての従来の算出法は添加した核分裂生成物を100として何れも容器による核分裂生成物の吸着を無視している。しかし予備実験の結果容器への吸着量を無視すべきでないと考えたので、本実験に於いては、土に吸着されている核分裂生成物と液中に残存している核分裂生成物との合計を100として土に吸着された核分裂生成物の%を算出した。

実験結果 (1) 混合核分裂生成物の吸着 従来の研究で、置換容量の大なる理由で注目されていたモンモリロナイトを主成分とするベントナイト、酸性白土の吸着率は本実験に於いては夫々40%、80%程度の比較的低率を示した。しかし、静岡県富士郡の浮島村字愛鷹の火山灰の混合した繊維質泥炭を主な母材とする水田土壌及び、静岡県浜名郡の三方原村の洪積層畑土壌は、夫々94%(±1%)、94%の高い吸着率を示した。尚その他の水田や畑土壌も90%前後の吸着率を示した。

#### (2) $^{137}\text{Cs}$ と $^{106}\text{Ru} - ^{106}\text{Rh}$ の吸着

特に注目されたのは、静岡県庵原郡蒲原町の富士川沖積物を主母材とする秋落水田土壌である。即ち前項に示した浮島村の土壌が $^{106}\text{Ru} - ^{106}\text{Rh}$ の吸着率が80%余と高いのに対して、この富士川沖積土壌は60%程度と低いのである。

しかし逆に、 $^{137}\text{Cs}$ の吸着率は浮島村の土壌が82%であるのに、富士川沖積土壌は86%と高いのである。而もこの土壌は粘土の含量は少く細砂が44.6%もの多量を含むものである。そこで富士川沖積土壌が $^{137}\text{Cs}$ の吸着率の高いのは、含まれている片状結晶の粘土の一種イライトであると考えてその片状物質をとり出しそれを主とする土で実験した所、 $^{137}\text{Cs}$ の吸着率が94%の高い吸着率を示した。

#### (3) 共存塩の吸着に及ぼす影響

浮島村土壌と混合核分裂生成物を用いて実験した所、 $\text{HN}_4^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ は吸着率に関係ない様であるが、 $\text{Ca}^{2+}$ は土壌100gに対し10 meq 程度までの少量の添加は吸収率を増加させた。しかし $\text{Ca}^{2+}$ 、や $\text{PO}_4^{3-}$ の多量の添加は吸着率の低下をきたした。

## 3.2. イオン交換樹脂によるフォールアウト中の Sr-90 及び Cs-137 の分析法

(放医研)

坪田博行

フォールアウト中の Sr-90 及び Cs-137 の分析法は多数報告されている。これらは煩雑な操作を含み、かなり熟練を要する。演者は殆どイオン交換樹脂のみにより、グラム程度の試料中の Sr-90 及び Cs-137 を簡単に分離する方法を研究した。この方法によれば、Sr キャリヤーを加えずに操作ができるので天然の Sr 含量の定量も容易であり、又フォールアウト以外の試料中の Sr-90 などの分析にも広く応用できる方法であろう。

A 本法は次の2つの基礎的な研究結果に基づいて得られた。

1)  $\text{Fe}^{3+}$ 、 $\text{Al}^{3+}$  などの陽イオン交換樹脂中における加水分解。陽イオン交換樹脂に吸着させた種々の金属イオンをカルボン酸のアンモニウム塩で溶出する場合に、PH を酸性から順次高めて行くと、溶出が早まる。しかしながら  $\text{Fe}^{3+}$  は PH 約5以上、 $\text{Al}^{3+}$  は PH 約7以上になると急に溶出されなくなる。この現象は  $\text{Fe}^{3+}$ 、 $\text{Al}^{3+}$  などが樹脂に吸着された状態で加水分解される結果であると考え、このことから、PH を或程度以上高くした溶離液を用いると、 $\text{Fe}^{3+}$ 、 $\text{Al}^{3+}$  のみならず、Zr とか 希土類元素なども樹脂中で加水分解させ溶離しにくい形にし得ると考え、このための PH は約7であることをたしかめた。ギ酸アンモニウム、酢酸アンモニウムなどをそのまま水に溶かしたときの PH は約7であるから、これらの溶液を特に PH の調節をせずに用いることができる。

2) 有機溶媒の添加による金属イオンの  $K_d$  の変化。有機溶媒を加えた系の陽イオン交換に於ては、各金属イオンの  $K_d$  が水の場合に比べて変化し、その変化の仕方はイオンの種類、溶媒の種類により異なる。即ち、アルカリ金属では有機溶媒の添加に従って  $K_d$  が増加するが、アルカリ土類金属では逆に  $K_d$  の減少の度合は Ca は甚だしく、Sr は余り変化しない。又、Ca と Sr とにおけるこの様な差はメチルアルコール、エチルアルコール、アセトン、セロソルブの様な有機溶媒の添加の時にあらわれるが、ジオキサンの添加の時にはみられない。これらの事実から、有機溶媒の添加はアルカリ金属の場合には D・K の減少と云ふ点で効果があつたが、Ca や Sr の場合には、多分溶媒分子と Ca や Sr とが錯イオンを作るために生じる効

果であろうと考えられる。こゝでは実用的な面から、酢酸アンモニウム - メチルアルコール系を用いることにした。この系に於て、Ca と Sr の分離効果が最もよい混合率はアルコールの容量百分率として40~60%である。

#### B 分離定量操作の概要

カラム: Amberlite CG-120、100~200 mesh、 $\phi 2.0 \times 15 \text{ cm}$ 、H型

溶離液: I, 2M酢酸アンモニウム:メチルアルコール=1:1混合液

II, 2M酢酸アンモニウム水溶液

1) 塩酸抽出液の乾涸物に3NHClを5~10ml加えて溶かし、水を加えて30~50mlにする。これをカラムに通した後、水洗する。

2) 溶離液I, 300mlを通すと $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ が溶出される。

3) 溶離液II, 220mlを通すと、 $\text{Sr}^{2+}$ 及び $\text{Ca}^{2+}$ が溶出される。

4)  $\text{Ba}^{2+}$ 、 $\text{Fe}^{3+}$ 、 $\text{Al}^{3+}$ 、希土類等は樹脂に吸着されたまゝである。4NHCl、約500mlでこれらを溶出し、樹脂を再生する。

5) 3)の溶出液中のSrの量をEDTA滴定法で求めた後、Srキャリアー及びCsキャリアーを加え、EDTAを分解しこれに $\text{Na}_2\text{CO}_3$ を加えて $\text{SrCO}_3$ を沈澱させる。沈澱中のSr-90を測定する。

6) 4)の濾過液を加熱、液量を減じた後 $\text{HClO}_4$ を加えて $\text{CsClO}_4$ を沈澱させる。Cs-137を測定する。

上記の方法は乾涸した塩化物の重量(W)が1.5gr以下の場合に適用できる。もし、 $W > 1.5$ の場合は次式より、カラムの長さLcm及び溶離液の量Vmlを求めることができる。

$$L \geq 10 + 5W / 1.5 \text{ 及び } V = v_0 + L / 1.5$$

但し $v_0$ は3)又は4)に示した溶離液の量。

### 3.3. フォールアウト中の $^{90}\text{Sr}$ の分析法について

(東大理)

横山裕之 ・ ○ 檜山哲男

フォールアウト中の $^{90}\text{Sr}$ の分析を行う際には、多量の鉄、アルミニウム、カルシウムなどが共存するため、分析の操作が難しくなることが多い。そこで予めこれらの元素の大部分を簡単な方法で除去することができれば都合がよい。

著者らは陽イオン交換樹脂とEDTAを用いて比較的容易にこれらの元素からストロンチウムを分離する方法を考案したのでその結果を報告する。

方法の原理は試料溶液にEDTAを加え、PHを過当に調節して、鉄、アルミニウム、カルシウムなどの大部分を錯イオンの形にし、一方ストロンチウムを陽イオンの形にする。この溶液を陽イオン交換樹脂柱に通し、ストロンチウムのみを樹脂に吸着させて分離を行う。

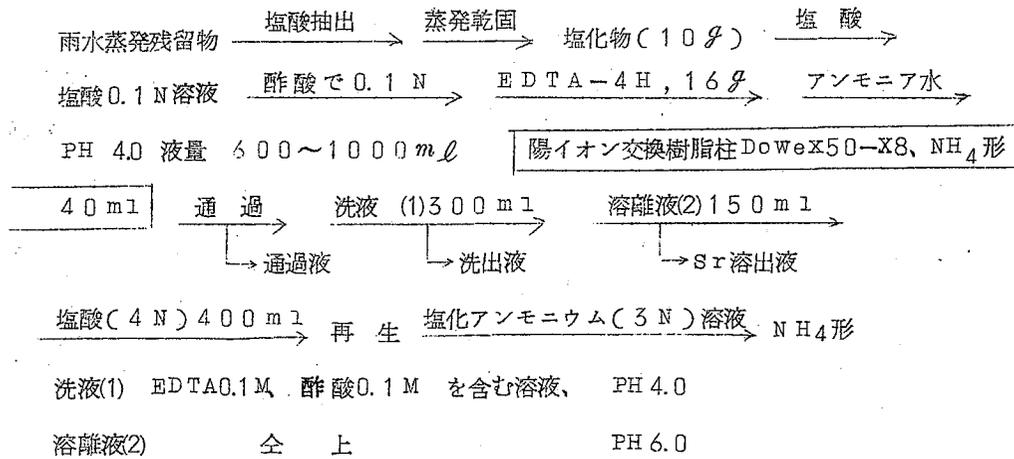
実験には、実際に取扱う試料に近い条件で試験するために、合成試料を作成した。合成試料はFe(Ⅲ)5.40mg、Al 27.0mg、Ca 80.0mg、Mg 330mg、Na 1300mg、K 330mgを含む塩化物10gで、これは大体、1mm<sup>2</sup>の面積に1箇月降つた雨水を蒸発乾固し、これから塩酸抽出を繰返えして得た分析試料に相当する。

樹脂はDowex 50-X8(200~400メッシュ)を用いた。実験は合成試料の塩酸(0.1N)溶液に $^{90}\text{Sr}$ (または $^{45}\text{Ca}$ )のトレーサーを加えて、樹脂柱に通し、その際の樹脂柱の条件、溶液のPH、洗液、ストロンチウムの溶離液などの条件、および分離の結果について調べた。その結果、つぎのようなことが判つた。

- (1) 樹脂はH形は不適當でNH<sub>4</sub>形が適當である。
- (2) 樹脂柱の大きさは塩化物10gに対して40mlの樹脂を用いれば良い。
- (3) 樹脂柱に通す試料溶液のPHは0.4が適當である。
- (4) 洗液および溶離液はEDTA 0.1M、酢酸0.1Mを含む溶液を用いたが、洗液としてはPH4.0が、ストロンチウム溶離液としてはPH 6.0が適當である。
- (5) 1回の操作で、ほぼ完全に鉄、アルミニウム、カルシウムからストロンチウムを分離することができる。この際、ストロンチウムの回収率も良好である。

以上の結果をまとめて、雨水中の $^{90}\text{Sr}$ ( $^{89}\text{Sr}$ も含む)の分離法としてつぎの方法が適當と

考えられる。



### 3.4. 仙台附近の農村における総合食品中の<sup>90</sup>Srの濃度

(東北大理) 瀬戸邦夫 ○武部雅汎

仙台市北方約20 Kmに位置する純農村宮城県里川郡大和町より1958年6月-7月に農村向献立に従って総合食品材料5人2週間分を集め、之を主食(玄米、麦、計35.0 Kg)、副食(野菜11種、豆、淡水魚、計41.6 Kg)、水(雨水、濾過す、140 l)の3部分に大別し、各部分における<sup>90</sup>Srの濃度を測定して之より総合食品中の<sup>90</sup>Sr濃度を求めた。分析方法は試料を灰化後塩酸に溶解、残渣は更に灰化して塩酸に溶解する操作を繰返して溶液とし、蒸発乾涸して珪酸除去の操作を行い、塩化第二鉄を加えて~~磷酸~~を磷酸第二鉄として沈澱除去し(磷酸第二鉄は塩酸に溶解再沈澱を行つた。)アルカリ土類金属をシウ酸塩として沈澱させる。シウ酸塩を灼熱して炭酸塩にかえ硝酸に溶解し、数回発煙硝酸法を行つてSrをCaより分離し、硝酸ストロンチウムを水に溶かしてクロム酸バリウムによつて汚染核種を除去した後炭酸塩として沈澱濾過する。之を放置して<sup>90</sup>Sr-<sup>90</sup>Yの放射平衡が成立した後硝酸に溶

解<sup>90</sup>Yを水酸化鉄に捕集、β計数によつて測定し<sup>90</sup>Srの濃度を求めた。結果は総合食品全体における1人1日当りのCa量は1058mg、Sr量は2.28mg、<sup>90</sup>Srは5.59μμC、5.28 S.U.で、3部分のうち水の部分に最も<sup>90</sup>Srが多く、次いで副食、主食という順序であつた。

3.5. 1958～1959年、新潟市におけるSr-90の降水量とその季節変化

(新潟大、理) 小山誠太郎○外林武

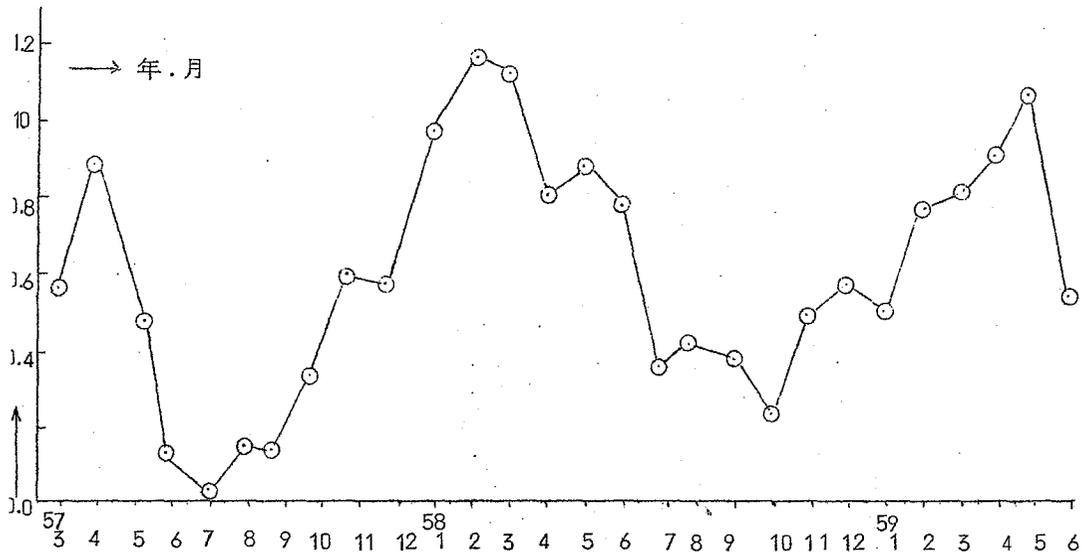
I 分析法の簡易迅速化。分析操作迅速単純化するには、沈澱、濾過等の操作をできるだけ省略することが望ましい。このためにEDTAを隠蔽剤として用い、Fe, Al, 其の他の重金属を錯イオンとして溶液中に溶存させたまま、PH $\sim$ 4.0でCaC<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の沈澱を作りこれにSrを共沈させる方法をとつた。このときBaや希土などもいく分共沈してきてSrが汚染されるが、これらは前報(第2回放射化討論)に述べたようなNH<sub>4</sub>OAc-メタノール-NH<sub>3</sub>系の溶離液で除くことができる。改良された要点は次の通りである。フオールアウト、H<sub>4</sub>-ED<sub>3</sub>処理溶液に(1)20%NaOAcを酢酸鉄の赤褐色が現われ始めるまで加える。(2)固体EDTA $\sim$ 5gを加え、EDTAの反応を完了させるため溶液を暫時煮沸後、温修酸液(含シウ酸アンモニウム $\sim$ 4g)を加え、PHを $\sim$ 4.0に調節し、4時間以上放置。(3)沈澱を灰化。HCC(1:1)の小過剰にとかし、Fe<sup>m</sup>( $\sim$ 5mg)を添加し、アンモニア水シウ酸塩として共沈した希土をFe(OH)<sub>3</sub>と共に除く。

II 58年4月 $\sim$ 59年3月までの新潟市(38°N, 139°E)におけるSr-90の降水量を次の表に示す。

試料採集期間	降水量 (mm)	Sr-90	
		(mc/Km <sup>2</sup> )	( $\mu$ mc/D)
58 3.29 ~ 5.10	147.3	1.169	8.0
5.11 ~ 5.23	53.5	0.458	8.6
5.24 ~ 7.2	104.3	0.810	7.8
7.3 ~ 7.27	571.9	2.124	3.5
7.28 ~ 8.26	250.6	1.041	4.2
8.27 ~ 9.30	356.7	1.344	3.8
10.1 ~ 10.31	206.9	0.495	2.3
11.1 ~ 11.30	214.0	1.118	4.9
12.1 ~ 12.31	186.9	1.072	5.7
59 1.1 ~ 1.31	256.3	1.266	4.9
2.1 ~ 2.28	129.6	1.000	7.6
3.1 ~ 3.31	214.2	1.739	8.0
58. 3.29 ~ 59. 3.31	2692.2	13.636	5.1 (平均)

Sr-90の年間降下率は約 $13.6 \text{ mc/Km}^2 \text{ y}$  で、前年度の $8.0 \text{ mc/Km}^2 \text{ y}$  の1.6倍強である。これは降水量も多かつたこともさること乍ら、何んと云つても此の期間多数回の核実験が行われたことが主なる原因と考えられる。しかしこの値は表日本各地の値（例えば東京では $5.3 \text{ mc/Km}^2 \text{ y}$ ）の2~3倍と云ふ大きなものとなつている。この理由は新潟地方の降水量の大であることと、しかも冬に多く降ることのためだけではない。更に日本にくらべて降雨回数も多く、その放射能強度も数倍のものもある事実にもよるものと考えられる。

次にSr-90の降水中濃度の季節変化について57,3月から59,6月までについて調べてみると3~5月に極大、7~9月に極小を持つ変化をしている。これは成層圏、対流圏間を通じて行われる大気の水平移流と垂直運動を含む大循環の盛衰の季節変化に重大な関係があるものと考えられる。他方高層気象の研究の結果から、大気オゾンの中緯度地帯における季節変化は春に極大、秋に極小を持つて変化することがわかっている。この両者の季節変化の類似性はフオール・アウトの降水機構を解く有力な鍵を提供しているものと考えられる。



降水中の<sup>90</sup>Sr濃度の季節変化

### 3.6. 海水中の Sr-90 について

(東教育大理) 三宅泰雄・葛城幸雄

(気象研) 猿橋勝子

海水中の Sr-90 の分析については、三宅、杉浦 (1955) が、ビキニ水域で採取されたものについて行った。

その後、Bowen, Sugihara (1959) は太平洋の水について、Versene を用いてカルシウムおよびマグネシウムを隠蔽することによつて Sr-90 を測定した。日向野 (1959) は太平洋の海水についてカルシウムおよびストロンチウムを炭酸塩で分離し、ストロンチウムを発煙硝酸で単離した。

海水中に微量に含まれる Sr-90 を正確に定量することはかなりむずかしいことである。

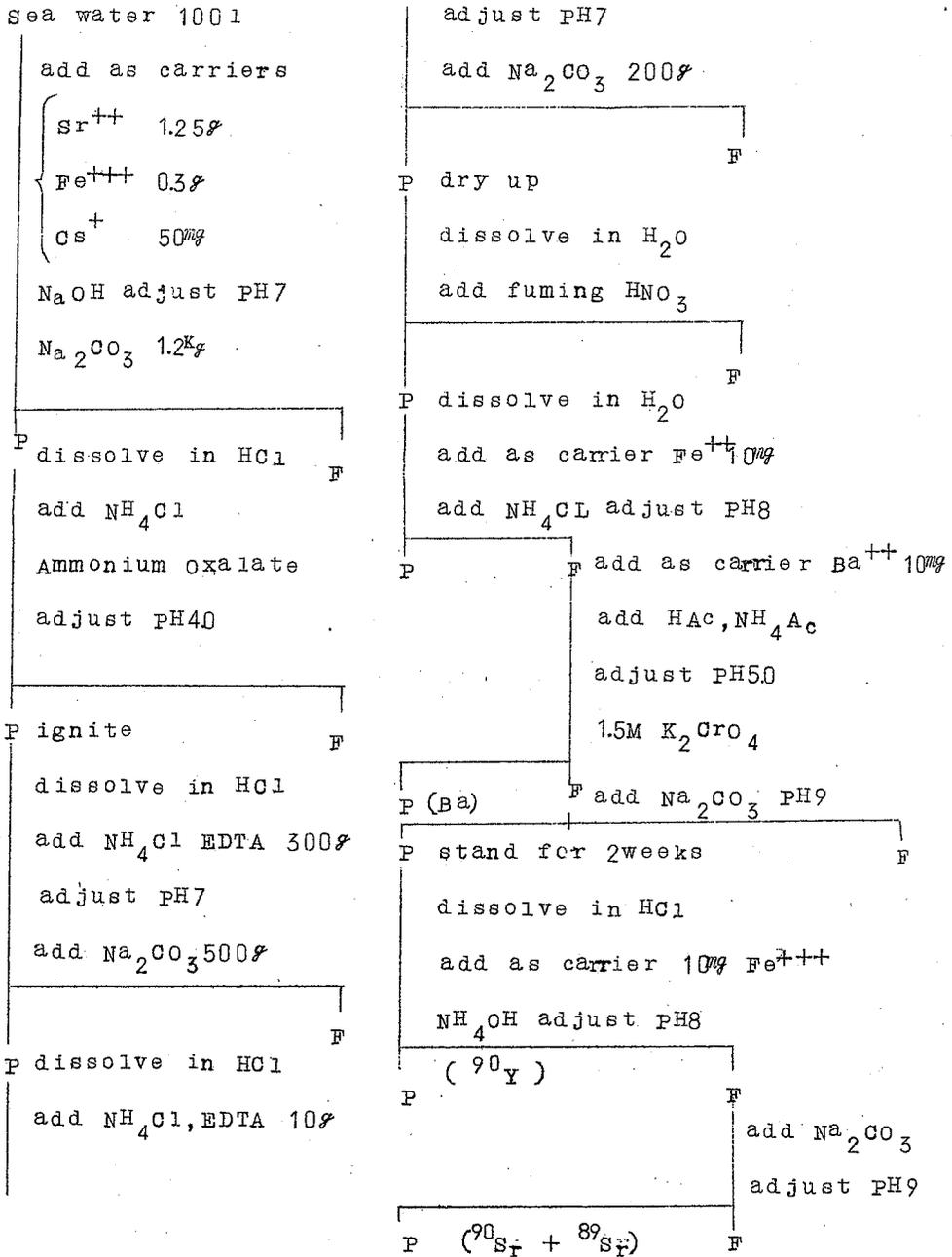
その原因は多量のマグネシウム、カルシウムの共存による妨害である。

演者らは、三宅-杉浦、Bowen-Sugihara、日向野らの分析法を検討した結果、三宅杉浦たちが先に用いたシュウ酸塩による分離法がすぐれていることをみとめたので、これに基づいて、微量の Sr-90 をふくむ海水の分析法を確立した。

この方法によれば、数十リットル乃至数百リットルの海水から 80% の収率で Sr-90 を定量することができる。シュウ酸塩の分離法を確立する前に EDTA によるマグネシウムおよびカルシウムのマスクングを試みたが、その試みはすべて失敗に終わった。その理由は収率が甚だ不安定で、再現性とばしいことによる。

シュウ酸塩を用いる方法の分析順序は次の通りである。放射能は 20cm の鉄板とテンチコイソデニス型ガイガーカウンターでとりまいた薄膜ガイガーカウンターで測つた。

海水中のSr-90の分析順序



目下この方法により、北太平洋の数箇所の水についてSr-90の分析を続行中である。

### 3.7. 放射性落下物と気象との関係について

(東教育大理)○三宅泰雄

(気象研)猿橋勝子・葛城幸雄・金沢照子

三宅、猿橋、葛城(1958)は、成層圏から対流圏への人工放射性物質の移入のメカニズムとして、局地的な大気じよう乱の影響を指摘した。もし、その影響があるとすれば、鉛直方向に大きいじよう乱を伴う寒冷前線型の降雨によつて、より多くの放射性落下物がもたらされるであろう。小山、外林両氏(1959)は、新潟の放射能雨について、寒冷、温暖両前線を比較し、放射能は寒冷前線型に多く、温暖前線型に少ないことをみとめた。演者らは東京の雨について同様の研究を行つたので、その結果を報告する。

東京では、年間1400万至200mmの降雨があり、放射性落下物の90%は、これらの降雨によりもたらされるので、雨の型により分類し、放射性落下物との関係を求めた。落下物の放射能は $S_r - 90$ に換算して比較を行つた。また、雨量の影響をのぞくために、三宅、杉浦、猿橋、金沢(1957)の用いた方法により気柱内の放射性物質の濃度を求めて比較した。

温帯性低気圧が北緯40度より北を、東北進する場合は、顕著な寒冷前線を伴うことが多い。寒冷前線ぞいの雨は一般にしゆう雨性で雨量が少ない。このときは、大気の上方向に大きなじよう乱があると考えられ、雲は垂直方向に10Kmも発達することが多い。降雨時間が短かくて、雨滴が大きいので、雨毎の放射性物質の降水量は小さいが、比放射能値( $S_r - 90 / \mu c / l$ )は最大を示す。

低気圧が北緯40度より南を東北進或は、東進する場合は、

1. 温暖、寒冷両前線の影響をうける場合、
2. 温暖前線のみの影響をうける場合、
3. 本邦南岸ぞいの停帯前線による場合、

がある。これらは、一般に温暖前線成分がまざつているため、地雨性で降雨時間が長く、雨量も多い(平均20mm~30mm)。この時は、降雨時間が長く、常に新しい空気の補給があるので、 $S_r - 90$ の降水量は大きい、比放射能値は小さい。

寒冷前線に伴う雨は、雨量は、全雨量の、10%以下であるが、 $S_r - 90$ の降水量におい

ては、全体の約30%をしめ、この型の降雨が、大気中の汚染を能率よく地上に運ぶことを示している。



## 第 2 日 (10月9日) 午後

### 3.8. ビキニの灰の放射化学的研究(第4報)

#### α 放射体について

(静岡大放射化研) 塩川孝信・八木益男

昨年の本会においてはビキニの灰中の長半減期核種及び誘導放射性物質について報告した。しかし α 放射体については、その詳細は検討しなかつたので核分裂より5年後にその分析を行つた。分析は担体法とイオン交換樹脂法によつて行い、核種の確認はプロポーショナルカウンターと α 線スペクトルを測定することによつて行つた。

分析試料は漁具であるボンデン竹先端のシニコを今回新たに灰化して用い、その灰10gを硝酸に加熱して溶解し、不溶性残渣は炭酸ナトリウム溶解後同様に硝酸に溶かして合併した。担体を添加後蒸発乾固して、先ずルテニウムを過塩素酸蒸溜法で分離し、次いで珪酸を除去した。硫化物族を0.3N酸性で硫化水素によつて分離したのちアンモニアで水酸化物を沈澱させられた沈澱を硝酸にとかしアンモニアで再沈澱した。沈澱に5%塩酸ヒドロキシルアミン5滴を加えて攪拌し、プルトニウムを3価に還元したのち、少量の塩酸に溶解し、鉄をイソプロピルエーテルで抽出除去した。次いで溶液を殆んど蒸発乾固し残渣を硝酸4滴を含む9N塩酸10mlに溶解し、プルトニウムおよびネプツニウムを4価に酸化した。その溶液を陰イオン交換樹脂に通し、少量の硝酸を含む9N塩酸で洗浄し、希土類元素を分離した。次いでプルトニウムは沃化アンモニウムを含む9N塩酸で、ネプツニウムは3N塩酸で、またウラニウムは、0.25N塩酸でそれぞれ溶出分離した。各フラクションは蒸発乾固しプロポーショナルカウンターで測定した。

その結果、プルトニウムフラクションから7380cpm、ネプツニウムフラクションから800cpm、ウラニウムフラクションから50cpmのα線が検出された。他方β放射体についても分析を行つた結果、10gのシニコの灰から次の表に示すような長半減期核種が検出された。

核種	半減期	検出量 (cpm)	核種	半減期	検出量 (cpm)
$^{60}\text{Co}$	52年	3,000	$^{137}\text{Cs}$	29年	2,500
$^{90}\text{Sr}$	28年	15,000	$^{144}\text{Ce}$ ( $^{144}\text{Pr}$ )	285日	37,000
$^{90}\text{Y}$	64時	15,000	$^{147}\text{Pm}$ , $^{155}\text{Eu}$	2.6年, 1.7年	8,000
$^{106}\text{Ru}$ ( $^{106}\text{Rh}$ )	1.01年	3,100	$^{237}\text{Np}$	$2.2 \times 10^6$ 年	80
$^{125}\text{Sb}$	29年	4,000	$^{239}\text{Pu}$	24,360年	7,380
$^{125m}\text{Te}$	53日	4,000	*U		5

### 3.9 降水中の $^7\text{Be}$ について

(東教育大理)

三宅泰雄 ○ 大塚泰郎

宇宙線によつて大気中に生じた  $^7\text{Be}$  (半減期53日、0.48MeV $\gamma$ ) が降水中に存在することを、Arnold等(1955)が予測し且つ実測した。(1)その後各地で雨水、(2)、(3)、(4)雪(5)、空気(6)の試料について測定が行われ、また  $^7\text{Be}$  の生成に関する理論的な考察(7)、(8)もなされていて、Lal等(1958)は大気柱の断面積1cm<sup>2</sup>当り毎秒  $7 \times 10^{-2}$  個の  $^7\text{Be}$  の原子が生成されることを導き出した。(8)  $^7\text{Be}$  の測定には、降水試料にベリリウムと鉄のキャリアーをくわえたアンモニアで共沈させて上澄を傾しやし去り、沈澱を塩酸で溶解して不溶性の塵埃を濾過し去り、濾液を強アルカリ性にしてキャリアーの鉄及び第三属を水酸化物として沈澱させて除き更に硫化アンチモンによるスキヤベンジを1回、水酸化鉄によるスキヤベンジを2回行つて、核分裂生成物による汚染を去除く。最後にアルミニウムを除くのに酢酸クロロフォルムによる抽出を行い、濃硝酸で硝酸ベリリウムとし、焼灼して酸化ベリリウムにし

て重量を秤つて収率を求め、濾紙上に乗せて計数する。使用した計数装置は島津製のシングルチャンネルγ線スペクトロメーターでシンチレーターはHarshaw の1½"φ×1½"1の  
活化ナトリウム、光電子増信管はDumont 6292である。尚、GM計数管で汚染を調べ  
る。

降水試料3651を広さ12m<sup>2</sup>の塩化ビニール製の屋根で採取し、測定の結果4.1±1.5  
cpmの実測値を得て、降水中に<sup>7</sup>Beが存在することを確認した。尚、そのときの収率は1  
4%、GM管による測定では汚染はなかつた。

その後は、試料をPH3にしてベリリウムのキャリアをくはえ、陽イオン交換樹脂(Dowex  
50, X-8)を通して塩酸で溶離し、陰イオン交換樹脂(Dowex 2, X-10)と、水酸化  
鉄によるスキヤベンジ、及びアセチルアセトン-ベンゼンによる抽出によつて汚染を除去して  
測定を継続中である。結果について気象学的な考察を行いたい。

#### 文 献

- (1) J. Arnold and H. Alsalih, Science 121, 451 (1955)
- (2) P.S. Goel et al, Nucl, Phys. 1, 196 (1956)
- (3) R. Thon and P. Zutshi, Tellus 10, 99 (1958)
- (4) P.S. Goel et al, Tellus 11, 91 (1959)
- (5) R. Nilsson et al, Ark. Fysik 11, 445 (1957)
- (6) A.J. Cruikshank et al, Canad, J. Chem, 34, 214 (1956)
- (7) P.A. Benioff, Phys. Rev, 104, 1122 (1956)
- (8) D. Lal et al, J. Atmosph. Terr. Phys. 12, 306 (1958)

#### 40. 最近の50年間に於ける大気中の放射性炭素の濃度変化の測定

(学習院大理) 木越邦彦 ○ 富倉芳雄

最近の50年間の $^{14}\text{C}$ の大気中の存在量については、いわゆるSuess効果によつて1900年頃から1945年近くまで減少を示し、1945年以降、現在に至るまで核兵器の実験によつて増加を示すことが、いままでに少数の測定例であるが確められている。これらの変化は地域的にも異なることが考えられ、またその変化量を正確に測定することは地球化学的な問題についても、また放射線障害に関する問題についても重要なデータを与えるので本測定を行った。

試料としては、所在と切り取った年月日の明確な樹木について、年輪を順に切り取り、50年前から現在に至る一連の試料をとつて用いた。

測定は試料をアセチレンガスとして一気圧の下で比例計数管(400ml)に入れ、 $\beta$ 線の測定によつて $^{14}\text{C}$ の濃度測定を行った。測定についてはアセチレンの製法及び計数管の特性などについて詳細に説明する。

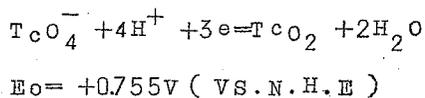
得られた結果は、大阪市郊外及び秋田で生育した樹木についての測定結果を報告する。これらの試料についての結果は、北アメリカ及びニュージーランドで測定された結果と大体一致する。

#### 4.1. アルカリ溶液におけるテクネチウム(IV)の析出電位と<sup>99</sup>Tcの 0.3 Mev β-標準線源の製作

(東大教養) 杉浦二郎・湯本 浩

トレーサー用標準β単一線源として<sup>99</sup>Tcは半減期の長いこと、単一エネルギーのβ線放出核であることにより、薄い金属板上に電着できれば、均一で自己吸収や後方散乱の少ない標準試料となり得る。筆者らはToliotの電解槽を用いて、K<sup>99</sup>TcO<sub>4</sub>溶液より5μ厚の銀板上に<sup>99</sup>Tcを電着させ、その際電着物のβ放射能を測ることにより、電着速度及び電着の完了を測定確認した。この結果、白金、銀及び銅板上へのテクネチウムの電着最大量は電解液中に存在するテクネチウムの全量と見做すことができること、陰極電位—電着速度法を用いて過テクネチウム酸の還元による析出電位を-0.75V (U.S.S.C.E)と求め得た。又電着完了後電流を切断し、陰陽極を短絡して電着テクネチウムの水酸化ナトリウム中への溶解速度としらべると極めて大きいことがわかった。これらの結果から電着テクネチウムは酸化テクネチウム(IV)であるとして、(金属テクネチウムは過酸化水素、水酸化ナトリウム溶液でとけるがアルカリだけではとげにくい。)

電解の反応過程は



とすることが出来る。

## 4.2. 表面汚染計用標準試料

(電気試験所) 由良 治・前田浩五郎

放射線障害防止のための汚染度測定に用いるいわゆる表面汚染計に就いては既にJIS Z 4303~6に規定され、各種の方式による測定について夫々その規準に関するとりきめが行われている。この規定では汚染計用標準材料として $U_3O_8$ を一様に金属板に $\alpha$ 線の自己吸収を無視し得る程度に塗附して作製し、使用することになって居る。その塗附面積は $50\text{cm}^2$ 以上で放射能強度としては $300\text{d.p.m}$ 以下である事が必要で、更に補助的標準として $R_{aD+E+F}$ を使用してもよい事が規定されている。吾々は之等の標準試料の作製について種々吟味し、所期の結果を得たので報告する。

先ず $U_3O_8$ についてはJISの規定が極めて少い放射能量であるため、 $50\text{cm}^2$ に一様に塗附する事については余り良好な結果は得られなかつた。それで電解による金属表面へのいわゆる電着による方法について吟味した。金属担体としては $Cu$ 、 $Pt$ 、 $Ag$ 、 $Al$ 、 $Pd$ 等を用い、電解液は $0.2\text{M}$  蔞酸アンモニウム溶液に酢酸ウラニウム $0.25\text{mg}/\text{cc}$   $U$ を溶解しアンモニアで $\text{PH}$ を $8.0\sim 8.5$ に整えたものを用いた。電解は常温で、電流密度 $20\sim 40\text{mA}$ で行い、この結果、 $Ag$ 、 $Pt$ 、 $Cu$ 、 $Pg$ 、 $Al$ の順で電着状況がよく、 $Pd$ 、 $Al$ に於ては余り良好な結果ではなかつた。之等について $2\pi$ ガスフローカウンターにより、 $\alpha$  decayについて絶対測定を行い、各金属について $30\sim 100\text{d.p.m}/\text{cm}^2$ のものを得ることが出来、JIS規格を十分に満足するものを得た。

又 $R_{aD}$ については、硝酸鉛の $1\text{mg}/1\text{cc}$   $Pb$ の硝酸酸性溶液にゼラチンを少量添加したものを電解液とし、 $2\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流密度で4時間程度の電着を行つた。パラジウム張り銀板を陽極とし二酸化鉛の形で電着しているのであるが、電流密度が過大であると、一旦附着したものが却つて剝離し、粗面となり密着性が良好でなくなる傾向がある。放射能の測定はウラン試料の場合と同様に $2\pi$ ガスフローカウンターを用いたが、一部については、崩壊量既知の $R_{aD}$ 標準試料との $\beta$ 線についての比較測定を行つた。この $R_{aD}$ 試料は $\beta$ 線用の標準としては適当であるが、 $\alpha$ 線用のそれとしては $R_{aF}$ が放射平衡に達する迄長時間を要する不便さがあるが、然しウラン標準試料に比較して広範囲の放射能強度の標準試料を得ることが出

来る。

#### 4.3. 吸収法による $\alpha$ 線エネルギー測定を試み

(静岡大放射化研) 塩川孝信・波多江一八郎・長谷川園彦

荷電粒子のエネルギーの正確な測定は磁場あるいは電場による偏倚でなされる。吸収曲線によつて行われる方法は磁場および電場による偏倚程の精度は得ることができないが、大がかりな装置を必要とせず比較的簡易に行うことができる。しかし理論的にはとほしいきらいはあるが簡単な方法として $\alpha$ 線のエネルギー測定の方法として吸収法をとりあげた。

$\alpha$ 線源としてパラジウム鍍金した銀板上に蒸着された $^{210}\text{Po}$ とビキニの灰より分離された $^{239}\text{Pu}$ をガラス皿にとつたものを使用した。吸収体に用いた薄膜はポリエチレン膜、コロジオンを酢酸アミル溶液にとかし水面上に落し乾燥させた薄膜を用いた。 $\alpha$ 放射能の測定は理研製ローリツツエン検電器を用いておこなつた。

毎回の測定においてジオメトリーを一定にするために同位置に試料を置くことは勿論のことさらに $\alpha$ 線を小さい孔を通して進行方向一定のもののみを測定するために試料と膜の上に、直径約3mmの小孔のあいたアルミ板をのせた。同一条件に於て得られた2つの曲線( $^{210}\text{Po}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ )については、測定試料の状態、厚み、試料皿、試料と検電器の間における散乱等によつて決るものであるがこれらのものを定量的に関係づけることは困難であるので定性的な検討をおこなつた。

$\alpha$ 線の吸収曲線で今迄得られた結果ではポリエチレン膜では指数函数曲線を描くが、比較的薄いコロジオン膜に於いて厚みをましていくと放射能の強さが急激に減少する曲線を描く、又2つの放射線源から試料皿による影響は $\alpha$ 線の後方散乱が大なる程急激に減少する曲線を得た。これらの吸収法により飛程を測定し、エネルギーを求めた。

#### 4.4. トリウムの計数法に関する研究

##### 第一報 フローガスおよびサンプリングについて

( 都立大・理 ) 佐々木恒孝○村松三男・今村重祥

トリウム ( $^3\text{H}$ ) は、その  $\beta$  線のエネルギーがとくに弱いために、確実な測定方法や測定条件がきまつていない。従来、気体計数法や液浸シンチレーション等による測定が報告されているが、これらはいずれも特殊な装置を必要とし、あるいは特殊な技術上の困難をともなり(例えば気体計数におけるmemory効果) 欠点がある。また実験目的によつては、試料を固体、または液体のままで計数しなければならない場合がある。このような事情をも考慮して、octadecane-1- $^3\text{H}$  を試料とするトリウムの固体、および液体計数の研究を行った。octadecane-1- $^3\text{H}$  は octadecanol から作った octadecyl magnesium bromide と  $^3\text{H}_2\text{O}$  の反応で作った。フローカウンターは日本無線医理学研究所の DG-1001 型  $2\pi$  カウンターを用い、フローガスは、メタン、スタン PP (東亜燃料製、プロパン+プロピレン)、スタン BB (全、ブタン+ブチレン)、市販プロパンガス (燃料用) 等の炭化水素類を用いた。

得られた結果を概略すると、つぎのようである。

- 1、炭化水素ガスはフローガスとしてすぐれた性能を有する。そのプラトーの幅は Q ガスや PR ガスより広く、特性曲線の再現性もかなり良い。市販プロパンガスも同じような傾向を有し、価格の低廉なことから、その利用価値は大きい。ただこの場合、ポンベの封切直後のガス (前溜分) にくらべると充分使用したあと (後溜分) は Gain がいくらかおちるが、実用上はたいして障害にならない。
- 2、ガスはフローラー中 octadecane にいくらか吸収されるが、それによる計数率の変動はほとんどない。
- 3、炭化水素ガスに水分を含ませると、計数特性は立上り部分でいくらか変化するが、プラトー部ではその為の影響は全くない。これは、水と共存し、または水にとけているトリウム標識化合物をそのまま計数することを可能ならしめるものである。
- 4、octadecane-1- $^3\text{H}$  の量を増加させると、計数率は最初、みかけ上の厚さ (

sample thickness) に比例して増加する (infinitely thin region) が、大体  $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  以上の sample thickness では増加率はにぶり、ついには厚さには無関係にほぼ一定の計数率を示す領域になる (infinitely thick region)

- 5、 infinitely thin region では試料のひろげ方、物理的状态、その他の諸条件に無関係に、試料の量だけで計数率はきまる。octadecane- $1-^3\text{H}$  が  $^3\text{H}_2\text{O}$  から定量的合成可能なることを考慮するとき、この領域の利用によるトリチウム定量の可能性が、この実験事実から暗示される。
- 6、 これに対し、infinitely thick region では計数率は試料表面の微妙な変化によつてもいちじるしい影響をうける。これはオクタデカン中でわずか数  $\mu$  しかないトリチウムの最大飛程に基因するものである。

#### 4.5. 天然産カリウムの放射能測定

(神奈川県工業試) 小泉 勇

カリウム中に 0.012% 存在する放射性核種  $^{40}\text{K}$  の放射能を検出して、カリウム含量を決定する試みについては、既にいくつか報告があるが、それらの報告では、 $\gamma$  線に対する計数管の計数効率が極めて低いこと、 $^{40}\text{K}$  から放射される  $\gamma$  線が全放射線の 12% にすぎないこと等の為、実測される計数は殆んど  $\beta$  線で、 $\gamma$  線計数は無視出来る程極めて僅かであるとし、 $\gamma$  線の計数寄与に対しては考慮せず、計数カリウム含量の直線函数として表わされるとしている。

しかし、 $\beta$  線と  $\gamma$  線では試料による自己吸収効果が著しく相違するから、計数成分は試料厚と共に変化する筈で、この変化が著しいと、上述の直線性が成立しない場合が考えられる。

そこで、試料厚による計数成分の変化を確める目的で、同一カリウム塩溶液の液厚を種々変

えて測定を行った。その結果は、計数と液厚間の関係が $\beta$ 線単独の場合に期待される如き飽和曲線とはならないで、無限試料厚に於いても、計数は液厚と共に緩やかな増加を示し、その量は試料厚約5倍の変化に対し2.5%程度であった。この増加分は $\gamma$ 線によるものと考えられる。

使用した計数管は小型で、壁厚も極めて小さく、高 $\beta$ 線感度、低 $\gamma$ 線感度という点では、従来の諸報告に見られる計数管以上と思われるので、試料厚による計数成分の変化とその影響は、天然産カリウムの放射能測定に於ても、考慮する必要がある様に思われる。

そこで、試料密度が異なる場合に、カリウム含量を計数の直線函数と見做すことにより生ずる誤差を推定する為、或は逆に、要求する精度を得るに許される試料密度の変化の巾を予知する為に次式を得た。

$$D\% = \frac{(\rho/\rho') - 1}{(\rho/\rho') (N_{\beta}/N_{\gamma}) + 1} \times 100$$

但し、 $\rho$ 、 $\rho'$ ：試料密度、 $N_{\beta}$ 、 $N_{\gamma}$ ： $\rho$ に於ける $\beta$ 線及び $\gamma$ 線計数、 $D\%$ ： $\gamma$ 線の寄与を無視して、 $\rho'$ に於ける計数から推定した $\rho'$ に於ける計数値の、実際の計数からの偏位百分率。

尚、式から予想される値が、要求に満たない時は、計数をカリウム含量の直線函数と見做すことは不可であるから、その時は、密度に関する補正曲線を作成する手続が必要となる。

又、上の測定では、background が、試料容器の径によつて変化することが認められた。即ち、 $^{40}\text{K}$ 線の最大飛程以下の液厚では、液厚が小になるに従い、B.G.は急増した。これは容器材質のガラス中の放射性核種 ( $^{40}\text{K}$ と思われる) によるものと考えられる。

試料内の各点に於ける幾何学効率が、計数管からの距離により異なる。このことを考慮して、推定した計数値は実測値と良く一致した。

#### 4.6. ウラン鉱物のガンマスペクトロメトリー

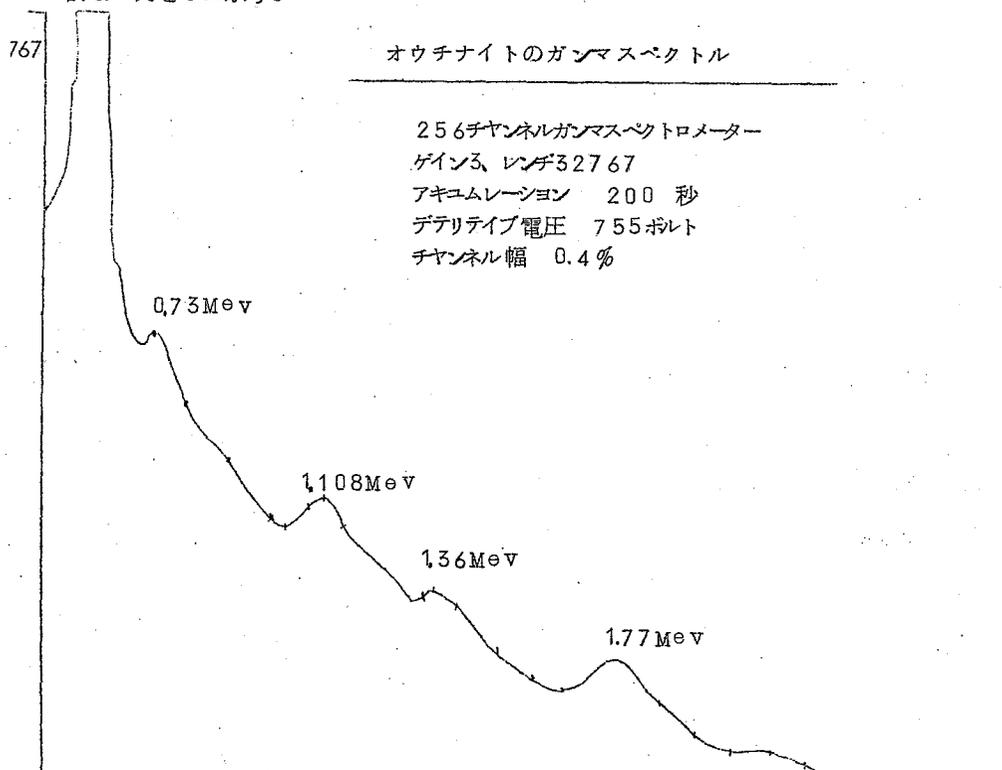
(原子力研) ○村上悠紀雄・鈴木佳枝

〔目的〕 ウラン崩壊生成物のガンマ線スペクトルにより本邦産ウラン鉱の探鉱の目的を達するような野外用計器をつくるためにウラン鉱物のガンマスペクトルをしらべた。

〔使用計器〕 ニュクレアシカゴ社製1チャンネルガンマスペクトロメーター (NaI直径2"×2") 及びRGL社製256チャンネルガンマスペクトロメーター (直径1¼in、厚さ2in:井戸の直径¾in、深さ1½in)

〔試料〕 ビッチブレンド、オウチナイト、その他ウラン鉱物、酸化ウラン、イエローケーキ、人形峠産オウチナイト、その他ウラン鉱石、U、Raの崩壊生成物中の若干

〔結果〕 ウランの崩壊生成物中、主にRaC ( $^{214}\text{Bi}$ ) によるガンマ線の中1.78MeVによる光電ピークは比較的他のものにさまたげられず判然とみられる。そこで主としてこの光電ピークによる上記目的の達成の可能性をこれら10種類の試料についてしらべた。その代表的な一例を下に示す。



又U、Raの崩壊生成物よりRa B及びRa Cをわけこれについて上の推測にもとづく1.78 Mevの光電ピークをたしかめた。その分離方法はジチゾン抽出法、 $\text{BiCl}_3[\text{CO}(\text{NH}_3)_6]$ 法などによつた。この他妨害になるものには $^{40}\text{K}$ (1.46 Mev) Th C”(2.20 Mev)その他が考えられる。

本邦に今までみられたウラン鉱石についてこの方法を用いた結果をのべる。

参考文献 A / cont (1958) P / 1249

#### 4.7. ( $\gamma, \gamma$ ) 反応による放射化について (第9報)

( $\gamma, \gamma$ ) 反応によるコバルト60  $\gamma$ 線の線量測定法 (その2)

(原子力研) ○吉原賢二、(教育大学理) 池田長生

われわれはコバルト60の $\gamma$ 線によりインジウムに( $\gamma, \gamma$ )反応が起ることを利用して、逆に、この反応によりコバルト60の $\gamma$ 線の線量測定ができることを示した。しかし、この場合はある特定位置の線量率をそのたびごとにほかの線量測定法で決定し、それと比較することによつて線量をさだめるという不便さがあった。今回は( $\gamma, \gamma$ )反応にあずかる共鳴吸収線に関しての放射化断面積が一定であることに着目し、この値を用いて計算によつて放射能測定値からその位置の線量率をさだめる方法について検討した。

計算の方法はつぎの通りである。

生成放射能の飽和値をA (dps) インジウムの原子数をN、全体の放射化断面積を $\sigma$  ( $\text{cm}^2$ )  $\gamma$ 線フラックスをf (quanta/ $\text{cm}^2$  sec) とすると、

$$A = N \sigma f \quad (1)$$

であるから、

$$f = A / N \sigma \quad (2)$$

fはquanta/cm<sup>2</sup>・sec単位であるから、コバルト60γ線の線量率として r/hr 単位になおし、これをDであらわすと、

$$D = \frac{1}{435 \times 10^5} \cdot \frac{A}{N\sigma} = 4.56 \times 10^{-28} \frac{A_0}{\sigma} \quad (3)$$

である。ただしA<sub>0</sub>はインジウム1g当りの飽和生成放射能であらわす。

σはすでに報告した<sup>1)</sup>ように、

$$\sigma = \frac{1}{2} n_0 (\phi_1 + \phi_2) \frac{\sigma_a}{\mu} e^{-(\mu - \mu') R_0} (1 - e^{-\mu R_0}) \quad (4)$$

で与えられる。ただしn<sub>0</sub>は散乱体の電子密度、φ<sub>1</sub>、φ<sub>2</sub>はコバルト60の1.33 Mevと1.17 Mevのγ線からインジウムの(γ, γ)反応の1.04 Mevの共鳴吸収線が生じるようなコンプトン散乱に関する電子の散乱断面積である。σ<sub>a</sub>は<sup>115</sup>Inの1.04 Mevの共鳴吸収線に関する放射化断面積である。μは1.33 Mevと1.17 Mevのγ線に対するその物質の平均の吸収係数、μ'は1.04 Mevのγ線に対する吸収係数である。R<sub>0</sub>は散乱体の厚さである。

いろいろな物質について厚さをかえたときのσの変化を(4)式によつて計算し、図を作つておく。この図からある厚さの散乱体によるσを求めることができる。

σ<sub>a</sub>はMiller, Waldmanら<sup>(2)</sup>によつて10<sup>-22</sup> cm<sup>2</sup>のオーダーのもので与えられている。しかしくわしい値は知られていないので、これを求めるために日本原子力研究所の1万キュリーのコバルト60γ線源の中央にインジウムを置いて放射化し、(4)式からσ<sub>a</sub>を逆算した。その結果0.6 × 10<sup>-22</sup> cm<sup>2</sup>となつた。

1万キュリーコバルト60γ線源のまわりにインジウムをおいて、つぎの三つの場合について線量測定をおこなつた。(a)しゃへいなしの場合、(b)0.7 g/cm<sup>2</sup>の黄銅しゃへいのある場合、(c)3.8 g/cm<sup>2</sup>の黄銅しゃへいのある場合。

その結果、計算によつて得られた線量率はビクトリーン線量率計により測定された線量率と大体±15%以内の誤差で一致することがわかつた。ビクトリーン線量率計の誤差が±15%であることを考えるとかなりよい一致であるといえる。

1) 吉原, 池田; Radioisotopes 7, 17 (1958)

2) W.C. Miller, B. Waldman; phys. Rev. 75, 425 (1949)