

水中 ^{90}Sr 放射能濃度の ^{90}Y β 線測定による迅速簡便測定法

平山 英夫^{1,*}, 近藤 健次郎¹, 海野 泰裕², 松村 宏¹,
岩瀬 広¹, 柚木 彰², 佐々木 慎一¹

Rapid and Simple Measurement Method of ^{90}Sr Concentration in Water
by Measuring β -rays from ^{90}Y

Hideo HIRAYAMA^{1,*}, Kenjiro KONDO¹, Yasuhiro UNNO², Hiroshi MATSUMURA¹,
Hiroshi IWASE¹, Akira YUNOKI² and Shinichi SASAKI¹

¹High Energy Accelerator Research Organization, 1-1 Oho, Tsukubashi, Ibaraki 305-0801, Japan

²National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 1-1-1 Umezono, Tsukubashi, Ibaraki 305-8568, Japan

(Received February 28, 2015; accepted in revised form April 20, 2015; published online June 30, 2015)

A rapid and simple method to measure the concentration of ^{90}Sr in water by measuring β -rays from ^{90}Y was presented. Under the situation that $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$, ^{134}Cs and ^{137}Cs are the main radionuclides included in the water sample, only β -rays from ^{90}Y can transmit through 1.5-mm-thick polyethylene. From this fact, it is possible to measure β -rays from ^{90}Y using a β -ray detector, such as the GM-counter, set beneath the 1.5-mm-thick bottom of the water bottle containing the sample with $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$. The acrylic resin collimator having 0 cm, 1.00 cm, 1.50 cm or 3.00 cm diameter was made to detect β -rays at the fixed region of the GM-counter used. Contributions from bremsstrahlung produced by β -rays and γ -rays from radionuclides such as ^{134}Cs and $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ are removed by subtracting the count rate measured with a 1.00 cm acrylic resin collimator without a hole as the background count rate. The developed method was studied using the bottle routinely used at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. It was confirmed that the developed method can be applied to measure the ^{90}Sr concentration in water to the order of several Bq/cm³ if ^{134}Cs and ^{137}Cs concentrations are less than or equal to the $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ concentration.

KEYWORDS: Sr-90, Y-90, concentration in water, β -ray, GM-detector, range of β -ray, acrylic resin collimator

I. 緒 言

福島第一原子力発電所(以下、「F1 発電所」という。)では、様々な放射能濃度の ^{90}Sr を含む多数の試料水中の ^{90}Sr 放射能濃度を迅速に測定することが必要になっている。対象となる ^{90}Sr の放射能濃度は排水基準レベル(3×10^{-2} Bq/cm³)以下から数十 MBq/cm³ と広範囲に渡っている。また、測定対象の水は、原子炉建屋滞留水、セシウム除去装置(サリー)等により Cs を除去した RO 濃縮水(以下、「RO 濃縮水」という。), 多核種除去設備(アルプス)で処理した水や RO 濃縮水タンクの堰内溜り水等多岐に渡っている。これら試料水には ^{90}Sr および ^{90}Y 以外に様々な放射能濃度の ^{134}Cs および ^{137}Cs 等が含まれており、

また、 ^{90}Sr と ^{90}Y 間の放射平衡の到達度や、化学的な溶存状態も試料水で大きく異なることが考えられる。排水することを前提とした試料水の場合は、排水基準を担保できる測定法を使用することが必要であるが、 ^{90}Sr の重要性から、排水できない放射能濃度の高い ^{90}Sr を含む試料水についても、 ^{90}Sr の放射能濃度を測定することが必要である。東京電力(株)は、これらの試料水中の ^{90}Sr の測定を、多段階の化学分離を必要とする放射性ストロンチウム分析法¹⁾、化学的操作により ^{90}Sr を分離濃縮し、 β 核種分析装置で測定する手法²⁾、カチオンペーパーを用いて ^{90}Sr を分離測定する簡易測定法³⁾ および全ベータ法⁴⁾ によって行っている。

前 2 つの手法は化学分離や高度な測定技術が要求されるとともに、測定結果がでるまで相当の時間が必要で、緊急な対応はできない。また、カチオンペーパー法は溶存イオン量や溶存状態に大きく依存する難点がある。このような

¹ 高エネルギー加速器研究機構

² 国立研究開発法人 産業技術総合研究所

* Corresponding author, E-mail: hideo.hirayama@kek.jp

背景から、これまで F1 発電所から発生する多数の試料水中の ^{90}Sr 放射能濃度を評価する方法として、全ベータ測定法が用いられてきた。しかしながら、全ベータ測定法は、文献 4 の序論に書かれているように、測定対象としては環境試料を想定しており、排水基準以下であることを確認するために用いられる手法である。その本来の目的は、別測定が必要かどうかを判断することに限定されている手法であり、排水できないような高い放射能濃度の $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ を測定するという観点からは、適切な手法とはいえない。このような状況から、広い濃度範囲の ^{90}Sr 放射能濃度を迅速で簡便に測定する手法の開発が望まれている。

本論文で提案する手法は、 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 、 ^{134}Cs および ^{137}Cs が主要な放射性核種である試料水について特別な前処理を行わず、試料水を所定の容器に入れ GM 計数管で測定するもので、溶液中の ^{90}Sr と ^{90}Y の永続平衡が確認されていない場合でも、5 時間程度の間隔を置いた 2 回の測定により、数 Bq/cm^3 以上の ^{90}Sr を迅速かつ簡便に測定できる新しい測定手法である。東京電力(株)が採用している測定法以外にも、液体シンチレーションカウンタで β 線のエネルギーの違いを利用して核種を弁別する迅速分析法⁵⁾があるが、排水中の測定を目的としたものであり、迅速とはいっても 3~4 日を要する手法である。本手法は、化学的操作が不要で、容器に入れた状態で測定可能なことからロボットによる操作と合わせた多量の試料を測定するシステムとすることも可能であり、F1 発電所内で発生する多くの試料水中の ^{90}Sr 放射能濃度を取得するための時間を大幅に短縮できる可能性がある。

以下では、本手法の概要と、放射能濃度既知の $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 、 ^{134}Cs または ^{137}Cs を含む試料水を使って検討した結果を示す。

II. 水中 ^{90}Sr 放射能濃度の ^{90}Y の β 線による測定方法

1. 測定方法の概要

本手法は、 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 、 ^{134}Cs および ^{137}Cs が主要な放射性核種である試料水において、 ^{90}Sr 、 ^{134}Cs および ^{137}Cs の β 線が、1.5 mm 以上厚さのポリエチレンで実効的に除くことができること、 ^{90}Y の β 線の最大飛程が $1 \text{ g}/\text{cm}^2$ であることを使って ^{90}Y の β 線の数測定することにより得られた ^{90}Y の放射能濃度から ^{90}Sr の放射能濃度を測定する方法である。

具体的には、 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ を含む試料水を底の厚みが 1.5 mm 程度の容器に入れ、1 cm 厚みのアクリルコリメータ付きの β 線検出器により GM 計数管の限定した領域で ^{90}Y の β 線数を測定する。あわせて 1 cm 厚みの開口部のないアクリルにより ^{90}Y の β 線を遮蔽して水試料中の ^{134}Cs および $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ 等からの γ 線および β 線による制動放射 X 線による計数値を求め、これをバックグラウンドと

して差し引くことにより ^{90}Y の β 線の計数率を求める。放射能濃度既知の試料水を使用して求めた換算係数を用いて ^{90}Y の β 線の計数率を放射能濃度に変換する。 ^{90}Sr と ^{90}Y が永続平衡に達していることが確認されていない場合には、同一条件での測定を 5 時間程度の間隔を置いて行い、 ^{90}Sr と ^{90}Y の親娘の関係を用いて、2 回の ^{90}Y の濃度から ^{90}Sr の濃度を求める。この場合、得られた ^{90}Sr 濃度と最初の測定時の ^{90}Y 濃度から、最初の測定時における ^{90}Sr と ^{90}Y 間の放射平衡の到達度に関する情報もあわせて求めることができる。

2. 対象となる β 放出核種

F1 発電所において、排水できないような高い放射能濃度の $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ を含む水としては、RO 濃縮水を含む滞留水、護岸地下水および貯留水の漏えいに関連したもの等がある。RO 濃縮水中の放射性核種は、タービン建家滞留水からセシウムを除去した汚染水で、トリチウムを除くと、 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ がほとんどで、そのほかに 1/1,000 以下の ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{54}Mn 、 ^{60}Co 、 $^{106}\text{Ru}/^{106}\text{Rh}$ および ^{125}Sb を含んでいる⁶⁾。護岸地下水中では、トリチウムを別にすると、最も放射能濃度が高いのが $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ で、場所により同程度の ^{134}Cs および ^{137}Cs を含む場合がある。その他の核種としては、 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ の 1/1,000 以下の ^{54}Mn 、 ^{60}Co 、 $^{106}\text{Ru}/^{106}\text{Rh}$ および ^{125}Sb が検出されている場合がある⁷⁾。事故直後には、最大エネルギーが 1.495 MeV の β 線を放出する ^{89}Sr が ^{90}Sr に匹敵する程度含まれていたと思われるが、半減期が 50.53 d でありすでに 28 半減期を過ぎていることから無視できると考えられる。検出されているこれらの核種について、 β 線の最大エネルギーとその放出割合および γ 線のエネルギーとその放出割合を Table 1⁸⁾ に示す。最大エネルギーが 1 MeV 以上の β 線を放出する核種は、 ^{90}Y 以外では、 ^{60}Co 、 ^{106}Ru の子孫核種である ^{106}Rh と ^{137}Cs である。測定が必要な試料水中での ^{60}Co および $^{106}\text{Ru}/^{106}\text{Rh}$ 放射能濃度は、 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 放射能濃度の 1/1,000 以下であるので β 線測定ではその寄与は無視できる。また、排水できないような高い放射能濃度の $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ を含む試料水を対象とすることから、自然放射能である ^{40}K の β 線の寄与も無視できる。

以上の状況を踏まえて、 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 、 ^{134}Cs および ^{137}Cs を主要な核種として含む試料水中の β 線を測定する方法を検討する。

3. 試料水中の ^{90}Sr 、 ^{134}Cs および ^{137}Cs からの β 線と ^{90}Y からの β 線の分離方法

放出割合が 5.6% である ^{137}Cs からの最大エネルギー 1.176 MeV の β 線を別にすると、 ^{90}Sr 、 ^{134}Cs および ^{137}Cs からの β 線の最大エネルギーは 0.6 MeV 以下である。0.6 MeV の β 線の最大飛程は、

$$R(\text{g}/\text{cm}^2) = 0.407 E^{1.38} \quad (1)$$

Table 1 β -rays and γ -rays from main radionuclides identified in water samples at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

Nuclide	Half-life	Decay mode	Maximum β -ray energy (MeV)	Emission rate	γ -ray energy (MeV)	Emission rate
^{54}Mn	312.03 d	EC		1.0	0.836	1.0
^{60}Co	5.2713 y	β^-	0.318	0.999	1.173	0.999
			1.491	0.0012	1.333	1.0
^{90}Sr	28.79 y	β^-	0.546	1.0		
^{90}Y	64.00 h	β^-	2.28	1.0		
^{106}Ru	373.59 d	β^-	0.0394	1.0		
			2.407	0.100	0.512	0.204
^{106}Rh	29.80 s	β^-	3.029	0.081	0.662	0.099
			3.541	0.786	1.05	0.016
			Others		Others	
			0.0953	0.134	0.176	0.069
			0.125	0.058	0.38	0.015
			0.131	0.179	0.428	0.298
			0.241	0.016	0.463	0.106
^{125}Sb	2.75856 y	β^-	0.303	0.404	0.601	0.178
			0.446	0.072	0.607	0.05
			0.622	0.136	0.636	0.113
			Others		0.671	0.018
					Others	
			0.0888	0.273	0.563	0.084
			0.415	0.025	0.569	0.154
			0.658	0.702	0.605	0.976
^{134}Cs	2.065 y	β^-	Others		0.796	0.866
					0.802	0.087
					1.365	0.03
					Others	
^{137}Cs	30.1671 y	β^-	0.514	0.944		
			1.176	0.056		
$^{137\text{m}}\text{Ba}$	2.532 m	IT			0.662	0.851

より⁹⁾, 0.2 g/cm^2 である。 E は, MeV単位の β 線の最大エネルギーである。一方, 最大エネルギーが 2.25 MeV である ^{90}Y の β 線の最大飛程は,

$$R(\text{g/cm}^2) = 0.542 E - 0.133 \quad (2)$$

より⁹⁾, 1.05 g/cm^2 である。これらの数字は, あくまで β 線の最大エネルギーに対するものであること, これらの核種が水中に含まれている場合には, 水中でエネルギーが減少することも考慮する必要があるので実効的な飛程とは異なる。より実態に近い減衰を調べるために, 電磁カスケードモンテカルロ計算コード egs5¹⁰⁾を用いて, 1 Bq/cm^3 の放射能濃度の ^{90}Sr , ^{90}Y , ^{134}Cs または ^{137}Cs を含む 1.5 cm 厚の試料水から出てくる β 線のポリエチレン透過量を計算した。F1発電所の水試料では考慮の必要はないが, 参考のために ^{89}Sr の β 線についてもあわせて計算した。3.4%の塩分を含む密度 1.035 g/cm^3 の海水中に, これらの核種が含まれている場合についてもあわせて計算した。計算では, ポリエチレンの外側に達した電子数を計算しているの

で, β 線との散乱により発生した二次電子および制動輻射X線による二次電子も含まれている。結果をFig. 1に示す。図から明らかなように, ^{90}Y と同じ放射能濃度の ^{90}Sr , ^{134}Cs あるいは ^{137}Cs が存在している場合でも, 1.5 mm (0.136 g/cm^2)のポリエチレン透過後のそれぞれの β 線数は, ^{90}Y の β 線数の1/100以下である。通常の水と海水の違いは, ほとんどみられなかった。したがって, 対象となる ^{134}Cs および ^{137}Cs の放射能濃度が ^{90}Y の濃度と同程度以下であるとする, 1.5 mm 以上の厚さのポリエチレン透過後の β 線を測定することにより, ^{90}Y の β 線数を計測することができると思われる^{a)}。

4. 制動輻射X線および γ 線の影響の除去

β 線の測定器は, 感度の違いはあるが, γ 線やX線にも感度をもっている。水中の ^{90}Sr および ^{90}Y の β 線により水や容器等で制動輻射X線が発生すること, 試料水中に様々な濃度の ^{134}Cs や $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ 等の γ 放出核種が含ま

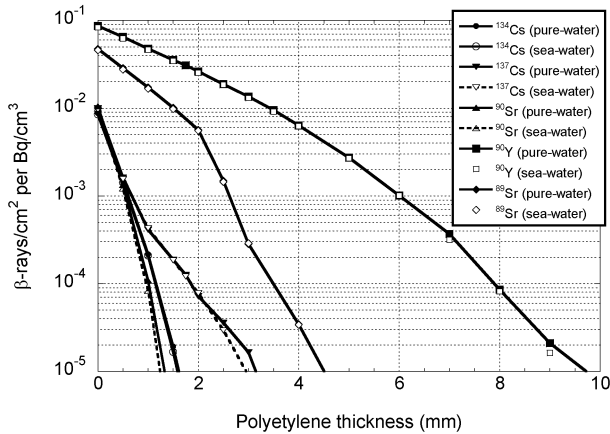


Fig. 1 Calculated β -ray flux with egs5 from 1.5 cm pure-water or sea-water including ^{90}Sr , ^{90}Y , ^{89}Sr , ^{134}Cs , or ^{137}Cs with concentration of 1 Bq/cm³ as a function of polyethylene thickness inserted

れている場合には γ 線が放出されることから、 β 線数を測定するためには、これら γ 線および制動放射X線(以下、「光子」という。)による計数をバックグラウンドとして差し引く必要がある。エネルギーが高い ^{90}Y の β 線も、最大飛程より厚い1 cmのアクリルにより完全に除くことができる。光子は、1 cmのアクリルにより若干減衰するものの、その割合は β 線に比べるとはるかに少ない。このことから、1 cmのアクリル透過後の測定結果を光子によるバックグラウンド計数值として使用することができると考えられる。

5. 試料水中の ^{90}Sr 放射能濃度と ^{90}Y 放射能濃度の関係

試料水中の ^{90}Sr と ^{90}Y が永続平衡に達していることが確認されている場合には、1回の測定で得られた ^{90}Y の放射能濃度から ^{90}Sr の放射能濃度を得ることができる。永続平衡に達していない場合でも、以下に示すように一定時間(5時間程度)後に2回目の測定を行うことにより ^{90}Sr の放射能濃度を得ることができる。

半減期は、 ^{90}Sr は28.79年で、 ^{90}Y は64.00時間であることから、それぞれの崩壊定数は、 $2.75 \times 10^{-6} (\text{h}^{-1})$ および $1.08 \times 10^{-2} (\text{h}^{-1})$ である。

時刻 $t=0$ における1 cm³当たりの ^{90}Sr の原子数を $N_{\text{Sr-90}}(0)$ 、 ^{90}Y の原子数を $N_{\text{Y-90}}(0)$ とする。 t 時間経過後

の ^{90}Y の1 cm³当たりの原子数 $N_{\text{Y-90}}(t)$ は、

$$N_{\text{Y-90}}(t) = \frac{\lambda_{\text{Sr-90}}}{\lambda_{\text{Y-90}} - \lambda_{\text{Sr-90}}} N_{\text{Sr-90}}(0) [\exp(-\lambda_{\text{Sr-90}} t) - \exp(-\lambda_{\text{Y-90}} t)] + N_{\text{Y-90}}(0) \exp(-\lambda_{\text{Y-90}} t) \quad (3)$$

となる。 $\lambda_{\text{Y-90}} \gg \lambda_{\text{Sr-90}}$ なので、 $\lambda_{\text{Y-90}} - \lambda_{\text{Sr-90}} \approx \lambda_{\text{Y-90}}$ とすると、

$$\begin{aligned} A_{\text{Y-90}}(t) &= \lambda_{\text{Y-90}} N_{\text{Y-90}}(t) \\ &= \lambda_{\text{Sr-90}} N_{\text{Sr-90}}(0) [\exp(-\lambda_{\text{Sr-90}} t) - \exp(-\lambda_{\text{Y-90}} t)] \\ &\quad + \lambda_{\text{Y-90}} N_{\text{Y-90}}(0) \exp(-\lambda_{\text{Y-90}} t) \\ &= A_{\text{Sr-90}}(0) [\exp(-\lambda_{\text{Sr-90}} t) - \exp(-\lambda_{\text{Y-90}} t)] \\ &\quad + A_{\text{Y-90}}(0) \exp(-\lambda_{\text{Y-90}} t) \end{aligned} \quad (4)$$

である。ここで、 $A_{\text{Y-90}}(0)$ は時刻 $t=0$ での、 $A_{\text{Y-90}}(t)$ は時刻 t での ^{90}Y の放射能濃度、 $A_{\text{Sr-90}}(0)$ は時刻 $t=0$ での ^{90}Sr の放射能濃度である。(4)式より、 ^{90}Sr の放射能濃度は、

$$A_{\text{Sr-90}}(0) = \frac{A_{\text{Y-90}}(t) - A_{\text{Y-90}}(0) \exp(-\lambda_{\text{Y-90}} t)}{\exp(-\lambda_{\text{Sr-90}} t) - \exp(-\lambda_{\text{Y-90}} t)} \quad (5)$$

となる。5時間の間隔を置いて測定した場合、

$$A_{\text{Sr-90}}(0) = \frac{A_{\text{Y-90}}(t) - 0.054 \times A_{\text{Y-90}}(0)}{0.946} \quad (6)$$

となる。 $A_{\text{Y-90}}(0)$ と $A_{\text{Y-90}}(t)$ を実測すれば、(6)式により ^{90}Sr の放射能濃度を求めることができる。

6. 溶液中の ^{90}Sr と ^{90}Y 間の放射平衡の到達度

試料中の ^{90}Sr と ^{90}Y の永続平衡の到達度は、汚染水の来歴を知る情報として使用できる可能性がある。本手法の測定では、試料中の ^{90}Sr 濃度の測定だけでなく最初の測定時での ^{90}Sr と ^{90}Y 間の放射平衡の到達度を以下のようにあわせて得ることができる。

$t=0$ での ^{90}Y と ^{90}Sr の放射能比 f は、(5)式より

$$f = \frac{A_{\text{Y-90}}(0)}{A_{\text{Sr-90}}(0)} = \frac{A_{\text{Y-90}}(0) [\exp(-\lambda_{\text{Sr-90}} t) - \exp(-\lambda_{\text{Y-90}} t)]}{A_{\text{Y-90}}(t) - A_{\text{Y-90}}(0) \exp(-\lambda_{\text{Y-90}} t)} \quad (7)$$

である。 t の値によらず、数値として(7)式により f を求めることが可能であるが、放射平衡に近い場合には、測定間隔が短いと計数值の統計誤算が影響して正確な値とならない可能性がある。(4)式と(5)式より、 $A_{\text{Y-90}}(t)$ と $A_{\text{Y-90}}(0)$ の比は、 f をパラメータとして、

$$\begin{aligned} \frac{A_{\text{Y-90}}(t)}{A_{\text{Y-90}}(0)} &= \frac{A_{\text{Y-90}}(0) / f [\exp(-\lambda_{\text{Sr-90}} t) - \exp(-\lambda_{\text{Y-90}} t)]}{A_{\text{Y-90}}(0)} \\ &\quad + \frac{A_{\text{Y-90}}(0) \exp(-\lambda_{\text{Y-90}} t)}{A_{\text{Y-90}}(0)} \\ &= \frac{\exp(-\lambda_{\text{Sr-90}} t) - \exp(-\lambda_{\text{Y-90}} t)}{f} \\ &\quad + \exp(-\lambda_{\text{Y-90}} t) \end{aligned} \quad (8)$$

となる。**Fig. 2**に、 t が5, 10, および24時間の場合の $A_{\text{Y-90}}(t)/A_{\text{Y-90}}(0)$ の f による変化を示す。 f が0.5以上の場合に f の値を精度よく求めるためには、少なくとも10時間、できれば24時間後に2回目の測定とすることがわかる。

^{a)} 本手法が対象とする環境とは異なるが、 ^{89}Sr が ^{90}Y と同じ濃度で存在している場合には、本手法による測定結果は、 ^{90}Y 濃度を過大評価する。**Fig. 1**より、1.5 mmのポリエチレン透過後の ^{89}Sr の β 線数は、 ^{90}Y の β 線数の約30%なので、 ^{90}Sr と永続平衡状態の ^{90}Y の濃度を30%程度過大評価することになる。事故発生時点で ^{89}Sr が ^{90}Sr と同じ濃度だったとしても、1年後には、 ^{89}Sr の濃度は ^{90}Sr の0.7%以下となるので、 ^{90}Y 濃度の過大評価は、永続平衡状態では0.2%、平衡状態への到達度が10%という極端な場合でも2%程度となる。

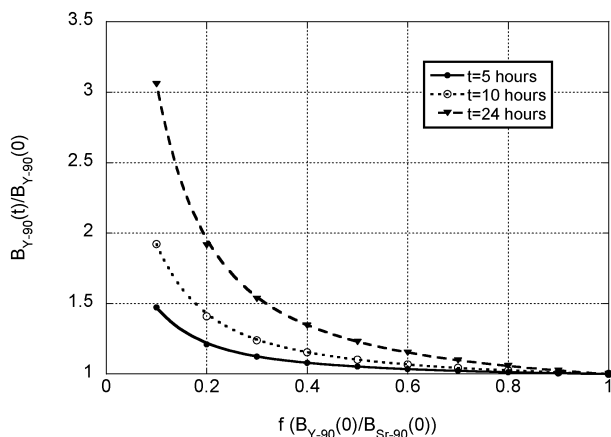


Fig. 2 Increase of ^{90}Y concentration after t hours as the function of equivalent ratio between ^{90}Y and ^{90}Sr

水中に ^{90}Sr および ^{90}Y がある場合には、それらの主として化学的性質の違いからコロイド生成、懸濁物への吸着等により、濃度の偏りが存在する場合がある。また、両者の化学的特性の違いを利用した分離装置等で処理された直後の水では、 f の値は、1 よりも大きい場合もあり、またその逆のこともあり得る。このことは、 ^{90}Sr 放射能濃度の結果には影響しないが、1 より大きい f の値が得られた場合には、溶液中の ^{90}Sr と ^{90}Y 間の放射平衡の到達度という点では扱い上注意が必要である。

III. 計測システム

1. β 線検出器

β 線検出器には様々なものがあるが、ルーチンの測定に使用することから扱いが容易なことが望ましい。以下の実証実験では、 β 線に対する感度が高いことも考慮して汚染検査に用いられている大面積端窓形有機 GM 管を検出器としている日立アロカメディカル製の TGS-146B¹¹⁾ を β 線の検出器として使用した。溶液中の ^{90}Y の β 線を精度よく測定するためには、線源である溶液と検出器の位置関係が重要である。検出器の決まった領域で β 線を検出するために、厚さ 1.00 cm のアクリル製コリメータを作成して実験に使用した。コリメータの中心は、GM 検出器の中心および水試料容器の中心と常に一致するように治具を工夫した。コリメータとしては、直径 1.00 cm, 1.50 cm, 3.00 cm および BG 測定用の開口部のない 4 種類を用いた。Fig. 3 に使用したコリメータと治具を示す。図中のアルミニウムのホルダーが、容器を決まった位置に置くために用いた治具である。

2. 使用する容器

多数の試料を対象とすることから、F1 発電所で試料水の容器として日常的に使用されている Fig. 4 に示す容器(コクゴ社製 JK-ボトル広口 白¹²⁾、以下、「T-容器」という。)を使用した。T-容器はポリエチレン製で、底面の



Fig. 3 Picture of acrylic resin collimators and aluminum holder used for measurement

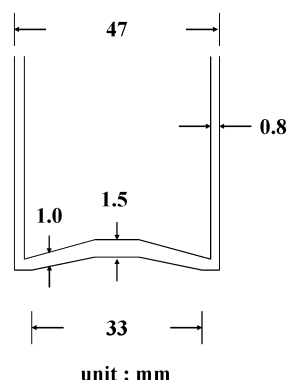


Fig. 4 Schematic diagram of T-bottle used

中心部は 1.5 mm で周辺部は 1.0 mm の厚さとなっており、この底面が ^{90}Y 以外の β 線を除く遮蔽として機能する。T-容器に上記の濃度の試料水を 25 cm³ 入れて測定を行った。水面の高さは約 1.6 cm となる。最も飛程の長い ^{90}Y の最大飛程が水中で 1 cm なので、1 cm 以上であれば水面の高さは結果に影響しないと考えられる。

底面が一様でないことの影響を調べるための測定では、放射能試料測定に標準的に使用されている底面厚さが一定の U8 容器をあわせて使用した。

3. 試料調製上の留意点

本手法は、 ^{90}Sr の崩壊により生成した ^{90}Y が試料水中に均一に分布していることが前提になっている。対象となる試料水に含まれる ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{90}Sr 等の放射性同位元素はおおむね無担体の状態で存在し、また、液性はほぼ中性と考えられるが、RO 濃縮塩水のように中性から弱アルカリ性のももある¹³⁾。無担体の元素は、元素が本来もっている物理化学的挙動を示さず、コロイド生成、懸濁物への吸着等により溶液内が不均一になっている場合があることが報告されている^{14,15)}。特に、無担体 ^{90}Y は、液性がアルカリ性の場合、コロイド生成、懸濁物への吸着等により溶液内が不均一になっていることがよく知られている^{14,16)}。

RO濃縮塩水については、 ^{90}Y ばかりでなく、他の核種についても同様に相当の割合で、コロイド状、あるいは微粒子に吸着した状態で存在していることが示されている¹³⁾。

本測定手法で重要な点である、測定試料水内の ^{90}Y の均一性を確保するためには、

- ① コロイド生成を抑制するため液性を酸性にする。
- ② 微粒子等への吸着を防ぐため微量の担体を添加する。

ことが重要である。

以下の実証実験では、 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 、 ^{134}Cs または ^{137}Cs を含む試料水を塩酸性(約 $\text{pH}=1$)とし、Cs, SrおよびYの担体を添加した溶液を使用した。

IV. 実証実験と結果

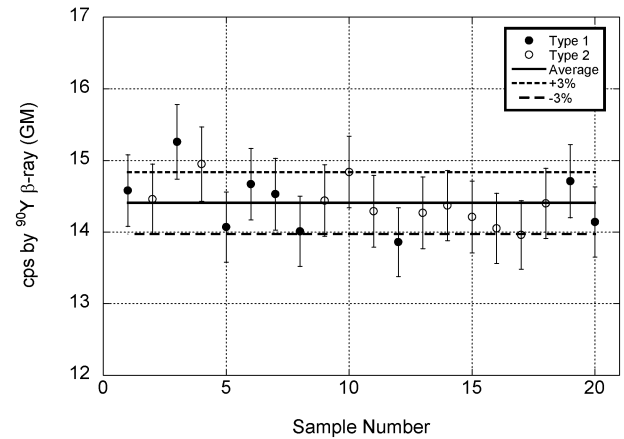
1. 使用した線源試料と測定方法

本手法の妥当性を検討するために、 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ については、放射能濃度138.0, 523.9, 5,244および11,660 Bq/cm³に調整した放射平衡にある $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 溶液水を、 ^{134}Cs および ^{137}Cs については、それぞれ7,405 Bq/cm³および10,800 Bq/cm³に調整した溶液水を用いて以下の実験を行った。溶液水はいずれも0.1Mの塩酸溶液であり、 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 溶液水では塩化ストロンチウムと塩化イットリウムがそれぞれ0.05 mg/g、 ^{134}Cs 溶液水と ^{137}Cs 溶液水では0.1 mg/gのキャリア濃度になるように調整した。溶液水中の $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 放射能濃度は液体シンチレーションカウンタを用いた効率トレーサ法により測定した。一方、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能濃度は、あらかじめ計数効率が校正された高純度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法により測定した。放射能濃度の拡張不確かさ(包含係数2)は、11,660 Bq/cm³の $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ と ^{134}Cs は1.4%で、その他は1.5%である。

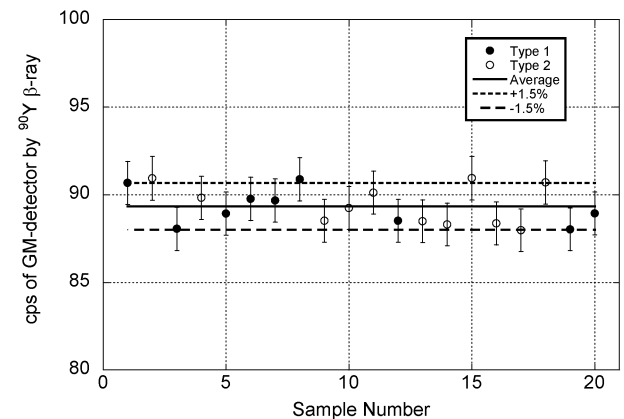
測定は、各容器とコリメータの組み合わせごとに3回測定し、あらかじめ2線源法により測定した不感時間(225 μsec)を用いて不可時間の補正を行った。

2. 容器による結果のばらつき

III-2節で述べたように特別な専用容器ではなく、T-容器を使った測定を前提にしていることから、使用するT-容器底厚のばらつきが測定結果のばらつきをもたらす可能性が懸念される。その程度を調べるために、523.9 Bq/cm³の濃度の $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ を含む20個の試料を用いて測定を行った。使用した容器には、No.1タイプとNo.2タイプという表示があり両者で若干の重量の違いがある。タイプの違いが結果に影響するかどうかをあわせて検討した。Fig. 5にコリメータ直径が1.50 cmおよび3.00 cmの場合の結果を示す。図中のエラーバーの大きさは、1分間の計数率の統計による不確かさである。当然のことながら、測定結果のばらつきは統計不確かさの影響を受けるので、直径の小さいコリメータの方がばらつきは大きくなる。今



(a) 1.50 cm diameter collimator



(b) 3.00 cm diameter collimator

Fig. 5 Count rate unevenness of ^{90}Y β -rays from water including $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ with concentration of 523.9 Bq/cm³ due to T-bottle used

(a) 1.50 cm diameter collimator, (b) 3.00 cm diameter collimator.

回の測定では、直径3.00 cmコリメータの場合で1.5%、直径1.50 cmコリメータの場合で3.0%程度であり、統計不確かさと同程度であることがわかった。No.1タイプとNo.2タイプの系統的な違いはみられなかった。以上の結果から、T-容器のばらつきによる影響は無視できることがわかった。

3. T-容器の底面構造の影響

測定に使用したT-容器は、Fig. 4に示したように、底面が平坦でなく、中心部が盛り上がりなおかつ周辺よりも厚い構造になっている。この構造の計数率へ影響を調べるために、523.9 Bq/cm³の $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ の入ったT-容器および底が平らなU8容器を用いた測定結果と、egs5で計算したコリメータ出口での β 線数とを比較した。egs5の計算は、試料水中に、一様に ^{90}Sr と ^{90}Y が存在するとして、1.5 mmのポリエチレンの背後に厚さ1.00 cmのアクリルコリメータがある形状で、コリメータ出口での毎秒当たりの β 線数を求めたものである。T-容器はポリエチレン製

で、底面厚さは中心部では 1.5 mm、周辺部では 1.0 mm の厚さである。U8 容器は、ポリスチレン製で、底面の厚さは一様で 1.5 mm である。Table 2 にコリメータの直径を変えた場合の測定値と計算値の比較を示す。どちらの容器も計算結果との違いは 10% 以下であるが、計算が U8 容器の底面を想定していることもあり、U8 容器の方が全体的によく一致している。直径 1.00 cm および 1.50 cm のコリメータの場合に U8 容器の計数値の方が高いのは、T-容器の中央部が若干盛り上がっている影響と思われる。一方、直径 3.00 cm のコリメータで、T-容器の計数値の方が高くなっているのは、T-容器の底面の周辺部のポリエチレンの厚さが薄いことが寄与していると思われる。以上の結果から、T-容器の底面形状が平坦でないことは、結果に一定の影響があるものの、使用する容器を用いて換算係数を決定しておけば大きな不確かさ要因にはならないと考えられる。

4. 放射性セシウムの影響

試料水中に ^{134}Cs や $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ が含まれている場合の γ 線の影響を調べるために、 $7,405 \text{ Bq/cm}^3$ の ^{134}Cs または $10,800 \text{ Bq/cm}^3$ の $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ を含む試料水を用いて測定を行った。Table 3 に、 10 kBq/cm^3 当たりの ^{90}Y の β 線による計数率と ^{134}Cs または $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ の計数率の比較を示す。どのコリメータの場合でも、 ^{134}Cs および $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ の計数率は、 ^{90}Y の β 線の計数率の 4% 以下であ

Table 2 Comparison between measured count rate and number of β -rays calculated with egs5

Diameter of collimator (cm)	Type of bottle	Count rate (A) cps for 524.6 Bq/cm^3	egs5 calculation (B) β -rays for 524.6 Bq/cm^3	A/B
1	T-bottle	4.5 ± 0.3	5.0 ± 0.2	0.91
	U8	4.9 ± 0.2		0.97
1.5	T-bottle	14.4 ± 0.9	15.8 ± 0.3	0.91
	U8	15.4 ± 0.4		0.98
3	T-bottle	89 ± 2	90 ± 1	0.99
	U8	82.8 ± 0.6		0.92

る^{b)}。直径 3 cm のコリメータを使用した場合について、egs5 を用いて、 ^{134}Cs および ^{137}Cs の γ 線の 1 cm のアクリルによる減衰を計算した。1.5 mm のポリエチレンの背後に 1 cm のアクリルがある場合とない場合の γ 線のエネルギーの比は、 ^{134}Cs と $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ とともにいずれも 0.95 であった。一方、直径 3 cm のコリメータと開口部のない 1 cm のアクリルの場合の計数率の比は、 ^{134}Cs では 0.85 で $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ では 0.78 と計算で得られた透過するエネルギーの減衰より大きくなっている。この理由は、Fig. 1 から明らかな様に、1.5 mm のポリエチレンの背後では、わずかであるが透過した β 線があり、 β 線と γ 線に対する GM 検出器の感度の違いから β 線の影響が主として影響しているためである。このことは、 $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ の方が減衰が大きいことから確認できる。したがって、1 cm のアクリルによる γ 線の減衰は、egs5 で得られた 5% 程度であると考えられる。

^{134}Cs または ^{137}Cs の濃度が $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ の濃度より高い場合には、 γ 線の影響が増えるが、この場合には、以下の方法で過大評価を避けることができる。ただし、100 倍以上になると、 ^{134}Cs および ^{137}Cs の β 線の寄与が無視できなくなるので、この方法による補正は適用できない。

(1) Ge 検出器等により水溶液中の ^{134}Cs および ^{137}Cs の濃度を測定する。(多くの場合、この濃度測定は行われていると考えられる。)

(2) それぞれの濃度と濃度から計数率への換算係数 (Table 3 より、直径 3.00 cm のコリメータの場合、 ^{134}Cs : 0.0062 , $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$: $0.0038 \text{ cps per Bq/cm}^3$) を用いて、 ^{134}Cs および $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ の γ 線による計数率をもとめる。

(3) コリメータでの計数率から開口部のないコリメータでの測定率を引いた計数値からさらに上記で求めた計数値を差し引いた値を、 ^{90}Y の β 線による計数率とする。

5. 計数率と ^{90}Y 濃度との直線性の確認と ^{90}Y の β 線計数率から濃度への換算係数の決定

本手法による ^{90}Y 放射能濃度と GM 検出器の計数率の関係を調べるために、濃度 138.0, 523.9, 5,244 および 11,660 Bq/cm^3 の $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ を含む試料を用いた測定を

Table 3 Comparison of count rate between ^{134}Cs , ^{137}Cs and $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$

Collimator diameter	cps for 10 kBq/cm^3				
	^{90}Y (A)	^{134}Cs (B)	$^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ (C)	(B)/(A)	(C)/(A)
1.00 cm	86.8 ± 1.1	-4.92 ± 2.29	-4.80 ± 0.57	—	—
1.50 cm	276 ± 0.3	7.22 ± 1.76	2.25 ± 1.20	2.6%	0.8%
3.00 cm	$1,824 \pm 13$	61.6 ± 3.1	38.2 ± 2.6	3.4%	2.1%

^{b)} 直径 1.00 cm のコリメータで、マイナスの値になっているのは、コリメータで得られた計数値から開口部のない 1.00 cm 厚さのアクリルの場合の計数値を差し引いたためであり、実質両者が同じということを示していると考えられる。

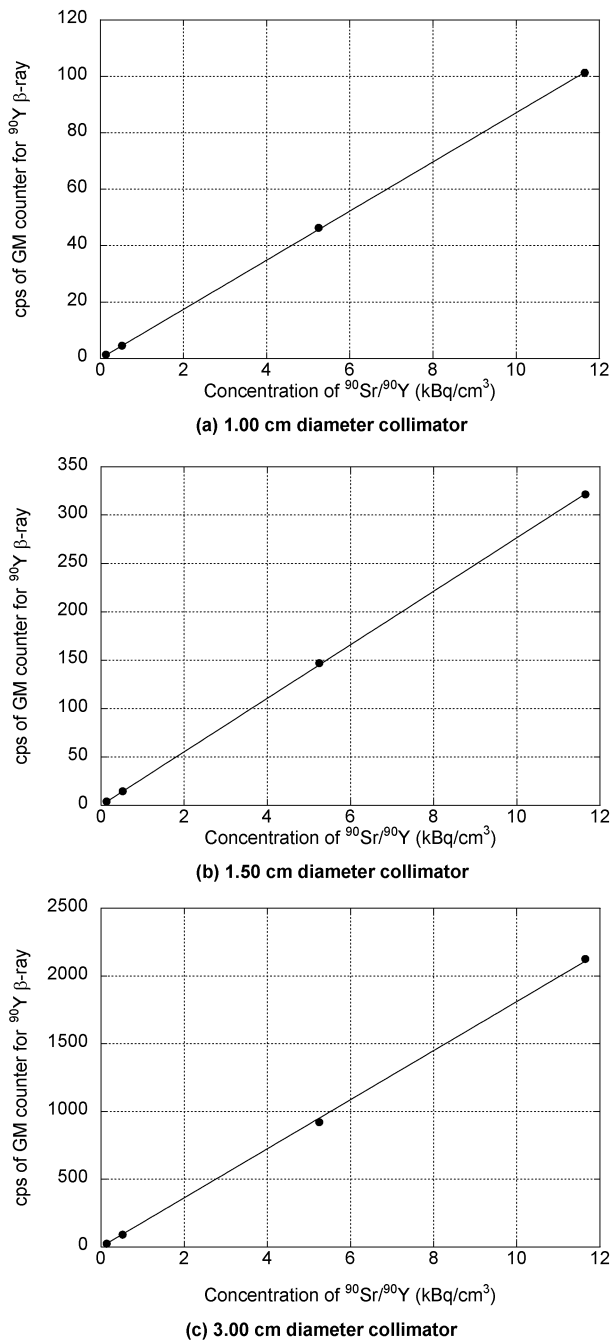


Fig. 6 Relation between $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ concentration and count rate of ^{90}Y β -rays
(a) 1.00 cm diameter collimator, (b) 1.50 cm diameter collimator, (c) 3.00 cm diameter collimator.

行った。**Fig. 6**に結果を示す。どの直径のコリメータの場合も、よい直線性があることがわかる。1 Bq/cm³当たりの計数率は、直径1.00 cm, 1.50 cmおよび3.00 cmのコリメータに対して、それぞれ0.00871, 0.0277および0.181 cpsという結果であった。

測定結果から最小二乗法により計数率から濃度への換算係数として、

直径1.00 cmのコリメータ：

$$115 \pm 0.4 \text{ Bq/cm}^3 \text{ per cps}$$

直径1.50 cmのコリメータ：

$$36.2 \pm 0.1 \text{ Bq/cm}^3 \text{ per cps}$$

直径3.00 cmのコリメータ：

$$5.52 \pm 0.04 \text{ Bq/cm}^3 \text{ per cps}$$

が得られた。

6. 本手法の検出限界

検出限界は、

$$n = (k/2) \left(k/t + \sqrt{(k/t)^2 + 4n_b(1/t + 1/t_b)} \right) \quad (9)$$

で表される。ここで、 n は検出限界の計数率(cps)、 k は信頼水準、 t は試料の測定時間、 t_b はバックグラウンドの測定時間、 n_b はバックグラウンド計数率(cps)である。実証実験を行った場所の試料を設置していない場合の測定環境バックグラウンドレベルは、1.3 cpsであった。F1発電所の測定現場では、この数倍である可能性がある。本手法では、開口部のないコリメータでの光子による計数率をバックグラウンド計数率に含めて考える必要がある。試料水中の $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ の β 線による制動放射X線によるバックグラウンド計数率は、おおよそ0.0007(cps per Bq/cm³)なので、 $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ の濃度が1,800 Bq/cm³以下では、測定環境のバックグラウンドが支配的になる。また、 ^{134}Cs または $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ の場合には、 γ 線によるバックグラウンド計数率はそれぞれ、0.036および0.014(cps per Bq/cm³)であるので、 ^{134}Cs の場合は35 Bq/cm³以下で、 $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ の場合は91 Bq/cm³以下で測定環境のバックグラウンドが支配的になる。測定環境のバックグラウンドが支配的な状態で、 $k=3$ とし、試料水とバックグラウンドの測定時間を10分とすると、測定環境のバックグラウンドレベルが1.3 cpsの場合には、検出限界計数率は0.21 cpsに、3 cpsの場合は0.31 cpsとなる。最も感度が高い3 cm コリメータの換算係数5.52(Bq/cm³ per cps)から、それぞれの検出限界放射能濃度は1.1および1.7(Bq/cm³)に相当する。当然のことながら、検出限界は試料水中の ^{134}Cs および ^{137}Cs 濃度と測定環境のバックグラウンドレベルに依存するが、 ^{134}Cs および ^{137}Cs の γ 線の寄与が測定環境のバックグラウンドより小さい場合には、本手法による検出限界は、数Bq/cm³程度であるといえる。

V. 結 論

試料水中の主要な核種が $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 、 ^{134}Cs および ^{137}Cs であるという条件下で、1.5 mmのポリエチレンにより ^{90}Y の β 線以外の β 線を除去できることを踏まえ、特別な操作なく $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ を含む試料水を容器に入れた状態で測定することにより、迅速簡便に広い範囲の ^{90}Sr の放射能濃度を測定する新たな手法を提案した。精密に放射能濃度を評価した試料水とF1発電所で日常的に使用しているT-容器を用いた実証実験を行い以下の結論が得られた。

(1) F1発電所で使用されているT-容器を使用した場合の容器ごとのばらつきは、統計不確かさの範囲内であり、

結果に影響を与えない。

(2) T-容器底部の平坦でない構造は、底部が平坦な U8 容器を使った場合と若干の違いがあるが、その影響は小さく、使用する容器を使って「換算係数」を決定しておけば、結果の不確かさに影響をもたらさない。

(3) 試料水中および容器等で β 線により発生する制動放射 X 線の寄与は、開口部のないコリメータによる計数値をバックグラウンドとして差し引くことにより除くことができる。

(4) 試料水中の ^{134}Cs または $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ からの γ 線の影響は、同じ放射能濃度の $^{90}\text{Y}\beta$ 線による計数値の 4% 以下である。 ^{134}Cs または ^{137}Cs の放射能濃度が $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ の放射能濃度の 100 倍以下の場合には、 ^{134}Cs または ^{137}Cs の放射能濃度から γ 線による計数率を求め、 $^{90}\text{Y}\beta$ 線による計数値から引くことにより ^{90}Y の過大評価を避けることができる。

(5) GM 検出器の計数率と ^{90}Y 放射能濃度の関係は、どの直径のコリメータについても広い範囲の ^{90}Y 放射能濃度に対してよい直線性がある。

(6) 試料水中の ^{90}Sr と ^{90}Y が永続平衡に達していることが確認されていない場合でも、5 時間程度の間隔をおいた 2 回の測定を行うことにより ^{90}Sr の放射能濃度を得ることができる。

(7) 最も感度が高い直径 3.00 cm のコリメータを使用した場合、 ^{134}Cs および $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ の γ 線の寄与が測定環境のバックグラウンドより小さい場合には、測定環境のバックグラウンドレベルによるが、最小検出放射能濃度は数 Bq/cm^3 程度である。

この結果から、本手法は F1 発電所で測定が必要な広範囲の濃度の多数の試料水中の ^{90}Sr 放射能濃度を迅速に測定する手法として使用できると考えられるが、現場への適用に当たっては以下の点に留意することが必要である。

(1) 本手法は、 ^{90}Sr の崩壊により生じる ^{90}Y が水中に一樣に存在することを前提にしている。したがって、試料水は、測定前に「コロイド生成を抑制するため液性を酸性にし、微粒子等への吸着を防ぐため微量の担体を添加する」ことが必要である。

(2) 使用する GM 検出器の不感時間は、あらかじめ 2 線源法等により求めておき、測定結果には不感時間の補正を行うことが必要である。

(3) GM 検出器の換算係数は、同じメーカーの製品であっても感度が異なる可能性があるため、実証実験で行ったように放射能濃度が既知の試料を使って決定するか、本実証実験で使用した TGS-146B を用いて相対的に決定す

る必要がある。

(4) 溶液中の $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ の放射能濃度が非常に高い場合には、GM 検出器は不感時間の補正が大きくなるので、 ^{90}Y の β 線測定に使用することは適切ではない。この場合には、直径がより小さいコリメータ⁶⁾、または不感時間の影響を受けずに β 線を測定できる測定器(例えば、取扱が容易な電離箱サーベイメータ)を使用する必要がある。この場合、本研究で行ったような濃度が既知の試料を使って換算係数を決定することが必要である。

(5) 試料水中の ^{90}Sr -90 と ^{90}Y -90 間の放射平衡の到達度に関する情報を精度よく得るためには、少なくとも 10 時間、できれば 1 日をおいて測定を行う必要がある。

(6) 本手法は、現状の F1 発電所における試料水のように、主要な核種が $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 、 ^{134}Cs および ^{137}Cs であるという条件下で使用できるものである。今後の廃炉作業に進展の中で、核燃料物質等を含む試料水が発生した場合には、含まれる核種の相対比を調べて適用の可否を検討する必要がある。

F1 発電所にとって、 ^{90}Sr を管理することは非常に重要なことであり、試料水中の ^{90}Sr 放射能濃度を迅速に精度よく測定することが求められている。数 Bq/cm^3 以上という放射能濃度の試料水が対象になるが、化学的操作が不要で、容器に入れた状態で測定可能なことからロボットによる操作と合わせた多量の試料を測定するシステムとすることも可能であり、本手法を適用することにより結果を得るまでの時間と精度を大幅に改善することが期待できる。

— 参考文献 —

- 1) 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, 放射性ストロンチウム分析法, 放射能測定法シリーズ 2 (2003).
- 2) E. Tanaka, T. Hiramoto, T. Maruyama, "Beta-spectroscopy of low level samples by a coincidence type scintillation spectrometer," *J. Nucl. Sci. Technol.*, **1**, 305-310 (1964).
- 3) 原子力規制委員会 特定原子力施設監視・評価検討会, 汚染水対策検討会ワーキンググループ 第 5 回資料 2 (2013 年 8 月 30 日開催).
<http://www.nsr.go.jp/data/000051227.pdf> (2015.2.27 final confirmation).
- 4) 文部科学省, 全ベータ放射能測定法, 放射能測定シリーズ 1 (1977).
- 5) M. Nakano, Y. Hiyama, H. Watanabe, S. Sumiya, "Rapid analysis method of ^{89}Sr and ^{90}Sr in effluent with a liquid scintillation counter," *RADIOISOTOPES*, **59**, 313-328 (2010), [in Japanese].
- 6) 東京電力(株), RO 濃縮用モバイル型ストロンチウム除去装置について 2014 年 2 月 27 日
http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/140227/140227_02s.pdf (2015.2.27 final confirmation).
- 7) 東京電力(株), 福島第一港湾内, 放水口付近, 護岸の詳細分析結果 2015 年 1 月 30 日
http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/f1/smp/2015/images/2tb-east_15013001-j.pdf (2015.2.27 final confir-

⁶⁾ 本研究で使用した直径が最も小さい 1 cm コリメータの場合、1,000 cps を上限とすると測定できる上限は、 $10^5 \text{Bq}/\text{cm}^3$ である。egs5 の計算では、直径 0.4 cm のコリメータの場合、 $2 \times 10^6 \text{Bq}/\text{cm}^3$ まで測定可能となるという結果が得られている。

- tion).
- 8) 社日本アイソトープ協会, 「アイソトープ手帳(11版)」, 丸善 (2011).
 - 9) 中村尚司, 放射線物理と加速器安全の工学 [第2版], 地人書館, 34 (2001).
 - 10) H. Hirayama, Y. Namito, A. F. Bielajew, S. J. Wilderman, W. R. Nelson, *The EGS5 Code System*, SLAC-R-730 (2005) and KEK Report 2005-8 (2005).
 - 11) 日立アロカメディカル(株), GM サーベイメータ TGS-146B. <http://www.hitachi-alka.co.jp/products/data/radiation-002-TGS-146> (2015.2.27 final confirmation).
 - 12) コクゴ社, 研究・実験用器具製品/ボトル・容器類/PE(ポリエチレン)製ボトル(ポリ瓶)・容器/JK-ボトル 広口白. <http://www.kokugo.co.jp/shop/goods/goods.asp?goods=01-202-02-01> (2015.2.27 final confirmation).
 - 13) 経済産業省, 高性能多核種除去設備タスクフォース第2回資料2 (2014年2月28日開催). http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/140228/140228_02d.pdf (2015.2.27 final confirmation).
 - 14) G. K. Kurbatov, M. H. Kurbatov, "Isolation of radioactive yttrium and some of its properties in minute concentrations," *J. Phys. Chem.*, **46**, 441-457 (1942).
 - 15) 日本アイソトープ協会編, 放射線・アイソトープ講義と実習, 丸善, 137 (1997).
 - 16) G. K. Schweitzer, B. R. Stein, W. M. Jackson, "Studies in low concentration chemistry. III. The radiocolloidal properties of yttrium-90," *J. Am. Chem. Soc.*, **75**, 793-795 (1953).
-