

降水・落下塵中の人工放射性核種の分析法 及びその地球化学的研究

概 要

気象研究所地球化学では過去40年にわたり降水・落下塵試料中の人工放射能の核種分析を実施してきた。この研究の中で、人工放射性核種を指標として大気中の物質の循環に関する知見を得ることができた。最近では、降水量は低下し検出限界に近づきつつあるが、分析値を得ることは依然として重要である。本論では、降水・落下塵試料中の人工放射能 (^{137}Cs , ^{90}Sr 及び $^{239,240}\text{Pu}$) の核種分析法の詳細を記述すると共に、その分析値の品質を保障するため作成した標準試料及び各研究機関の協力で得られた標準試料の放射能の推奨値について紹介する。

現在まで日本で観測された降水・落下塵試料中の人工放射能の主な起源は大気圏核実験とチェルノブイリのような深刻な原子力発電所事故であった。それぞれの場合について、降水・落下塵試料中の人工放射能を指標として用いた地球化学的研究により解明された大気圏での放射能の輸送・地表への降下等の事項について概説する。

1. 降水・落下塵試料中の放射能の分析

1-1 はじめに

大気圏内核実験や原子力事故により放出された人工放射能は最終的には、降水や降下塵に取り込まれて地表にもたらされ、結果として人体の放射線被曝を生ずる。1986年のチェルノブイリ事故による広範囲の汚染はこのよい例であり、世界に衝撃をもたらした。気象研究所地球化学研究部では、およそ40年にわたり、放射性降下物の研究を実施してきたが、その研究目的は、このような事態に対処し、放射線防護に必要な観測データを国民に提供すること—原子力防災、ならびに放射能がどのように輸送されるのかを知ること—大気輸送諸過程についての知見を得ることにある。

大気圏内核実験が規模を拡大していった1950年代初めには、大気中に放出された人工放射能が、今風に言うところ「長距離輸送」されて、「地球規模の汚染」を引き起こすとは予想されていなかった。人里はなれた辺境で核実験を行えば、人々の居住する地域への放射能汚染や被曝はないと考えられた(ネバダ, サハラ, ロプノール, オーストラリア, セミパラチンスク等の砂漠ないし半砂漠地帯, ビキニ, ムルロワ等の離島, あるいはノバヤゼムリア等の極域で核実験が行われてきた)。ビキニ実験による日本漁船の被曝は当時の常識では全く予期せぬことであり、しかし案に相違して、人工放射能を含む雨は全世界で観測された。60年代初頭には、大規模大気圏内核実験が行われた結果、核実験由来の放射能による被曝線量は、一般の環境に居住する人についてでさえ、自然放射線による線量の約10%にも達した。大気圏内核実験で放出された放射能は対流圏内を輸送されるだけでなく、成層圏内にも打ち上げられ、何年にもわたって徐々に降下し、その影響は長期にわたることも明らかになった。成層圏と対流圏の物質交換や南北両球の大気交換についての研究は、核実験由来の放射能の研究により大きく進んだ。逆に、大気の循環を明らかにするため核実験を行ったケースさえあった。つまり、人工放射能の汚染は、地球環境問題という用語が生まれる前からの古くて

執筆者：青山道夫 広瀬勝己 五十嵐康人 宮尾孝

研究分担者：青山道夫 広瀬勝己 五十嵐康人 葛城幸雄 (退職) 宮尾孝 高谷祐吉 (現在 本庁気候・海洋気象部)

Table 1-1 Nuclear properties of several radionuclides

Radionuclides	half-life	type of decay	emission energy
[Anthropogenic]			
^{85}Kr	10.722 y	β	251 keV
^{89}Sr	50.559 d	γ	0.0867 keV
		β	583 keV
^{90}Sr	28.52 y	β	196 keV
^{90}Y	2.6471 d	β	934 keV
^{137}Cs	30.02 y	γ	661.660 keV
		β	188 keV
^{238}Pu	87.749 y	α	5.4871 MeV
^{239}Pu	2.411×10^4 y	α	5.101 MeV
^{240}Pu	65637 y	α	5.1549 MeV
^{241}Pu	14.42 y	β	5.2 keV
^{241}Am	432.75 y	α	5.4801 MeV
^{242}Pu	3.7630×10^5 y	α	4.890 MeV
[Natural]			
^3H	12.336 y	β	5.7 keV
^7Be	53.297 d	γ	477.606 keV
^{22}Na	2.602 yr	γ	1274.53 keV
^{35}S	87.51 d	β	48.6 keV
^{40}K	1.2778×10^9 yr	γ	1460.832 keV
^{228}Th	1.9132 y	α	5.399 MeV
^{230}Th	7.543×10^4 y	α	4.665 MeV
^{232}Th	1.4056×10^{10} y	α	4.0056 MeV
^{234}U	2.4546×10^5 yr	α	4.773 MeV
^{235}U	7.037×10^8 y	α	4.3785 MeV
^{238}U	4.4685×10^9 y	α	4.1945 MeV

Table of Radioactive Isotopes (1986)

新しい問題である。その研究より得られた知見は、時間スケールの長い大気中の物質循環像を与えると言う点で、気候変動等今日の地球環境問題の解明にも資せるべき、すぐれて現代的なものであると考えることができる。

ここでは、地球化学研究部で実施してきた降下物中の人工放射性核種の分析法および最近の地球化学的研究の成果を紹介する。扱う人工放射性核種はストロンチウム-90 (^{90}Sr)、セシウム-137 (^{137}Cs) 及びプルトニウム同位体 ($^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Pu 等) である。これらの放射性核種は半減期が長く (表1-1)、常に監視が必要な核種である。

1-2 研究の方法

1-2-1) 降下物試料の採取および分析法の概要

原則として毎月1日に、気象研究所観測露場に設置したプラスチック製大型水盤 (1 m² × 2 または 4 m²) に捕集された降下物を、純水で洗浄して20リットルのポリエチレン容器中に採取した。1 m²の水盤では、1 mmの降水があれば、1 kgの試料が得られるから、月間200mmの降水があったときには、4 m²では約800kgの試料となる。1986年5月以前は1 m²の採取面積の大型水盤で降下物試料を採取してきた。1986年5月以降は放射性降下物の減少を考慮して、4 m²の採取面積の大型水盤で降下物を採取している。

札幌、稚内、釧路、秋田、仙台、東京、輪島、米子、福岡、石垣島の11地点においては、採取面積が0.5 m²の大型水盤をもちいて、月毎に降水・落下塵の採取を行っている。(採取地点は図1-1参照) 採取された降下物は原則として全量、気象研究所に送付され、人工放射性核種 (^{137}Cs , ^{90}Sr 等) の核種分析に供されている。(当初は、札幌、仙台、東京、大阪、福岡、秋田の6地点で試料の採取が行われた。1975年以降は稚内、輪島、米子の3地点が加わった。更に、1977年から、釧路、沖縄 (1980年から、石垣島に変更) の2地点が加わって現在に至っている)。

得られた降下物試料は化学処理を加えずに蒸発濃縮して固体状として、直径約6 cmのポリエチレン容器に充填する。そして、Ge 半導体 γ 線スペクトロメーターにより試料から放出される661keVの γ 線の強度を測定し、 ^{137}Cs を定量した。測定時間は試料中の ^{137}Cs 量に依存するが、数十万秒から2百万秒 (数日~数週間) である。次いで、試料中の有機物を硝酸などで分解し、溶液化して化学分離を行った。溶液の一部を分取し、誘導結合プラズマ発光分光法 (ICP-AES)、同質量分析法 (ICP-MS) により、安定な元素を分析した。残りの溶液中の ^{90}Sr を、安定 Sr を担体として、シュウ酸塩沈澱法、発煙硝酸沈澱法など6種類の沈澱分離を組み合わせた放射化学分離により精製し、測定の妨害となる天然の放射能などを除いた。最終的には、 ^{90}Sr を炭酸ストロンチウムとして回収、固定し、放射能測定用の試料を調製した。数週間放置して ^{90}Sr と ^{90}Y とが放射平衡に達して放射能が $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ となった後に、低バックグラウンド2 π ガスフロー検出器でその β 線を測定して定量した。測定時間は1000分で、3~5回繰り返し測定を行った。放射能測定では、検出限界以下とならないように、必ず定量値が得られるように努めている。一方、 ^{90}Sr を除いた酸性溶液中のプルトニウム同位体については、酸化還元剤を用いてプルトニウムの酸化数をIV価に調整した後、陰イオン交換樹脂カラムを数回用いて分離・精製した。精製したプルトニウムはステンレス板上に電着した後、表面障壁型 Si 半導体検出器を使用した α 線スペクトロメーターで計数した。(分析法の詳細は、1-3-3及び付録1参照。)

1-2-2) 大気浮遊塵試料の採取の概要

降下物試料と並んで重要な大気浮遊塵試料の採取についてはここで簡単に記す。気象研究所観測露場に設置した大型集塵器で1979年以降ガラス繊維濾紙 (TOYO GB-100R, 0.3 μm 以上の粒径に対して捕集効率は99.9%) 上に大気浮遊塵を採取した。濾紙の交換は1日ないし1週間である。尚、10 μm の粒径で大気浮遊塵を分離するために、カットオフフィルターを用いている。 ^{90}Sr およびプルトニウムの分析には一か月間の濾紙試料を供した。一か月分の濾紙試料を蒸留水に浸潤させ水溶性画分を得た。その後、それらの濾紙は濃硝酸と濃塩酸で処理し放射性核種を抽出した。それぞれの画分について、降下物試料と同様な放射化学的分析を行った後、放射能計測を行った (Hirose et al., 1986)。

1-2-3) 放射能分析の精度管理

1981年以降、人工放射能の降下量は漸次減少して、近年は検出限界近くのほぼ一定の水準を推移しており、データの信頼性を確保するうえで、分析における品質管理の必要性が増している。特に、 γ 線を放出しない ^{90}Sr などの β 放射体や、プルトニウムなど α 放射体の核種分析では、妨害核種を除くため長い過程の放射化学分離が要求されている。したがって、放射性核種分析の精度維持のためには、標準試料 (reference material) を用いて、自らの分析値が保証値 (真値) と一致するか否か検討することが不可欠である。

1-3 降下物中の人工放射性核種の分析法

大気・降水・落下塵中の人工放射性核種の分析法については、既に科学技術庁のマニュアル等で、詳細な記述があるが、気象研究所では長期にわたって環境試料中の人工放射性核種の分析を行うと共に、その分析法の改良を行いノウハウの蓄積に努めてきた。特に、最近では、環境試料中の放射能のレベルは極めて低く、値を得るためには多量の降下物試料の処理が必要とされ、改めて分析法の検討と分析値の品質管理の重要性が浮かび上がってきた。分析値の品質管理を実施するためには、分析対象物質と組成の類似した標準試料が必要である。環境試料の標準試料については米国では国家標準局 (NIST) が日本では国立環境研究所が作成している。放射能の標準試料については国際原子力機関 (IAEA) が相互比較と標準試料の提供を行っている。しかし、降下物試料については、現在のところ標準試料を提供しているところはない。

気象研究所地球化学研究部では、降下物試料中の人工放射性核種の分析を効率的に進めると共に、分析値の高品質を維持するため標準試料を作成した。この標準試料の分析結果をもって、分析手法の修得の基準としており、同時に、実際の試料の分析値の品質確保の保障ともなっている。(分析例を付録2に示す。)

1-3-1 降下物標準試料の調製 (Hatori-Ohtsuji et al., 1996)

標準試料の調製に当たっては気象庁の各官署で得られた降下物試料を用いた。気象庁の放射能観測地点では 0.5m^2 の面積の大型水盤を露場に設置し1カ月間の降水・落下塵試料の採取を行っている。得られた試料は気象研究所地球化学研究部に送付され、核種分析のため用いられる。降水・落下塵試料は磁性蒸発皿上で蒸発乾固し、蒸発皿上に残った残さが、分析に供される。分析に用いなかった、降下物試料はガラスないしプラスチック容器中に保存されてきた。

過去約17年 (1963-1979年) にわたる降下物の保存試料を標準試料作成のために用いた。各保存試料の約 $1/3$ 量を全ての試料について集め、電気乾燥器中 110°C で乾燥した。得られた試料の全重量は約4kgであった。乾燥試料は均一にするため磁性の回転粉碎器 (2500rpmで6時間) で処理した。降下物試料は更に150メッシュの篩にかけ、大粒子を除去し均一な微細粒子試料とした。ステンレス製の分配器にかけ、試料を16分割し更にこの分割試料を60分割した。各試料は、前もって希硝酸溶液で洗浄したガラス容器中に保存した。以上の操作の結果として、約1000個の標準試料を作成することができた。一試料当たりの内容物の重量は約4gである。

1-3-2 標準試料の特徴

降下物標準試料は北は稚内から南は石垣島までの全国14地点の降下物試料から作成された。試料の採取地点と全体に対する用いた重量の割合を図1-1に示す。また、図1-2には、各年について各採取地点の降下物試料の重量パーセントを示す。このように、ほぼ日本全国を網羅しているので、この標準試料は日本の平均的降下物試料と見なすことができる。

降下物標準試料中に含まれる人工放射能は、後で詳細を記述するが、1957年から1962年までで全体の約30%を占め、1957年から1964年までで全体の約80%を占める。したがって、降下物標準試料中の人工放射能は、1962年までに

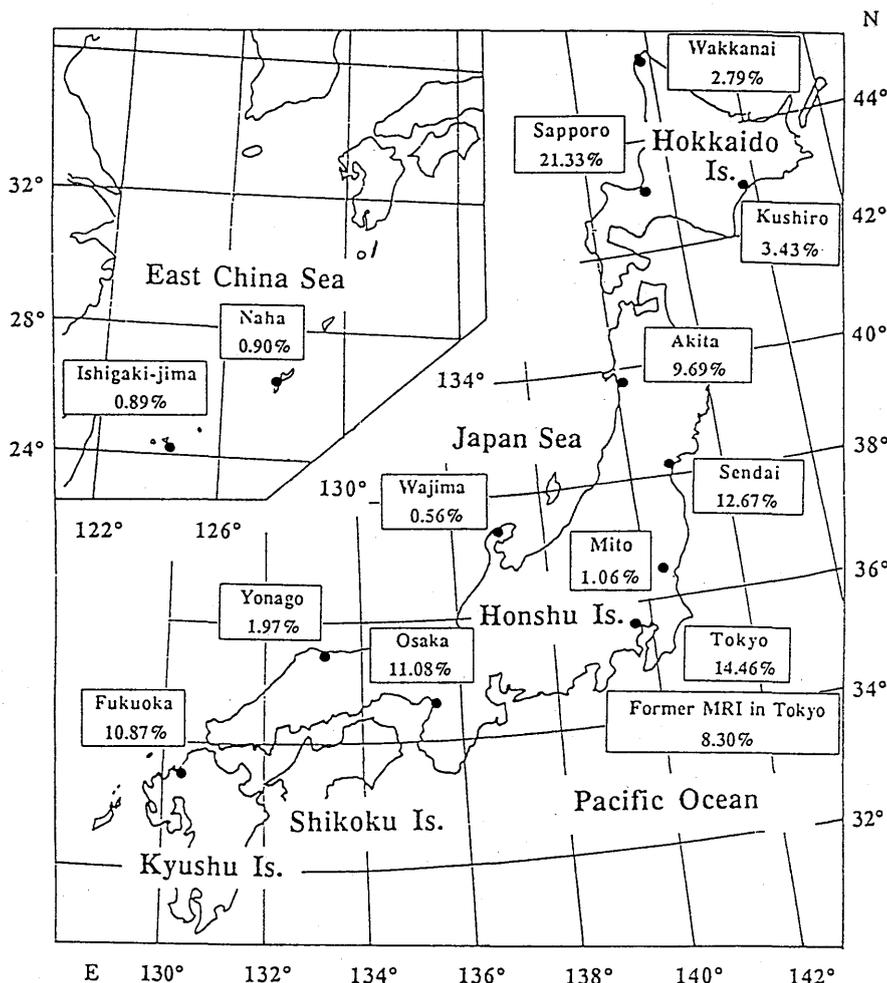


Fig. 1-1 The location of the sampling station and the weight percentage of the fallout material from each station composing 'reference fallout material'.

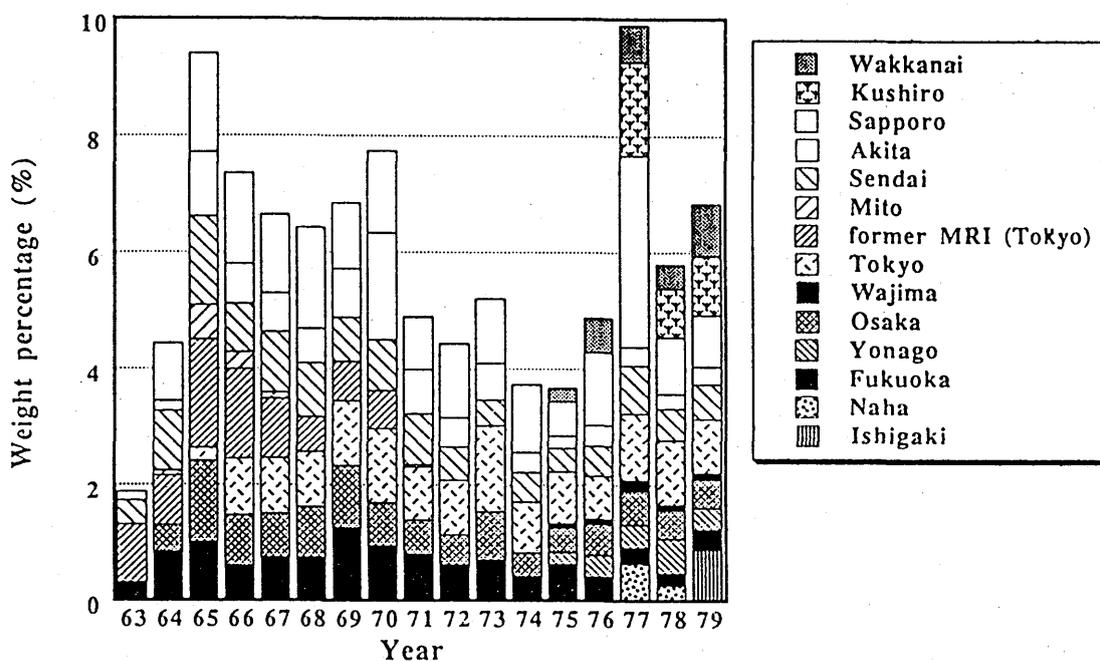


Fig. 1-2 Weight percentage of the annual fallout material of each station composing the 'reference fallout material'.

行われた主に米国と旧ソ連による大規模大気圏内核実験によるグローバルフォールアウト由来の放射能を反映していると考えられる。

1-3-3 降下物試料の分析

降下物標準試料の分析対象放射性核種は比較的長寿命の¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr及びプルトニウム同位体である。これらの放射性核種の放射化学分析の詳細は後で流れ図として示すので、概略を紹介する(付録1を参照)。

降下物標準試料中の¹³⁷CsはGe半導体検出器と4096チャンネルの波高分析器からなるγ線スペクトロメーターを用いて測定した(γ線スペクトロメトリーの詳細は科学技術庁マニュアルを参照)。ガンマ線のエネルギー分解能(FWHM)は⁶⁰Coの1.33MeVのγ線で約2.0keVである。¹³⁷Csの放射能は661keVで測定した。Ge半導体検出器のエネルギー効率曲線は¹⁵²Eu標準線源あるいは⁶⁰Co, ¹³³Baと¹³⁷Csの混合γ線源を用いて作成した。また試料の幾何補正は日本分析センターにより提供されている既知量の¹³⁷Csを含む日本分析センター内部用の標準土壌を用いて決定した。検出器の1インチNa(I)検出器に対する相対効率率は10-20%である。

γ線の測定をした後、試料は⁹⁰Srとプルトニウム同位体の放射化学分析に供した。試料はテフロン容器に移し、化学収率の測定のため、既知量の高純度安定ストロンチウム(SrCO₃:⁹⁰Srは含まれていない)と²⁴²Puを加えた後、濃硝酸で有機物等を分解し可溶化した。また分解に際して、ときどき必要に応じて過酸化水素水を加えた。最後に残った有機物を完全に分解するために、少量の過塩素酸を加えて加熱した。分解終了後、試料を蒸発乾固した。容器中の残さは8M硝酸溶液に溶解した。不溶性部分は濾過によって除いた(必要に応じて付録1を参照)。

プルトニウムの分離・精製には陰イオン交換樹脂(Dowex 1×8, 50-100メッシュ)を用いた。カラム体積は20mlである。試料溶液を陰イオン交換樹脂カラムを通す前に、NaNO₂を加えプルトニウムイオンの価数をIV価に調整した。試料量を8M HNO₃溶液で500ml以上にした後、流速2ml/minでカラムに通した。この操作でプルトニウムはトリウム、一部のウラン・ポロニウムと共にイオン交換樹脂に吸着する。カラムを8M HNO₃溶液で洗浄した。この過程で得られた溶出・溶離液は全て合わせて⁹⁰Sr分析用の試料に供した。さらにカラムは10M HCl溶液で洗浄した。この過程でトリウムは溶離する。樹脂上のプルトニウムはHI-HCl混合溶液でIII価に還元して溶離した。得られたプルトニウム画分は蒸発乾固後、8M HNO₃溶液に溶解し陰イオン交換樹脂(小カラム(0.8×4cm), Bio-Rad Poly-Prep, AG 1×8, 200-400メッシュ)で精製した。精製したプルトニウム画分はHCl-エタノール溶液(2M HCl 1ml + C₂H₅OH 20ml)に溶解した後、ステンレス板上に電着した。(電着時間は15V-250mAで2時間である。)ステンレス板上の放射能は表面障壁型Si半導体検出器と1024チャンネルの波高分析器からなるαスペクトロメーターで測定した。測定時間は30万秒から200万秒である。プルトニウムの通常の化学収率は60%以上である。α線スペクトロメトリーによる測定の場合、表1-1で示したように、²³⁹Puと²⁴⁰Puは放出α粒子のエネルギーが近く分離できない。したがって、両核種の放射能を合わせた量としてプルトニウムの放射能と評価している。個別のプルトニウム同位体の量を測定するためには、質量分析計が必要である。なお、α線スペクトロメーターのエネルギーキャリブレーションはウランの電着試料等で行うことができる。

⁹⁰Srの分析は第一段階の陰イオン交換樹脂カラムの溶出・溶離液を用いた。溶出液をアンモニア水もしくは水酸化ナトリウム溶液で中和した後、100mgのカルシウム(CaCl₂)を加えた。炭酸アンモニウムもしくは炭酸ナトリウムを加え、アルカリ土類金属イオンの沈澱を生成させ、加熱することによって沈澱を熟成させた。沈澱は遠心器により分離した後、少量の濃塩酸に溶解した。溶液を1リットルに希釈した後、シュウ酸(20-30g)を加え、溶液のpHをアンモニア水で約4に調整し不溶性のシュウ酸塩の沈澱を生成させた。沈澱は遠心分離器で分離した後、硝酸に溶解しシュウ酸を分解した。溶液に含まれるカルシウムとストロンチウムの分離は発煙硝酸法で行った。発煙硝酸法で精

製したストロンチウム画分はクロム酸バリウム沈澱と水酸化鉄沈澱によってさらにに精製し、微量のラジウムやその娘核種を除去した。最終的に、ストロンチウムは炭酸塩として沈澱させ、No 5.Cの濾紙上に定着させた。ストロンチウムの化学収率は60から80%である。試料は90Yと放射平衡にした後、放射能は2πガスフローβ線カウンタ（アロカLBC-5）で測定した。この測定器のバックグランドの計数値は極めて低く約0.4cpmである。バックグランド測定結果と炭酸ストロンチウム重量効率曲線は付録3に示す。

1-3-4 標準試料の均一性の試験

作成した個々の標準試料の品質と均一性を確かめるために、いくつかの試料の抜き取り検査を行った。任意に16個の試料を抜き取り、¹³⁷Csを測定した。試料の水分含量は3%以下であることを確かめ、改めて乾燥操作は行わなかった。計測時間は24時間で、この測定に伴う計数誤差は5%以下である。得られた結果を表1-2に示す。平均値についての統計誤差は各測定に伴う計数誤差より小さいことが分かった。以上の結果から、個々の標準試料は充分均一であり、標準試料としての品質が確保できることが分かった。

⁹⁰Srとプルトニウム同位体についても抜き取り検査を行った。その結果を表1-3に示す。⁹⁰Srと^{239,240}Puについては個々のロット間の変動は5%以下で、標準試料としての品質は確保されていることが分かった。²³⁸Puの場合には、低濃度のためやや変動は大きくなっている。

Table 1-2 ¹³⁷Cs concentration in each split of the 'Reference Fallout Material'

Sample	¹³⁷ Cs (mBq g ⁻¹)
No. 1-10	317 ± 11 ^a
No. 2-10	314 ± 12
No. 3-10	303 ± 12
No. 4-10	315 ± 12
No. 5-10	310 ± 12
No. 6-10	303 ± 12
No. 7-10	324 ± 12
No. 8-10	308 ± 12
No. 9-10	306 ± 11
No. 10-10	301 ± 11
No. 11-10	302 ± 11
No. 12-10	302 ± 12
No. 13-10	317 ± 12
No. 14-10	310 ± 12
No. 15-10	304 ± 12
No. 16-10	306 ± 12
Average	309 ± 6 ^b

^aCounting statistic error.

^bUnbiased SD.

Table 1-3 Concentrations of ^{90}Sr and Pu isotopes in the 'Reference Fallout Material' (mBq g^{-1})

Sample	^{90}Sr	^{238}Pu	$^{239,240}\text{Pu}$
No. 1-53	192 ± 7	0.19 ± 0.04	6.19 ± 0.40
No. 3-1	193 ± 3	0.06 ± 0.03	6.53 ± 0.45
No. 4-50	208 ± 3	0.19 ± 0.05	6.88 ± 0.46
No. 7-51	190 ± 3	0.06 ± 0.02	6.31 ± 0.39
No. 16-44	206 ± 6	0.18 ± 0.04	6.56 ± 0.34
Average	198 ± 8	0.14 ± 0.07	6.49 ± 0.27

The error shown for each determined value is based on the counting statistics, while that for the average shows unbiased SD for the data set.

1-3-5 標準試料の相互比較

標準試料の推奨値を得るためには、他の研究機関等との相互比較が重要な過程である。気象研究所では1993年に日本分析センターとの間で相互比較を始めた。各機関には乱数により選択した5本1組の標準試料のセットを送付し、5試料分の分析値の提供をお願いしている。現在までに、気象研究所を含め日本の16の機関が相互比較計画に参加している。その内、気象研究所を含め10機関から分析結果を得ている。対象核種は ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{238}Pu 及びいくつかの天然の放射性核種 (^{210}Pb 、 ^{226}Ra) である。なお、2機関は標準試料の一部のみを分析に供した。また、試料の乾燥操作は推奨していない。分析値の放射壊変の補正は、1993年1月1日を参照日とした。

各参加機関の分析結果を表1-4に示す。なお、機関名は匿名にしている。 ^{137}Cs 分析の場合、8機関は γ 線スペクトロメトリーで、1機関(A)は放射化学分析による分離精製後、低バックグラウンド β 線カウンタで測定している。異なった方法による分析値が含まれているにも係わらず、結果は相互に良く一致している。図1-3に得られた ^{137}Cs 値の頻度分布を示す。頻度分布は正規分布に近く、大部分の値は平均値の10%内にあった。従って、 ^{137}Cs の場合、この相互比較で得られた平均値を推奨値とすることができる。そこで、降下物標準試料の推奨値を 311mBq/g と定めた。

^{90}Sr (3機関) と $^{239,240}\text{Pu}$ (4機関) の分析値に付いて頻度分布を取った結果を図1-4に示す。現在の日本では、これらの核種について放射化学分析を実施できる能力を有する研究機関等は限られているため、報告された分析値は ^{137}Cs に比べて少なく、分散も大きいことが分かった。従って、これらの核種の推奨値を得るためには、さらに多くの分析機関による分析値の提供が必要である。

表1-5に降下物標準試料中の放射性核種の放射能比を示す。 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ 比は両核種が比較的近い半減期をもっているため1961-62年の大規模大気圏核実験によるグローバルフォールアウトの値(1.6)に近い値となっている。一方、 $^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$ および $^{90}\text{Sr}/^{239,240}\text{Pu}$ 比の場合、プルトニウムの半減期が長い(表1-1)のために、グローバルフォールアウト時の値の約半分に減少している。また、 $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比は、1964年に起こった ^{238}Pu を燃料電池として用いた人工衛星(SNAP-9A)事故により加わった ^{238}Pu により、核実験により放出されたプルトニウム同位体比より高い値を示す。これらの放射能比は厳密には、全ての地点で全ての年代に付いて均等な試料でないために、現在の環境試料分析結果との比較議論には問題があるが、一つの目安としては重要である。

標準試料の性質を知るためには、主要成分の化学組成を明らかにしておく必要がある。酸可溶性部分をICP-AES及びICP-MSで測定した結果を表1-6に示す。降下物標準試料中の ^{90}Sr と ^{137}Cs のr/s値(比放射能)は、それぞれ約 800mBq/mg 及び $55\text{mBq}/\mu\text{g}$ となる。

Table 1-4 Reported concentrations of radionuclides in the 'Reference Fallout Material' (mBq g⁻¹)

Institution	Sample (n)	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	^{239,240} Pu	²³⁸ Pu	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra
A	5	298 ± 3 ^a	186 ± 3	6.32 ± 0.10	0.25 ± 0.03		
B	5	304 ± 11					
C	5	328 ± 11					
D	5	314 ± 6					
E	5	342 ± 11	248 ± 7	7.23 ± 0.54	0.40 ± 0.08		
F	5	314 ± 9					
G	5			6.41 ± 0.15	0.27 ± 0.01		
H	5	290 ± 9					
I	4 ^b	305 ± 3				661 ± 15	15 ± 2
MRI	5(16) ^c	309 ± 6	198 ± 8	6.49 ± 0.30	0.14 ± 0.08		
Average		312 ± 16	211 ± 33	6.61 ± 0.42	0.27 ± 0.11	661	15
Weighted mean		311	211	6.52	0.28		

^aErrors indicated in this table show the unbiased SD for each data set.

^bAlthough the five bottles were provided, one was broken during transportation. For ²²⁶Ra, one sample showed a value below the detection limit.

^cThe figure in parentheses is for ¹³⁷Cs.

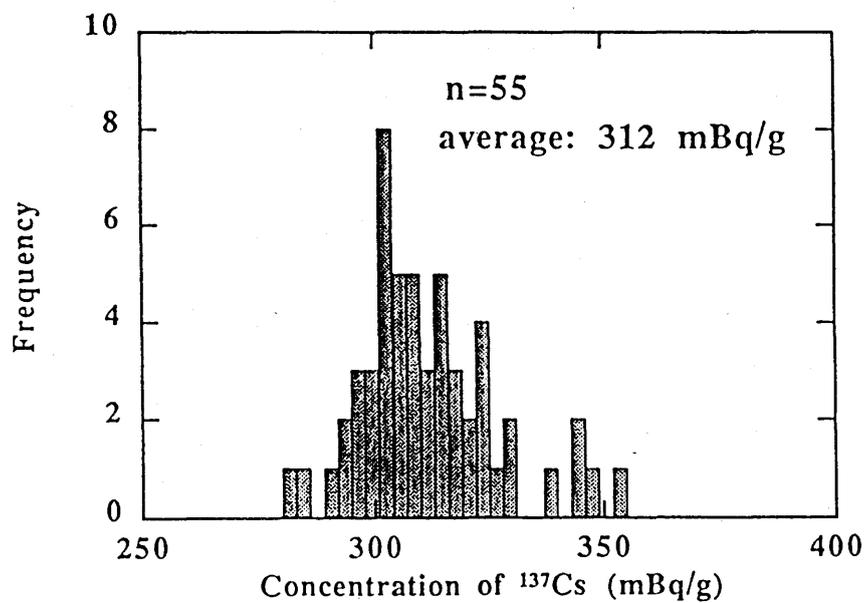


Fig. 1-3 Frequency distribution of the reported ¹³⁷Cs concentration.

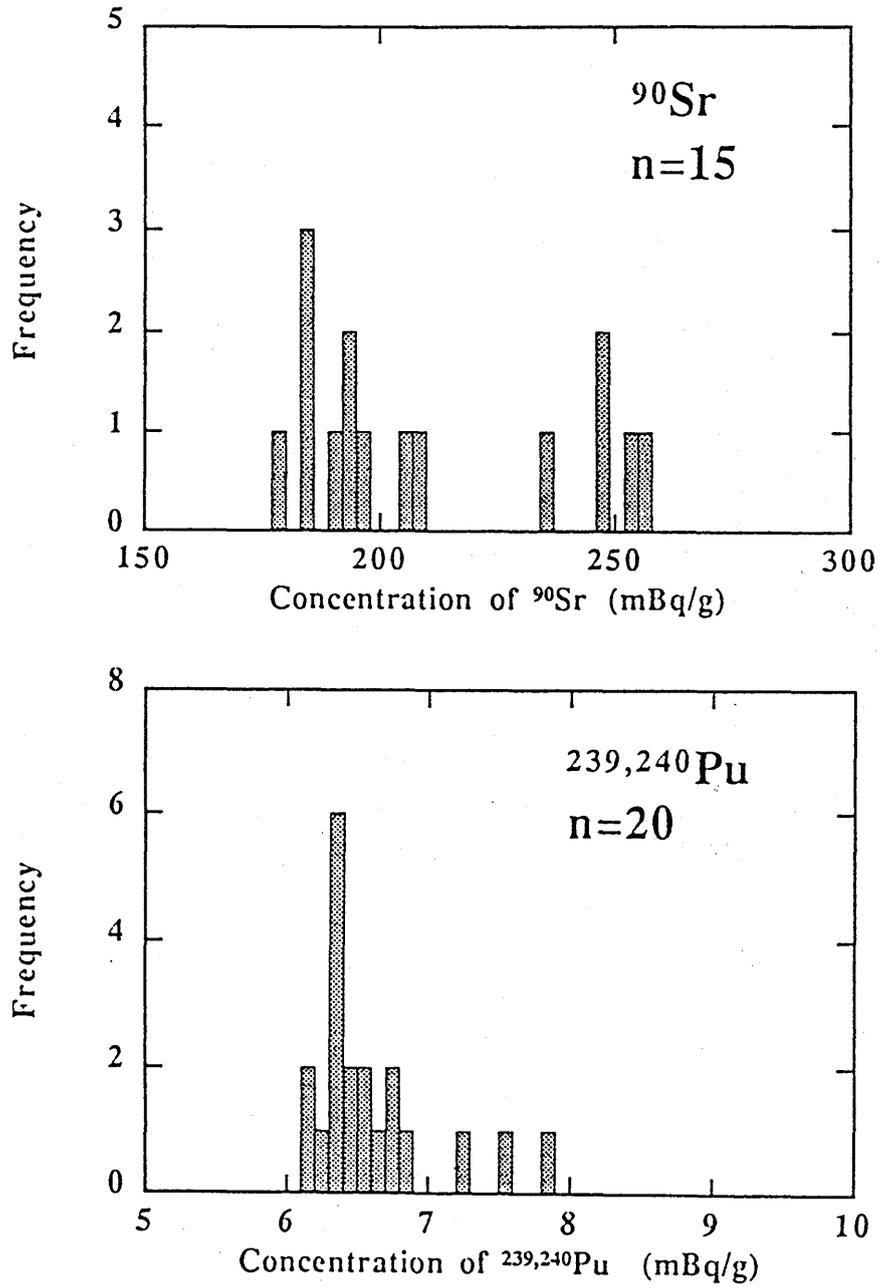


Fig. 1-4 Frequency distribution of the reported ^{90}Sr and $^{239,240}\text{Pu}$ concentrations.

Table 1-5 Activity ratios in the 'Reference Fallout Material'

<i>Institution</i>	<i>Sample (n)</i>	$^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$	$^{90}\text{Sr}/^{239,240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$
A	5	1.60	47.1	29.4	0.040
E	5	1.38	47.3	34.2	0.056
G	5				0.041
MRI	5(16) ^a	1.56	47.6	30.5	0.021
Average		1.48	47.2	31.9	0.041
Weighted mean		1.47	47.7	32.4	0.043

^a For ^{137}Cs determination.

Table 1-6 Concentrations of stable elements in the 'Reference Fallout Material'

<i>Element</i>	<i>ICP-AES (mg g⁻¹)</i>	<i>ICP-MS (μg g⁻¹)</i>
Bc		0.53 ± 0.03
Na	41.45 ± 0.51	
Mg	11.60 ± 0.09	
Al	26.03 ± 0.05	
K	7.58 ± 1.43	
Ca	63.00 ± 0.51	
Ti	11.38 ± 0.07	
Mn	0.80 ± 0.02	
Fe	31.24 ± 0.40	
Cu	8.69 ± 0.03	
Zn	4.51 ± 0.02	
Sr	0.26 ± 0.00	264 ± 2
Cs		5.62 ± 0.05
Ba	0.37 ± 0.00	

Errors are SD of triplicated measurements.