吸着を利用する無担体イットリウム-90の簡易調製法

池田長生, 赤石 準*, 小野良高

(東京教育大学理学部, *日本原子力研究所, 東京教育大学理学部)

(昭和34年7月31日受理)

緒 言

トレーサースケール量の放射性物質を取扱う場合, 容器への吸着^{*)}による損失は無視できない問題であって, 場合によっては大きい誤差の原因となり得るものである。著者らは陸水, 海水中のフールアウトや放射性廃棄物中の放射性物質の分析にあたり, これらの試料水の採取, 保存および分析操作中の吸着による損失量を知るため約10種の容器材質について代表的な核分裂生成核種および核分裂生成物集合体の吸着量を水道水と海水について測定した。¹⁾ その結果, ^{90}Sr — ^{90}Y の吸着量は一般に金属材質の場合に多く, 非金属材質の場合には少ないということが判ったが, ビニールシートに対してはほかの非金属材質の場合よりも吸着量が多く, 吸着された放射能は, 約1カ月間にわたりその減衰状態を調べた結果, ほとんど全部 ^{90}Y であった。

^{90}Sr — ^{90}Y から ^{90}Y を分離する方法については, 共沈法, 溶媒抽出法, イオン交換法, ペーパークロマトグラフ法などすでに多くの報告²⁾ があるが, 無担体の ^{90}Y を簡単に調製する目的で塩化ビニールシートに対する吸着を利用する ^{90}Sr — ^{90}Y よりの ^{90}Y の分離について, 2, 3 の検討を行った。

実験方法

1. ^{90}Y および ^{90}Sr の吸着量の測定方法

* 吸着以外にも機械的な付着, 化学的な結合などの原因が考えられるが, 本報ではかりに「吸着」と表現することにした。

イオン交換水または水道水に放射平衡にある ^{90}Sr — ^{90}Y ^{*)} を加え, この 60ml を 200ml のビーカーにとり, 必要があれば塩酸またはアンモニア水で pH を調節する。片面に約 1 mm の厚さにパラフィン^{*)}をぬり, 表面以外の面に放射能が付かないようにした塩化ビニールシート (3.5×3.5cm²) 1 片を入れ, 室温で一定時間放置して吸着させる。のち取り出して約 80ml のイオン交換水をポリエチレンの洗びんからかるくふきつけて洗浄し, 自然乾燥させたのちパラフィンをけずりおとし, 直径 2.4cm の穴をあけた厚さ 2 mm の鉛板を上^{*)}のせ, 理研製 100 進型 G-M 計数装置 (マイカ窓の厚さ 1.6 mg/cm²) を使用し, 測定棚第 2 段で放射能を測定した。こののち 4~5 週間にわたり減衰状態を測定して吸着した ^{90}Sr と ^{90}Y の放射能の比を求めた。一方, 溶液は pH を比色法で測定したのち, ミクロピペットで 0.126 ml をスライドガラス上のシガレットペーパー^{**)}にとり, 赤外線ランプで徐々に乾燥してから同様にしてその放射能を測定した。

2. 吸着放射能の洗浄除去

^{90}Sr — ^{90}Y 溶液中で一定時間吸着させたビニールシートを同様にして水で洗浄し, 自然乾燥させたのちその放射能を測定する。このビニールシートを一定濃度の塩酸溶液 100 ml の中に入れ, ビーカーをかるくゆすりながら一定時間吸着した ^{90}Y を脱着させる。のち多量の流水で洗浄し自然乾燥させてから放射能を測定する。この操作をくり返

* ^{90}Sr — ^{90}Y は The Radiochemical Centre, Amersham 製のもので硝酸塩の形である。

** 少量のセメダインで固定しておく

Table 1. Relation between adsorbed amounts and the dipping time

Dipping time for adsorption (hr)	pH	A: Radioactivity of the solution after adsorption (cpm/0.126 ml)	B: Adsorbed radioactivity (cpm/4.5 cm ²)	Adsorption ratio B/A	Adsorption ratio corrected for pH 7.2	C: Adsorbed ⁹⁰ Sr (cpm/4.5 cm ²)	Ratio of adsorbed ⁹⁰ Sr to the total activity C/B×100
0.17	7.2	150±3	44±4	0.29	0.29	~5	11
1	7.2	165±4	140±6	0.85	0.85	~10	7
5	7.2	160±4	510±12	3.2	3.2	~11	2.6
24	7.1	160±4	1070±15	6.7	7.5	~8	0.7
66	7.0	170±3	1970±26	11.6	13.9	~15	0.8
72	7.0	125±4	1370±22	11.1	13.3	~15	1.1
120	6.8	140±4	1540±23	11.0	16.5	~13	0.8

し、脱着の状態を測定した。

実験結果および考察

1. 吸着時間と吸着量の関係

結果は第1表に示すとおりである。

見かけの吸着量は50時間以上ではあまり増加しないので ⁹⁰Y の調製という点からは50時間前後がもっとも適当である。また同時に混入する ⁹⁰Sr の量は吸着時間の長短にあまり関係なく 5~15 cpm という値が得られた。したがって吸着放射能全体に対しての ⁹⁰Sr の比を小さくおさえるためにも比較的長時間吸着させることが必要である。

2. 溶液の pH と吸着

結果は第1図のとおりである。

全吸着量は pH 8.4 においてするどいピークを

Fig. 1 Relation between pH of the solution and the adsorption ratio

示しているが、同時に吸着される ⁹⁰Sr の相対的混入率は pH 8.5 位より急激に増大する。このことは ⁹⁰Sr および ⁹⁰Y の吸着が単に水酸化物の生成にもとづいたり、またはラジオコロイドの生成と必ずしも同意義的でないことを表わしている

Table 2. Contamination of the adsorbed radioactivity by ⁹⁰Sr

	pH	Sr carrier (mgSr)	A: Radioactivity of the solution after adsorption (cpm/0.126 ml)	B: Adsorbed radioactivity (cpm/4.5 cm ²)	Adsorption ratio B/A	C: Adsorbed ⁹⁰ Sr (cpm/4.5 cm ²)	Ratio of adsorbed ⁹⁰ Sr to the total activity C/B×100
Tap water	6.8	—	370±7	3105±28	8.1	~2	0.06
	6.8	—	370±7	2947±24	8.0	~2	0.06
Demineralized water	4.7	5.0	276±6	1200±15	4.3	~17	1.4
	7.8	5.0	208±5	8082±64	39	~200	2.5
	5.1	10.0	166±4	1248±15	7.5	~4	0.3

Fig. 2 Decay curves of the adsorbed radioactivity

^{90}Sr — ^{90}Y より ^{90}Y を分離する目的のためにはビニールシートへの吸着量が多いこと, および ^{90}Sr の混入量が少ないことが必要である。この実験結果からは pH 8.4 付近で, イオン交換水よりも水道水を用いた方がよく, また吸着時間も2~3日がよいことが判った。pH 9 以上で ^{90}Y の吸着量が非常に小さくなること, これに反して ^{90}Sr 吸着量が比較的に増大することなど興味ある事実が判ったが, その理由についてはこの実験の結果のみからは論ずることはできない。しかし中性付近において ^{90}Sr とビニールシートとの間の結合

Table 3. Desorption ratio of the adsorbed radioactivity

Concentration of HCl (N)	Radioactivity before desorption (cpm)	Washing time and the residual radioactivity (cpm)				Desorption ratio (%)
		10 (sec)	20 (sec)	60 (sec)	120 (sec)	
0.50	1262±16	208±4	146±5	126±4	102±4	92
"	990±14	—	—	90±3	73±4	94
0.10	1485±19	261±7	181±6	122±5	90±4	94
0.05	1323±16	233±7	142±6	95±5	73±4	95

ものと考えられる。

^{90}Y の調製の目的には pH 7.5~8.5 の間で吸着させるのがよい。

3. 安定なストロンチウム担体が存在するときの ^{90}Sr の混入率

1, 2 は比放射能がきわめて高い場合についての結果であるが, 安定なストロンチウムが存在するときの ^{90}Sr の混入率を同様に測定した。その結果を第2表, 第2図に示す。

4. 水道水を使用したときの ^{90}Sr の混入率

1~3 はイオン交換水を用いた実験の結果であるが, 水道水*)を使用して同様の実験を行った結果を第2図, 第2表に示す。

5. 吸着された放射能の塩酸による洗浄除去 (無担体 ^{90}Y の調製)

結果は第3表のとおりであって吸着された放射能の大部分は容易に希塩酸で洗い出すことができる。

* 茨城県東海村日本原子力研究所の水道水

Fig. 3 Autoradiograph of the ^{90}Y -adsorbed vinyl sheet

力がかかなり弱いことは水道水を用いた場合, 混入する ^{90}Sr の量が非常に小さくなることから推察することができる。

吸着された状態をしらべるために X 線フィルム

ムを用いてオートラジオグラフをとったところ、第3図に示すようにきわめて不規則な斑点状の写真が得られた。このことよりこの吸着がビニールシートへの化学的な結合ではなく、物理的な吸着であるものと推察される。なお、吸着させてから1カ月後に、同じ試料について、オートラジオグラフを撮ったところ、感光はみとめられなかった。すなわち、ビニールシートに吸着されたものは

^{90}Y だけであって、これが約1カ月後には、ほとんど減衰し尽したものと考えられる。

この研究に要した費用の一部は文部省科学研究費より支出した。厚く感謝の意を表する。

文 献

- 1) 池田長生, 赤石 準, *Radioisotopes* 8, 43(1959)
- 2) たとえば日本化学会「化学実験講座」12巻 P229-438, 丸善 (1958)

A Simple Method for the Preparation of Carrier-free Yttrium-90 by Adsorption

By

Nagao IKEDA, Jun AKAISHI* and Yoshitaka ONO

(Department of Chemistry, Faculty of Science, Tokyo University of Education ; *Japan

Atomic Energy Research Institute)

(Received July 31, 1959)

The separation of ^{90}Y from the ^{90}Sr - ^{90}Y mixture can be attained by the various kinds of methods such as coprecipitation, solvent extraction, ion exchange and paper chromatographic methods, etc. as have already reported by many authors. In this paper, the preparation of the carrier-free ^{90}Y based on the adsorption phenomenon of ^{90}Y on a vinyl chloride sheet was investigated.

A vinyl sheet of $3.5\text{ cm}^2 \times 3.5\text{ cm}$ size, one side of which was coated by paraffin to prevent the adsorption of radioactive substances, was inserted into the aqueous solution of ^{90}Sr - ^{90}Y . After standing at the room temperature for an appropriate time, the sheet was taken out, washed with water, and the

decay curve of the radioactivity was observed. The amount of the adsorbed ^{90}Y showed its maximum value at pH 8.4. When the pH value was below 8.4, the amount of ^{90}Sr simultaneously adsorbed on the vinyl sheet was 0.5~2% of ^{90}Y at the time when the sheet was taken out from the solution. But at the higher pH values, the amount of the adsorbed ^{90}Sr was remarkably increased. In the case of using the tap water, the amount of ^{90}Sr simultaneously adsorbed on the sheet was very small; the ratio of the ^{90}Sr activity to the total adsorbed activity was 6×10^{-4} .

The distribution of ^{90}Y on the vinyl sheet was observed by the autoradiographic method using the X-ray film. It

was revealed that the distribution was not homogeneous, but many spots were irregularly distributed on the film.

Thus we can prepare ^{90}Y in the carrier-free form by inserting a vinyl sheet in

to ^{90}Sr - ^{90}Y solution of pH 8.0~8.4 for 2 or 3 days. The ^{90}Y adsorbed on the vinyl sheet is then readily dissolved by dilute hydrochloric acid.