



使用済燃料に含まれる核分裂生成核種の 組成測定試験方法の検討

Examination of Measurement Method of
Isotopic Composition of Fission Products in Spent Fuel

深谷 洋行 須山 賢也 藺田 暁 大久保 清志
梅田 幹 内山 軍藏

Hiroyuki FUKAYA, Kenya SUYAMA, Takashi SONODA, Kiyoshi OKUBO
Miki UMEMA and Gunzo UCHIYAMA

東海研究開発センター
原子力科学研究所
福島技術開発試験部

Department of Fukushima Technology Development
Nuclear Science Research Institute
Tokai Research and Development Center

October 2013

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

使用済燃料に含まれる核分裂生成核種の組成測定試験方法の検討

日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター 原子力科学研究所
福島技術開発試験部

深谷 洋行、須山 賢也⁺、菌田 暁、大久保 清志[※]、梅田 幹、内山 軍藏⁺

(2013年7月8日 受理)

日本原子力研究開発機構が原子力安全基盤機構から受託した事業「平成20～23年度軽水炉燃焼燃料の核分裂生成核種組成測定試験」において、燃焼率評価に必要な元素の1つであるネオジムを対象とした2種類の手法で定量結果に差異が生じた。使用済燃料中の核分裂生成核種組成の測定は重要な基盤技術であり、また、福島第一原子力発電所事故に対応する技術として今後も継続的に発展させる必要があるため、確度の高いデータの取得及び定量結果の差異の原因究明を目的としたフォローアップ測定を実施した。測定の結果、ネオジムについては5試料のうち2試料で、また、核分裂生成核種の一部については5試料すべての定量結果の修正が必要であることがわかった。

本報告は、本フォローアップ測定において実施した作業及び測定結果についてまとめたものである。

Examination of Measurement Method of
Isotopic Composition of Fission Products in Spent Fuel

Hiroyuki FUKAYA, Kenya SUYAMA⁺, Takashi SONODA, Kiyoshi OKUBO[※],
Miki UMEDA and Gunzo UCHIYAMA⁺

Department of Fukushima Technology Development
Nuclear Science Research Institute
Tokai Research and Development Center
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 8, 2013)

Japan Atomic Energy Agency conducted a project “Isotopic Composition measurement of Fission Products in Spent Fuel from FY2008 to FY2011” by the entrustment of Japan Nuclear Energy Safety Organization. In that project, we measured the isotopic composition of neodymium isotopes which are important to evaluate the burnup value of spent nuclear fuel by using two different methods and obtained different results. The measurement of isotopic composition of fission products is important basic technology and it is obviously applied to the countermeasure to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident. Therefore, we carried out the follow-up measurement in order to investigate the reason of the difference between two neodymium measurements. It was found that we needed correction to the measurement results of neodymium for two samples and a part of other fission products for all samples in total five samples. This report summarizes all the works carried out in this follow-up measurement and obtained results.

Keywords: Post Irradiation Examination, Isotopic Composition, Spent Fuel, Fission Products, ICP-MS, TIMS

⁺ Nuclear Safety Research Center

[※] Collaborating Engineer (Fukushima Project Team)

目次

1. はじめに	1
2. 受託事業の概要	1
2.1 事業概要	1
2.2 FP 核種の組成測定に関する 2 つの手法の特徴	2
2.2.1 従来法	2
2.2.2 現行法	3
2.3 測定結果における差異の発生と受託事業で推定したその原因	6
3. フォローアップ測定	7
3.1 フォローアップ測定の目的	7
3.2 従来法と現行法の差の原因に関する再検討	7
3.3 測定	8
3.3.1 測定条件の改善	8
3.3.2 混合スパイク試料の値付け	9
3.3.3 分析操作	11
3.3.4 TIMS 測定	11
3.3.5 アルファ放射能測定	12
3.4 測定結果	12
3.5 考察	14
4. データ解析評価	20
4.1 同重体混入の効果	20
4.2 同重体混入の割合	20
4.3 同重体混入の影響評価	23
5. 本再測定結果を反映した測定結果のまとめ	27
6. おわりに	71
謝辞	72
参考文献	72
付録 測定データ集	74

Contents

1. Introduction	1
2. Outline of “Isotopic Composition measurement of Fission Products in Spent Fuel from FY2008 to FY2011”	1
2.1 Outline of Project	1
2.2 Feature of Two Methods for Measurement of Isotopic Composition of Fission Products	2
2.2.1 Conventional Method	2
2.2.2 Present Method	3
2.3 Consideration about the Difference of Two Measurement Results	6
3. Follow-up Measurement	7
3.1 Purpose of Follow-up Measurement	7
3.2 Investigation of the Difference of Conventional Method and Present Method	7
3.3 Measurement	8
3.3.1 Improvement of Measurement Condition	8
3.3.2 Calibration of Mixed Spike Sample	9
3.3.3 Analytical Operation	11
3.3.4 Measurement by TIMS	11
3.3.5 Alpha Radioactivity Measurement	12
3.4 Results	12
3.5 Summary	14
4. Data analysis	20
4.1 Effect of Isobar Materials Contamination	20
4.2 Ratio of Isobar Materials Contamination	20
4.3 Evaluation of Isobar Materials Contamination	23
5. Summary of Measurement Data	27
6. Conclusion	71
 Acknowledgement	 72
 References	 72
 Appendix Measurement Data	 74

1. はじめに

日本原子力研究開発機構（以下「JAEA」という。）は原子力安全基盤機構（以下「JNES」という。）から「平成 20～23 年度軽水炉燃焼燃料の核分裂生成核種組成測定試験」^{1),2),3),4)}を受託し、平成 20 年度から使用済燃料中に存在している核分裂生成核種の組成測定を行ってきた。当該受託事業において、燃焼率評価に必要な元素の 1 つであるネオジム（以下「Nd」という。）の測定について、同様の試験を実施する際に旧日本原子力研究所時代から適用している表面電離型質量分析装置（以下「TIMS」という。）を用いる手法と、本事業のために検討した高周波誘導結合プラズマ質量分析装置（以下「ICP-MS」という。）を使用する手法による 2 種類の測定を行ったところ、両者の測定結果のうち 3 サンプルに数パーセントの差異が生じた³⁾。燃焼率の測定誤差は、Nd-148 法では 3%程度と米国材料試験協会規格（ASTM 規格）で定義されており、2 サンプルについてはその誤差内に入る結果であったが、近年では燃焼計算の精度が向上し、測定で求められた燃焼率の詳細な評価も行われていることから、当該事業における測定結果の差については原因を究明する必要があると考えた。この差異については、当該事業の最終年度（平成 23 年度）に原因究明のための検討及び再分析を実施したが、明確な原因を見出すまでには至らなかった。

使用済燃料中の核分裂生成核種の組成は、使用済燃料の特性を把握する上で最も基本的なパラメータであり、その測定は原子力の研究開発の根幹の一つとも言える重要な基盤技術である。また、福島第一原子力発電所事故で発生した燃料デブリの取り出しにおいては、燃料デブリの性状把握のために事前の組成測定を行うことが必須であると考えられ、デブリの取り出しが行われる事を見据えてこの技術を今後も継続的に発展させる必要がある。よって、当該事業の終了後に、確度の高い測定結果の取得及び測定結果の差異の原因を究明することを目的としてフォローアップ測定を自主的に実施した。測定の結果、Nd については対象となる 5 試料のうち 2 試料で、また、難溶解性核分裂生成核種については 5 試料すべての測定結果の修正が必要であることがわかった。

本報告は、当該事業のフォローアップ測定において実施した作業、測定結果、2 種類の測定による結果の差異の原因及び核分裂生成核種組成の再評価についてまとめたものである。

2. 受託事業の概要

2.1 事業概要

JNES が実施している全 MOX 炉心核設計手法の信頼性実証試験の一部として、国内商用炉において燃焼した MOX 燃料の核種組成分析データを取得し、解析評価することが計画されていた。これに備え、MOX 燃料の参照データ取得のための照射後試験に資する目的で「平成 20～23 年度軽水炉燃焼燃料の核分裂生成核種組成測定試験」が JAEA の受託事業として実施された。当該事

業では、高燃焼度 BWR 9×9B 型ウラン燃料集合体から取得した高燃焼度燃料二酸化ウランペレットについて、核設計上重要な核分裂生成核種（FP 核種）の組成及び燃焼度測定のための核種の組成を測定した。

測定の対象とした燃料は、福島第 2 発電所 1 号機（2F1）で使用された 2F1ZN2 集合体及び 2F1ZN3 集合体である。2F1ZN2 集合体は 3 サイクル照射された集合体平均燃焼度が 35.6GWd/t の燃料集合体である。一方、2F1ZN3 集合体は 5 サイクルにわたって用いられ、集合体平均燃焼度が 53.5GWd/t に達している。これらの集合体から、それぞれ 2 試料（2F1ZN2c2、2F1ZN2c3）及び 3 試料（2F1ZN3c2、2F1ZN3c3 及び 2F1ZN3a9）の合計 5 試料を取り出して組成測定を実施した。組成測定試験では特に反応度評価上重要な FP 核種である ^{142}Nd 、 ^{143}Nd 、 ^{144}Nd 、 ^{145}Nd 、 ^{146}Nd 、 ^{148}Nd 、 ^{150}Nd 、 ^{147}Pm 、 ^{147}Sm 、 ^{148}Sm 、 ^{149}Sm 、 ^{150}Sm 、 ^{151}Sm 、 ^{152}Sm 、 ^{153}Eu 、 ^{154}Eu 、 ^{155}Eu 、 ^{154}Gd 、 ^{155}Gd 、 ^{156}Gd 、 ^{157}Gd 、 ^{158}Gd 、 ^{160}Gd 、 ^{95}Mo 、 ^{99}Tc 、 ^{101}Ru 、 ^{103}Rh 、 ^{109}Ag 、 ^{133}Cs 、 ^{134}Cs 等に着目した測定を実施した。これらに加えて燃焼率測定のために U 及び Pu の組成測定も行った。従来、旧日本原子力研究所が実施してきた照射後試験ではアクチノイド同位体の測定に着眼した試験を行ってきたため、当該事業は JAEA における使用済燃料組成測定試験の能力を大幅に向上させる大きな意義がある。本事業は平成 20 年度より開始し、平成 23 年度で終了している。

2.2 FP 核種の組成測定に関する 2 つの手法の特徴

FP 核種の組成測定については、2 つの手法を適用している。1 つは、JAEA で燃焼率評価に必要な U、Pu 及び Nd の測定に特化した手法として定常的に実施している手法である。受託事業ではこの手法を「従来法」と呼び、U、Pu 及び Nd の測定に適用した。一方、その他 FP 核種については、受託事業によって導入した高分解能 ICP-MS（HR-ICP-MS）を使用することによる簡便且つ必要十分な精度を有する手法を新規に検討して対応することとした。受託事業ではこれを「現行法」と呼んでいる。以下に従来法と現行法の特徴を述べる。

2.2.1 従来法⁵⁾

本法は旧日本原子力研究所が考案し、その後 JAEA が現在に至るまで適用しているもので、リファレンスとして扱われている手法である。本法では、化学分離に硝酸-メタノール混液系による陰イオン交換分離法を適用し、化学分離した各元素の測定に TIMS を使用している。陰イオン交換による化学分離スキームを図 2-1 に示す。

燃焼率は、試料中の U、Pu 及び ^{148}Nd の原子個数比で算出される。本法による燃焼率測定では、U、Pu 及び Nd の原子個数比の算出に、混合スパイクを用いた同位体希釈法を適用している。同位体希釈法は、元素の高精度定量分析に用いられる手法で、目的元素の特定の質量の同位体を濃縮した化合物あるいは単体元素（スパイクという。）を既知量添加し、同位体組成の変化を質量分析装置で測定するものであり、その変化の程度から試料中の目的元素量を算出できる。

本法では、U、Pu 及び Nd の各同位体組成及び原子個数比の確定した混合スパイクを用いるこ

とで、試料中の U、Pu 及び ^{148}Nd の原子個数比を算出することができる。混合スパイクは、U、Pu 及び Nd の各同位体組成及び原子個数比が固定値であり、経時等による濃度変化は影響しない。すなわち、混合スパイク及び試料中の U、Pu 及び Nd の各濃度は燃焼率に関与しないことから、混合スパイクの適用は、試料の分取・希釈等における重量測定の手間とともに、それらの操作に付随する誤差の影響を排除することが可能となる利点を有している。本法は、化学分離及び測定に熟練を要するが、JAEA での化学分離の実績は豊富であり、高精度での同位体比測定が可能な TIMS（主同位体で $\pm 0.1\%$ ）及び混合スパイクによる同位体希釈法の適用と相まって、高い信頼性を有している。

2.2.2 現行法⁶⁾

本法は、化学分離に抽出クロマトグラフィーを、測定に HR-ICP-MS を適用している。HR-ICP-MS による測定は TIMS と比較して測定精度がやや落ちる（主同位体で $\pm 1\%$ 程度）が、照射後試験の解析精度を考えると十分な精度を有している。また、本試験のように測定対象とした FP 核種が多数に及んでいる場合に、必要な精度を確保しつつ比較的短時間でデータを取得することが期待できる。抽出クロマトグラフィーによる化学分離スキームを図 2-2 に示す。

今回の化学分離に適用した抽出クロマトグラフィーは、従来法と比較して極めて迅速な手法である。しかしながら、この化学分離方法は、平成 22 年度報告書³⁾において Nd フラクシオンに Ce が混入したことにより、 ^{142}Ce の寄与による ^{142}Nd の補正を実施する必要があるなど、現時点では改良の余地があることが分かっている。この同重体の測定結果に与える影響は 4 章で議論する。なお、HR-ICP-MS での測定は、TIMS による測定が 1 元素ずつであることに対して、多元素の同時測定が可能であることが大きな利点である。ただし、同重体の干渉による影響を排除することは困難なため、希土類元素等の同重体を多数有する元素等については化学分離が不可欠であることは TIMS と同様である。

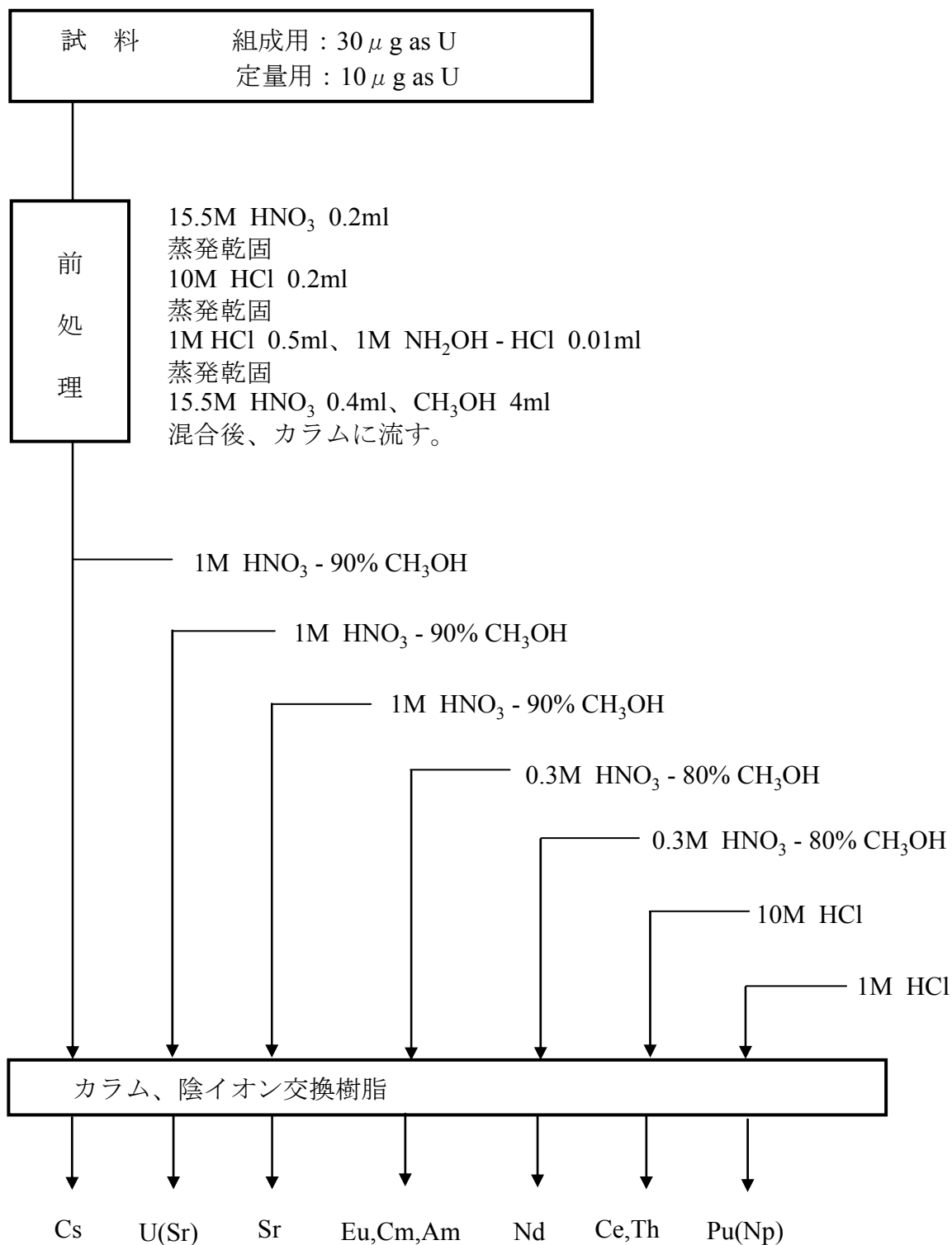
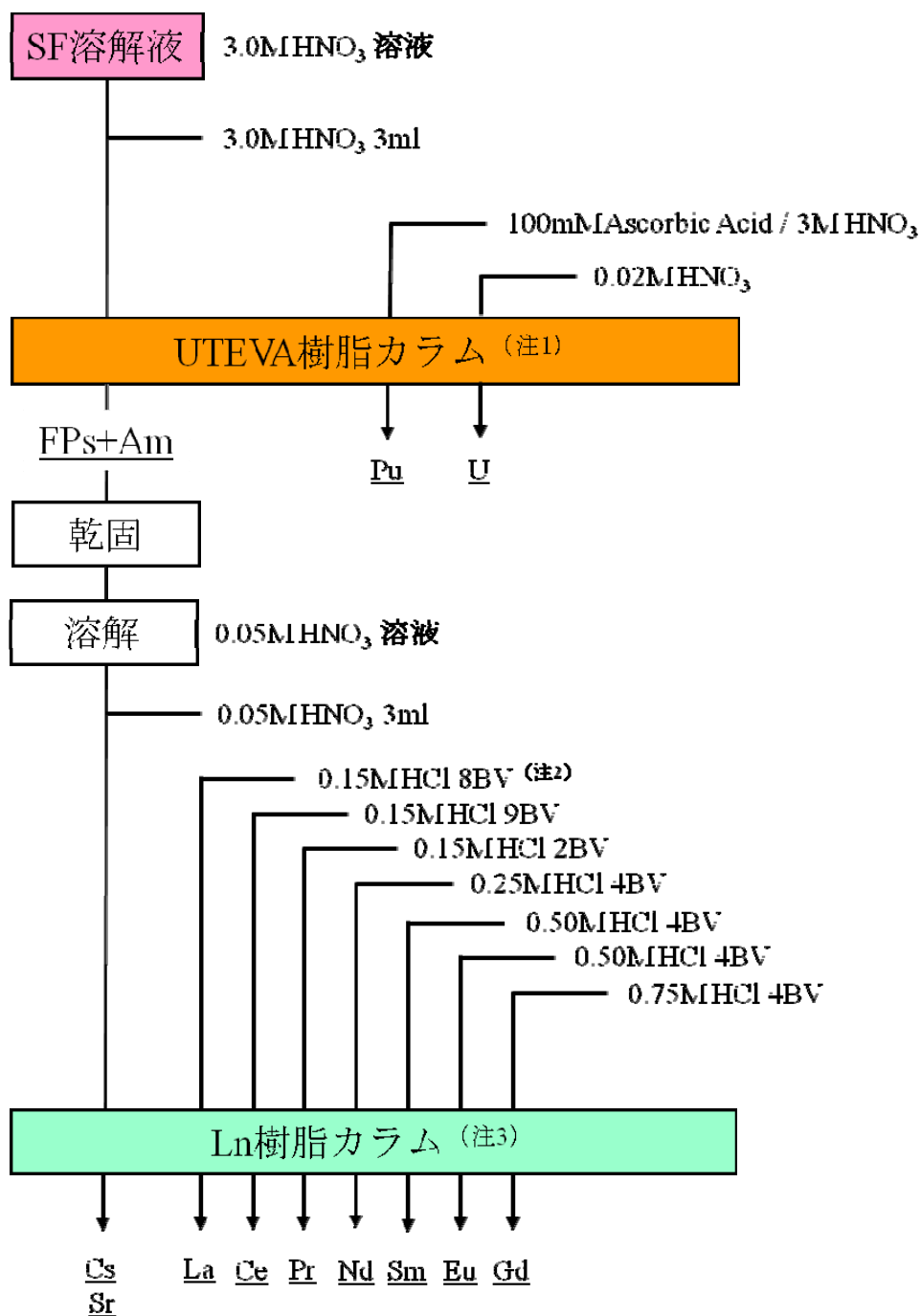


図 2-1：従来法における陰イオン交換による化学分離スキーム



注1 UTEVA 樹脂カラム：石英製カラム (φ3・100 mm)、UTEVA樹脂 (50~100 μm)
樹脂充填量 0.25ml (充填高さ 35 mm)

注2 BV： Bed Volume、樹脂の充填容積

注3 Ln 樹脂カラム：石英製カラム (φ3・100 mm)、Ln 樹脂 (100~150 μm)
樹脂充填量 0.5 ml (充填高さ 70 mm)

図 2-2： 現行法における抽出クロマトグラフィーによる化学分離スキーム

2.3 測定結果における差異の発生と受託事業で推定したその原因

本事業の平成 23 年度報告書⁴⁾において、Nd 定量値の結果に従来法（陰イオン交換分離－TIMS 測定、2.2.1 項参照）と現行法（抽出クロマトグラフィー－HR-ICP-MS 測定、2.2.2 項参照）で差異を生じたことが問題点として挙げられた。差異は、2F1ZN3c2 及び 2F1ZN3a9 試料で 2-3%、2F1ZN3c3 試料で 8%であった。ASTM 規格で定義された Nd-148 法の測定誤差が 3%程度であるとしても、近年の詳細な燃焼率評価の結果を考えると、2F1ZN3c2 及び 2F1ZN3a9 試料における差異も若干大きく、特に 2F1ZN3c3 試料の差異 8%は有意であると考えた。

従来法と現行法によって得られた測定値に差異が生じた原因は、それぞれの測定手法に内在する原因そのものによって生じるだけでなく、その他、実験に供する試料やデータの処理が原因となっている可能性もある。当該事業の平成 23 年度に原因の検討及び再分析を実施しており、その原因を以下のいずれかによるものと推定した。

- ① 燃料溶解溶液の二次希釈試料から測定試料を調製する際の分取・希釈・秤量操作における液撥ね等による試料ロス、秤量値の読み取り間違い等。
- ② 燃料溶解溶液の一次希釈試料から二次希釈試料の調製時の分取・希釈・秤量操作における液撥ね等による試料ロス、秤量値の読み取り間違い等。
- ③ HR-ICP-MS の感度変化等による測定上のエラー。
- ④ スパイク試料の Nd 表示値の誤り。

上記の推定原因に対し、平成 23 年度に再分析を実施したところ、以下の結果を得た⁴⁾。①については、二次希釈試料による Nd 再測定を実施した結果、同様の結果が得られたため、原因でないことがわかった。③及び④については、新たに Nd スパイク試料を調製し、二次希釈試料を TIMS により測定したところ、HR-ICP-MS と同様の結果が得られたため、原因でないことが確認されている。

②については、二次希釈試料に対する U 濃度を測定し、平成 21 年度に実施した従来法から算出した U 濃度と比較したところ、4～12%の差異が生じた。当該事業では、各 FP 核種量は U 原子数を分母として規格化している。すなわち平成 22 年度に報告した希土類元素の定量値は、平成 21 年度に実施した従来法によって一次希釈試料に対して測定した溶液重量あたりの U 原子数に、二次希釈試料調製の際の希釈率を用いて U 濃度を算出し、その値を使用して規格化している。そこで、平成 22 年度に得られた現行法による Nd 定量結果について平成 23 年度に再測定した U 原子数を使用して再評価したところ、従来法との差異が 2F1ZN2c3 及び 2F1ZN3c2 で 7%、2F1ZN2c2、2F1ZN3c3 及び 2F1ZN3a9 で 4%となった。

したがって、差異の原因は、②の一次希釈試料から二次希釈試料を調製する段階で液撥ね等の

操作や表示値読み取りのミスがあったことではないかと考えられた。しかし、当該事業内ではこれ以上の原因を特定するまでには至らなかった。

3. フォローアップ測定

3.1 フォローアップ測定の目的

JAEA では、東京電力福島第一原子力発電所事故に対応する技術開発の一つとして、今後も継続して燃焼燃料中の FP 核種測定に係る試験を行う計画である。Nd の測定は燃焼率評価に必須の項目であり、信頼性の高い結果が求められる。また、2 つの手法による測定結果の差に関する原因の究明は今後の試験を行う上で重要である。このため、確度の高い測定結果を取得するとともに、測定結果の差異の原因を究明することを目的として、受託事業で行った燃料溶解溶液全試料を対象として燃焼率評価に必要な元素 (U、Pu 及び Nd) の再分析を実施するフォローアップ測定を実施することとした。

3.2 従来法と現行法の差の原因に関する再検討

2.3 項において、平成 23 年度に実施した受託事業における原因究明では、二次希釈試料の調整作業の段階で測定値に影響を与える要因のあったことが示唆されている。今回のフォローアップ測定を開始する前に、従来法と現行法の間には差異が生じる原因を以下のように再度検討した。

(1) 平成 21 年度に実施した従来法による U、Pu 及び Nd の測定では、試料分取量が極めて少量であったため (溶液重量で 0.03~0.06 g 程度)、秤量値の誤差が溶液重量あたりの U 原子数定量結果に影響を与えている可能性があることが考えられる。燃焼率の評価においては 2.2.1 項で述べたとおり、U、Pu、Nd の混合スパイクを使用して U に対する Pu 及び ^{148}Nd の原子個数比を用いて算出されることから、溶液重量あたりの U 原子数はその評価には関与しない。しかし、本受託事業では、現行法によって測定する各 FP 核種値の規格化に用いる U 原子数として、従来法によって測定した一次希釈試料の溶液重量あたりの U 原子数を希釈倍率で除した値を使用したことから、従来法で測定した U 原子数の値に不確定性が存在した場合、現行法の Nd 定量値に影響を与える。

(2) 受託事業で行った測定の前に、U、Pu 及び Nd の混合スパイクの校正を実施していなかった。前述したとおり、燃焼率は試料中の U、Pu 及び ^{148}Nd の原子個数比から算出される。この原子個数比は、U、Pu 及び Nd の混合スパイクを用いた同位体希釈法により求められる。混合スパイクを使用した場合、溶液蒸発があったとしても原子個数比の関係は保たれるが、信頼性の高い燃焼率測定を実施するには、混合スパイクの U、Pu 及び Nd の原子個数比を校正し、それらの値を確定しておく必要があった。また、混合スパイクの校正を実施していなかったこと

は、上記(1)に記述したとおり、現行法によって測定する各 FP 核種値の規格化に用いる U 原子数の値に不確定性が生じる原因の一つとなることが考えられる。なお、受託事業で使用した混合スパイクは、平成 21 年度に実施した従来法で全量を消費したため、2 つの手法による測定結果の差異の発生が認められた後に当該混合スパイクの原子個数比を確認することはできなかった。

- (3) 平成 21 年度に実施した従来法において、化学操作上のミスを生じた可能性がある。本事業の平成 22 年度報告書³⁾で、全ての試料において従来法と現行法による Nd の同位体組成測定結果は良い一致を示していることが述べられている。同位体組成が一致していながら、定量値に差異が生じる原因としては、同位体希釈法によるスパイク添加試料の化学分離操作において、作業環境や試薬等に存在する天然 Nd による汚染や、試料間の相互汚染等により起こりうると考えた。なお、2.3 節に述べたとおり、現行法に対して、差異原因究明のための二次希釈試料の再測定等を実施しており、同様の差異を有する結果が得られていることから、平成 21 年度に実施した従来法において、上述した化学操作上のミスが発生していると考えた。

3.3 測定

3.3.1 測定条件の改善

2.3 節で記載したとおり、2 つの手法による Nd 定量値の差異の原因として、二次希釈試料の調製段階での問題が測定値に影響を与える要因が示唆された。また、3.2 節で記載したとおり、従来法による溶液重量あたりの U 原子数値の影響に加え、混合スパイクの校正未実施により発生した可能性も新たに抽出した。これらは、測定に使用した試料の健全性及び従来法による測定に問題があった可能性を意味している。差異の原因を排除し、確度の高いデータを得るための対応を以下に示す。なお、測定方法は、2.2 節に示した各方法の特徴を考慮し、実績の豊富な従来法を採用した。

- (1) 使用するすべての試料について、試料原液から再調製することとし、U、Pu 及び Nd の測定には、全て新たに調製した二次希釈試料を使用した。分取等の操作に使用する分析天秤は、少数点以下 4 桁まで表示可能なものを使用し、秤量は全て 0.5g 以上とすることで、分取等に係る不確定性を排除することとした。以下に、使用した分析天秤を示す。なお、再調製試料等の取扱いについては、分取・希釈の状況を撮影する、作業環境を清浄化する、試薬類は超高純度レベルを使用するなど、間違いや汚染等が生じないように細心の注意を払った。

- 株式会社 エー・アンド・ディ GH-252 及び FR-300
- メトラー・トレド(株) AE200

- (2) 測定を行う前に、スパイクに係わる不確定性を排除するため、混合スパイクの値付けを実施

した。詳細は 3.3.2 項に示す。なお、当該スパイクは、本フォローアップ測定用に新規に入手したものであり、受託事業内で使用した混合スパイクとは異なる。

(3) 再調製した二次希釈試料の測定により、試料原液の U 濃度を算出することとした。本フォローアップ測定の主目的は確定したデータを取得することであるため、燃焼率評価に必要な元素である U、Pu 及び Nd の各同位体組成及び原子個数比を求めるだけでよく、試料原液の U 濃度を求める必要はない。しかし、燃焼燃料の照射後試験では、 ^{95}Mo 、 ^{99}Tc 、 ^{101}Ru 、 ^{103}Rh 、 ^{109}Ag 等の難溶解性 FP 核種も測定対象であり、これらを他の FP 核種と同様に U を分母として規格化するためには、試料原液の U 濃度を求める必要がある。ここでは、今後も照射後試験を継続して実施することを想定し、ホットセル内での重量測定の操作性の確認として位置付けて実施した。

3.3.2 混合スパイク試料の値付け

定量に使用する混合スパイクは、使用前に U、Pu 及び Nd の標準試料による濃度値付けを実施し、使用するスパイクに関係する値の不確定性を排除することとした。図 3-1 に、混合スパイク試料値付けの作業フローを示す。

燃焼率評価のための U、Pu 及び Nd 測定に使用する混合スパイクには、 ^{233}U 、 ^{242}Pu 及び ^{150}Nd の各濃縮同位体を用いた。これに、以下に示す U、Pu 及び Nd の濃度標準を用いた同位体希釈法により濃度を値付けた。

- U 濃度標準：高純度天然金属 U（旧日本原子力研究所製：JAERI-U4）
- Pu 濃度標準：高純度金属 Pu（米国旧 National Bureau of Standards（NBS）製 949c）
- Nd 濃度標準：高純度 Nd（関東化学㈱製 Nd_2O_3 試薬（3N5））

上記濃度標準は、超高純度硝酸（多摩化学工業㈱製 TAMAPURE-AA100）及び超純水を用いて溶解した。溶解、分取及び希釈操作においては全て重量測定を行い、重量測定値から濃度を値付けた。混合スパイク試料は、同位体希釈法による値付けを行うため、同位体組成測定用と定量用（U、Pu 及び Nd の各濃度標準添加試料）の 2 系統での分離操作を実施した。化学分離は従来法の陰イオン交換分離法により行い、U、Pu 及び Nd を分離した後、それぞれを TIMS によって測定した（3.3.4 項に後述）。U 濃度標準及び Nd 濃度標準については天然組成であり、同位体組成測定の必要はないが、コンタミ等の影響がないことを確認するため、同位体組成測定を実施した。また、 ^{238}Pu に干渉する ^{238}U の影響を補正するため、混合スパイク試料の Pu 組成測定用試料はアルファ放射能測定を行った（3.3.5 項に後述）。さらに、Pu 濃度標準については、組成測定日を基準として Pu 純度保証日への崩壊補正を行い、測定日における Pu 純度補正を実施した。

混合スパイク試料の値付け結果を表 3-1 に示す。

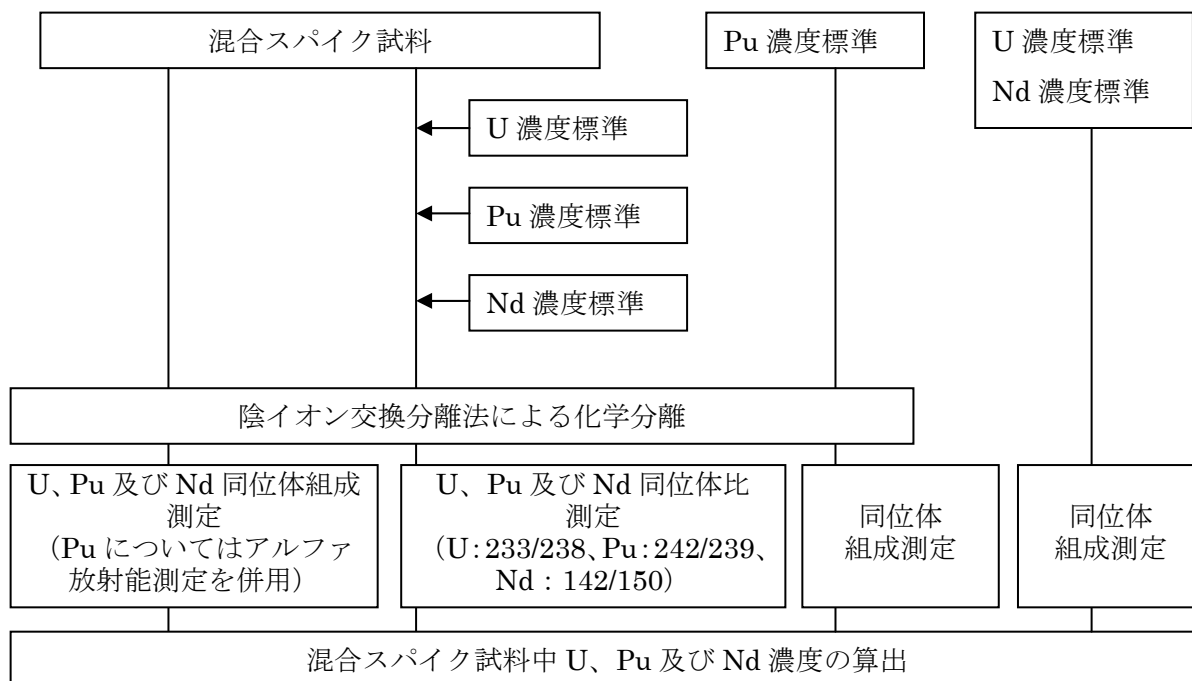


図 3-1： 混合スパイク試料の値付けの作業フロー

表 3-1: 混合スパイク試料中の U, Pu 及び Nd の同位体組成及び濃度

U			Pu			Nd		
2012/6/25 現在の値			2012/6/28 現在の値			2012/7/12 現在の値		
同位体組成 (原子百分率)		誤差(%)	同位体組成 (原子百分率)		誤差(%)	同位体組成 (原子百分率)		誤差(%)
233	98.2683	0.0006	238*	0.0030	3.0	142	2.0111	0.30
234	0.8466	0.03	239	0.0292	0.66	143	1.2064	0.04
235	0.0209	1.34	240	0.0892	0.25	144	1.9671	0.09
236	<0.001	—	241	0.0134	3.37	145	1.0494	0.05
238	0.8639	0.04	242	99.8653	0.001	146	1.8052	0.05
						148	1.1852	0.14
						150	90.7755	0.01
濃度			濃度			濃度		
1926.60 ng/g		0.10	50.36 ng/g		0.06	20.81 ng/g		0.09

※：²³⁸Pu については、²³⁸U による影響を考慮し、α線測定の結果を用いた。誤差は、α線測定の計数誤差を 3%とし、質量分析法による同位体比測定誤差を統計的な誤差伝播の計算により算出した。

各同位体組成の誤差は、質量分析法による同位体比測定結果の各標準偏差に基づき、統計的な誤差伝播の計算により算出した。

各濃度の誤差は、同位体希釈法の算出式に基づき、統計的な誤差伝播の計算により算出した。

各±は、質量分析法による同位体比測定結果の各標準偏差に基づき、統計的な誤差伝播の計算により算出した。

3.3.3 分析操作

二次希釈試料から、U、Pu 及び Nd 同位体組成測定用と同位体希釈法による定量用試料を分取した。定量用試料には 3.3.2 項で値付けた混合スパイク試料を添加した。その後、図 2-1 の分離スキームに従い、同位体組成測定用及び定量用試料中の U、Pu 及び Nd を化学分離した。各分離液を蒸発乾固後、再溶解し、TIMS による測定を行った。また、分離した Pu 同位体組成用試料の一部を分取し、 ^{238}Pu に干渉する ^{238}U の影響を補正するためのアルファ放射能測定を実施した。図 3-2 に分析操作のフローを示す。

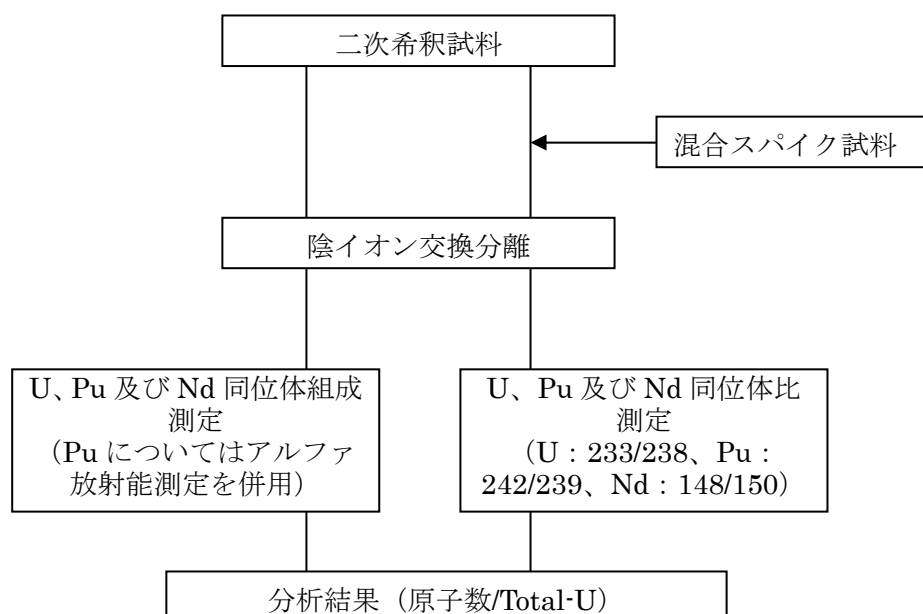


図 3-2 : 分析操作フロー

3.3.4 TIMS 測定

同位体組成測定には、フィニガン・マット社製の TIMS である MAT262 を用いた。本装置は、イオン検出器に 7 つのファラデーカップを備え、最大 13 試料を組み込むことができる。

3.3.3 項で分離した U、Pu 及び Nd の乾固物を約 1M 硝酸で溶解した。溶解濃度は、燃料の溶解及び分取・希釈データから各元素のおおよその含有量を推定し、約 100ngU/ μL 、30ngPu/ μL 及び 5ngNd/ μL となるよう調整した。各溶解液 1 μL をマイクロピペットで TIMS 用試料フィラメントに塗布し、電流を通して酸化物として固着させたのち、装置内部の所定の箇所に設置し、真空排気等を行った。試料を測定する前には、試料と同時に設置した校正用試料を用いて装置の質量校正やファラデーカップ位置の調整等を実施した。

試料の同位体組成測定は全てトータルエバポレーション法で行った。トータルエバポレーション法は、試料に塗布した試料を完全に蒸発させ、その過程において発生するイオン全てを検出す

る方法であり、質量差別効果に伴うバイアスの補正を必要としない利点がある。測定は、同一の試料から3回の繰り返し測定を行い、その平均値を測定値とした。各同位体組成結果に付随する誤差は、各同位体比の繰り返し測定による標準偏差を誤差伝播して算出した。また、同位体希釈法による定量結果に付随する誤差は、同位体希釈法の算出式に基づき、上記同位体組成結果の誤差、混合スパイク試料の誤差等を伝播して算出した。

3.3.5 アルファ放射能測定

アルファ放射能測定用試料は、従来法の陰イオン交換法により分離した Pu 溶液の一部を分取り、 ^{238}Pu として一試料あたり 10~100Bq 程度に希釈・調整したのち、各試料を 25mm φ タンタル板に焼き付け調製した上で、その試料に対してアルファ線スペクトロメータ (EG&G ORTEC モデル 676A) にて、 ^{238}Pu 放射能と ^{239}Pu 及び ^{240}Pu 放射能の和に対する比を測定した。

^{238}Pu は同位体組成としては少量であるが、半減期が短いため、アルファ線スペクトルを測定すると大きなピークが得られる。得られた ^{238}Pu のピークは、 ^{239}Pu 及び ^{240}Pu のピーク領域に影響を与えるため、文献⁷⁾に従いテーリング補正を実施している。求めた放射能比に、TIMS による同位体組成測定結果を併用し、 ^{238}Pu 同位体比を算出した。

アルファ放射能測定における測定誤差は、同法による繰り返し測定誤差 0.2%以下及び試料調製誤差 0.35%以下を伝播して 0.5%以下と算出した。

3.4 測定結果

全 U 原子数に対する原子個数比で表される結果一覧を表 3-2 に示す。各同位体の測定誤差は、その存在量（割合）に依存する。これは、存在量が多い同位体は TIMS で測定した時の検出信号が大きいため計数誤差が小さくなり、存在量が少ない同位体は検出信号が小さいために計数誤差が大きくなることによる。フォローアップ測定においては、U では、同位体存在度が < 0.05% では誤差 < ±3%、同位体存在度が 0.05~2% では < ±0.3%、同位体存在度が 2%以上では < ±0.2% であった。Pu では、全ての同位体の存在度が > 1% であり、 ^{238}Pu 以外の各同位体の誤差は < ±0.3% であった。 ^{238}Pu は、アルファ放射能測定と TIMS を併用した結果、< ±0.6% と評価した。Nd では、 ^{142}Nd で誤差 < ±0.6%、その他の同位体で < ±0.3% であった。これは、2F1ZN2c2 の ^{142}Nd を除き、平成 21 年度の測定結果とほぼ同等であった。

表 3-2 : 使用済燃料の分析結果

(単位 : 原子数/Total-U)

試料名	2F1ZN2c2	2F1ZN2c3	2F1ZN3c2	2F1ZN3c3	2F1ZN3a9	誤差(%)
²³⁴ U	1.789E-04*	3.293E-04	1.407E-04	2.460E-04	7.718E-05	<2.2
²³⁵ U	1.122E-02	1.743E-02	2.320E-03	3.689E-03	2.193E-04	<0.91
²³⁶ U	3.805E-03	6.269E-03	4.799E-03	7.900E-03	2.916E-03	<0.23
²³⁸ U	9.848E-01	9.760E-01	9.927E-01	9.882E-01	9.968E-01	<0.12
U-Total	1.000E+00	1.000E+00	1.000E+00	1.000E+00	1.000E+00	<0.12
²³⁸ Pu*	1.299E-04	1.811E-04	3.850E-04	5.346E-04	3.786E-04	<0.52
²³⁹ Pu	5.902E-03	6.098E-03	4.722E-03	4.736E-03	4.110E-03	<0.13
²⁴⁰ Pu	2.357E-03	2.386E-03	3.576E-03	3.640E-03	3.358E-03	<0.13
²⁴¹ Pu	6.634E-04	6.955E-04	9.935E-04	1.001E-03	9.045E-04	<0.24
²⁴² Pu	3.567E-04	3.753E-04	1.489E-03	1.500E-03	2.366E-03	<0.13
Pu-Total	9.409E-03	9.736E-03	1.116E-02	1.141E-02	1.112E-02	<0.13
¹⁴² Nd	9.414E-05	5.069E-05	1.251E-04	1.596E-04	2.115E-04	<0.53
¹⁴³ Nd	1.206E-03	1.727E-03	1.521E-03	1.947E-03	1.135E-03	<0.18
¹⁴⁴ Nd	1.766E-03	2.595E-03	4.226E-03	5.681E-03	5.265E-03	<0.18
¹⁴⁵ Nd	9.499E-04	1.364E-03	1.681E-03	2.184E-03	1.746E-03	<0.18
¹⁴⁶ Nd	9.647E-04	1.367E-03	2.093E-03	2.748E-03	2.562E-03	<0.18
¹⁴⁸ Nd	5.093E-04	7.107E-04	1.032E-03	1.310E-03	1.217E-03	<0.18
¹⁵⁰ Nd	2.529E-04	3.265E-04	5.246E-04	6.334E-04	6.467E-04	<0.27
Nd-Total	5.743E-03	8.141E-03	1.120E-02	1.466E-02	1.278E-02	<0.18
Pu 分離日	2012/7/5	2012/7/5	2012/7/5	2012/7/5	2012/7/5	—
Pu 測定日	2012/7/18	2012/7/20	2012/7/20	2012/7/23	2012/7/20	—

分析値は測定日の値であり、冷却期間及び運転履歴に基づいた炉内崩壊の補正等を実施していない。

* 1.789×10⁻⁴を示す。他の表でも同様に記載。

※ : ²³⁸Puについては、²³⁸Uによる影響を考慮し、α線測定の結果を用いた。

3.5 考察

Pu の定量値について、本フォローアップ測定結果と平成 21 年度定量値との比較を表 3-3 に示す。また、表 3-4 に Nd 定量値の本フォローアップ測定結果と平成 21 年度及び平成 23 年度の測定値との比較を示す。表 3-5 は試料原液の U 濃度の測定値を示す。表 3-6 には、参考として平成 21 年度の従来法による U、Pu 及び Nd 等の測定結果（平成 21 年度報告書²⁾ p40、表 4-4 掲載）を記載する。なお、表 3-3 及び表 3-4 の平成 21 年度定量値（B）及び(D)は、平成 21 年度に一次希釈試料を対象にして従来法により測定した値（平成 21 年度報告書²⁾ p40、表 4-4 掲載、Pu total 及び Nd total）である。また、表 3-4 の平成 23 年度定量値（E）は、平成 23 年度に二次希釈試料を対象にして TIMS により U の定量を行った結果で、平成 22 年度に現行法で測定した Nd 定量値を規格化した値（平成 23 年度報告書⁴⁾ p25、表 4-3 掲載、D 欄）、表 3-5 の平成 23 年度定量値（G）は、2 つの手法による Nd 定量値の差異の原因検討の一環として、平成 23 年度に新たに一次希釈試料から調製した二次希釈試料中の U 濃度を再測定し、原液濃度に換算した値（平成 23 年度報告書⁴⁾ p27、表 4-5 掲載、下段）である。

表 3-3： Pu 再測定結果と平成 21 年度定量値との比較

(単位：原子数/Total-U)

試料名	2F1ZN2c2	2F1ZN2c3	2F1ZN3c2	2F1ZN3c3	2F1ZN3a9
再測定結果 (A)	9.409E-03*	9.736E-03	1.116E-02	1.141E-02	1.112E-02
平成 21 年度定量値 (B) §	9.374E-03	9.707E-03	1.117E-02	1.145E-02	1.109E-02
(A)/(B)	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00

*9.409×10⁻³を示す。

§ 従来法と TIMS によって求め、リファレンス値として扱われている値

表 3-4： Nd 再測定結果と平成 21 年度及び平成 23 年度定量値との比較

(単位：原子数/Total-U)

試料名	2F1ZN2c2	2F1ZN2c3	2F1ZN3c2	2F1ZN3c3	2F1ZN3a9
再測定結果 (C)	5.743E-03*	8.141E-03	1.120E-02	1.466E-02	1.278E-02
平成 21 年度定量値 (D) §	5.727E-03	8.381E-03	1.168E-02	1.472E-02	1.286E-02
(C)/(D)	1.00	0.97	0.96	1.00	0.99
平成 23 年度定量値 (E) #	5.49E-03	7.83E-03	1.09E-02	1.42E-02	1.24E-02
(E)/(D)	0.96	0.93	0.93	0.96	0.96
(E)/(C)	0.96	0.96	0.97	0.97	0.97

*5.743×10⁻³を示す。

§ 従来法と TIMS によって求め、リファレンス値として扱われている値

平成 23 年度の Nd 定量値（平成 22 年度に現行法で測定し、規格化に使用した U 濃度は平成 23 年度に TIMS により二次希釈試料の再測定で求めた結果を使用）

表 3-5 : 試料原液のウラン濃度

試料名	再測定結果				平成 23 年度 定量値 (G)	(G)/(F)
	試料希釈率	二次希釈試料 濃度 原子数/g 溶液	試料原液濃度 (F) 原子数/g 溶液	誤差 (%)		
2F1ZN2c2	1074.7	1.250E+16*	1.344E+19	0.11	1.411E+19	1.05
2F1ZN2c3	986.6	1.634E+16	1.612E+19	0.11	1.648E+19	1.02
2F1ZN3c2	963.1	1.468E+16	1.414E+19	0.11	1.614E+19	1.14
2F1ZN3c3	983.7	1.335E+16	1.313E+19	0.11	1.357E+19	1.03
2F1ZN3a9	986.2	1.923E+16	1.897E+19	0.11	1.953E+19	1.03

* 1.250×10^{16} を示す。

表 3-6：平成 21 年度の従来法による U、Pu 及び Nd 等の測定結果*

単位：原子数/Total-U

試料名	2F1Z2c2	2F1Z2c3	2F1Z3c2	2F1Z3c3	2F1Z3a9	誤差(%)
燃焼率* ¹ (%FIMA)	2.96	4.16	5.99	7.21	6.76	
燃焼度* ² (Gwd/t)	28.4	39.9	57.5	69.2	64.9	
U-234	1.70E-04	3.23E-04	1.28E-04	2.34E-04	6.87E-05	<1.4
U-235	1.123E-02	1.742E-02	2.240E-03	3.687E-03	2.300E-04	<0.3* ⁴
U-236	3.799E-03	6.260E-03	4.807E-03	7.889E-03	2.917E-03	<0.2
U-238	9.848E-01	9.760E-01	9.928E-01	9.882E-01	9.968E-01	<0.2
U total	1.000E+00	1.000E+00	1.000E+00	1.000E+00	1.000E+00	
Pu-238* ³	1.291E-04	1.857E-04	4.045E-04	5.756E-04	4.002E-04	<0.5
Pu-239	5.827E-03	6.021E-03	4.666E-03	4.684E-03	4.064E-03	<0.2
Pu-240	2.325E-03	2.353E-03	3.518E-03	3.583E-03	3.276E-03	<0.2
Pu-241	7.413E-04	7.772E-04	1.112E-03	1.120E-03	1.012E-03	<0.2
Pu-242	3.517E-04	3.700E-04	1.471E-03	1.482E-03	2.336E-03	<0.2
Pu total	9.374E-03	9.707E-03	1.117E-02	1.145E-02	1.109E-02	
Nd-142	3.150E-05	4.057E-05	1.142E-04	1.495E-04	1.926E-04	<0.6
Nd-143	1.225E-03	1.782E-03	1.586E-03	1.954E-03	1.139E-03	<0.3
Nd-144	1.778E-03	2.675E-03	4.414E-03	5.707E-03	5.309E-03	<0.3
Nd-145	9.669E-04	1.408E-03	1.757E-03	2.194E-03	1.761E-03	<0.3
Nd-146	9.606E-04	1.407E-03	2.183E-03	2.758E-03	2.578E-03	<0.3
Nd-148	5.154E-04	7.330E-04	1.078E-03	1.316E-03	1.227E-03	<0.3
Nd-150	2.503E-04	3.361E-04	5.463E-04	6.366E-04	6.495E-04	<0.7
Nd total	5.727E-03	8.381E-03	1.168E-02	1.472E-02	1.286E-02	
Cs-134	6.45E-06	1.01E-05	4.17E-05	5.35E-05	5.45E-05	<4
Cs-137	1.54E-03	2.18E-03	3.47E-03	4.32E-03	3.90E-03	<4
Eu-154	1.56E-05	2.00E-05	3.77E-05	4.36E-05	3.83E-05	<4
Eu-155	2.69E-06	3.42E-06	9.63E-06	1.13E-05	1.12E-05	<6
Pu分離日	2009/12/4	2009/12/4	2009/12/4	2009/12/4	2009/12/4	
MS(Pu)測定日	2009/12/16	2009/12/16	2009/12/18	2009/12/16	2009/12/18	
γ測定日時	2010/1/29 10:31	2009/12/21 17:09	2010/2/5 14:09	2010/2/3 13:32	2010/2/2 9:15	

分析値は測定日の値であり、冷却期間及び運転履歴に基づいた炉内崩壊の補正等は実施していない。

- * 1：燃焼率の計算には、Nd-148のU-235の熱中性子による核分裂収率を用いた。
- * 2：燃焼度は、1%FIMAを9,600MWd/t (ASTM E321-96)として換算した。
- * 3：Pu-238については、U-238による影響を考慮し、α線測定の結果を用いた。
- * 4：2F1Z3a9は、U-235の存在率が非常に低く誤差が4%程度となったため除く。

※：本表は、平成 21 年度報告書²⁾ p40 (表 4-4) より転載

表 3-2 及び表 3-6 より、フォローアップ測定の結果得られた Pu/U（原子個数比）、及び U、Pu、Nd それぞれの同位体組成は、2F1ZN2c2 の ^{142}Nd を除き、全ての試料について平成 21 年度測定結果と良い一致を示していることがわかる。また表 3-3 に示すように、平成 21 年度に測定した Pu 定量値は妥当な結果であった。

表 3-4 に示す Nd 測定結果について、2F1ZN2c2、2F1ZN3c3 及び 2F1ZN3a9 試料については、フォローアップ測定結果と平成 21 年度測定結果は良い一致を示したが、2F1ZN2c3 及び 2F1ZN3c2 試料については、フォローアップ測定結果は平成 21 年度定量値よりも 3~4%程度低めの結果となった。本フォローアップ測定は差異の要因を排除した上で実施しており、確定結果であると考えられることから、2F1ZN2c3 及び 2F1ZN3c2 試料について、平成 21 年度の Nd 定量値は 3~4%程度高めの評価をしていた可能性がある。この、2F1ZN2c3 及び 2F1ZN3c2 試料におけるフォローアップ測定と平成 21 年度定量値との差異の原因については、全試料で Pu 定量値及び各試料の Nd 同位体組成が良く一致していることから、試料に起因するものではない。可能性の高い事象として、元素の定量に適用した同位体希釈法において、スパイクと混合した試料の化学分離の過程で、天然 Nd の汚染や、他試料からの Nd の相互汚染等が発生したと考えられる。また、表 3-4 に示す Nd 測定結果についてフォローアップ測定結果と平成 23 年度定量値（平成 23 年度に U 濃度を再測定した結果を反映した値、表 3-4 参照）を比較すると、本フォローアップ測定の方が試料間のばらつきは少なくなっているが 3~4%程度高めであって、系統的原因があることがわかった。平成 23 年度の Nd 定量値は、平成 22 年度に現行法によって測定した Nd 量を、平成 23 年度に測定した溶液重量当たりの U 原子数で除して求めている。二つの測定の間には 1 年の時間差がある。密閉している容器とはいえ、保管していた試料量が数 mL という少量であるため試料の自然蒸発が無視できず、分母とした U 濃度が平成 22 年度の時よりも高くなった可能性がある。たとえば、保管していた各試料数 mL のうち 3~4%程度が蒸発したと仮定すると、平成 23 年度値とフォローアップ測定値との差異が 3~4%程度生じることに相当する。試料は密栓したポリバイアル瓶に保管していたが、1 年の期間であれば、この程度の蒸発は考え得る事象である。本事象を考慮すると、平成 22 年度に実施した現行法による Nd 測定は健全であったと推察することができる。

表 3-2 及び表 3-6 に示すように、2F1ZN2c2 試料の ^{142}Nd 同位体比の本フォローアップ測定結果が平成 21 年度値と比較して若干高かった。この 2F1ZN2c2 試料の ^{142}Nd 同位体については、天然の Nd または Ce が化学操作の段階でわずかながら混入したものと考えられる。しかし、この同位体組成を平成 21 年度値に置き換えて算出しても、Nd 定量値全体には 1%程度の差異を与える程度であり、結果に大きな影響を与えるものではない。

表 3-5 に示す試料原液の U 濃度について、平成 23 年度定量値と本フォローアップ測定結果を比較すると 2F1ZN3c2 試料で 14%と大きな差を示し、その他の 4 試料については 5%以下の差異があることが分かった。本フォローアップ測定では試料原液から再度試料の分取を実施し、その

際、それぞれの分取重量を測定している。また、定量に使用した混合スパイク試料も校正している。そのため、測定結果は正しいと考えられる。一方、平成 23 年度定量用試料は、平成 23 年度に一次希釈試料から再調製した二次希釈試料であるが、平成 21 年度に試料原液から一次希釈試料を調製する際の分取・希釈操作においては重量を測定せず、容量により希釈していた。したがって、平成 23 年度定量値と本フォローアップ測定結果の差異は分取・希釈操作における重量測定の適用の有無が大きく影響していると考えられる。なお、平成 23 年度報告書⁴⁾に記載された ^{95}Mo , ^{99}Tc , ^{101}Ru , ^{103}Rh , ^{109}Ag , ^{133}Cs について、規格化のために使用した U 原子数は平成 23 年度の測定値を用いていることから、当該差異は、平成 23 年度に定量した ^{95}Mo , ^{99}Tc , ^{101}Ru , ^{103}Rh , ^{109}Ag , ^{133}Cs の結果に影響を与えることとなる。

2.3 節及び 3.2 節で記載したとおり、従来法と現行法による Nd 定量値の差異については、①二次希釈試料の調製段階で測定値に影響を与える要因が入ったこと、②従来法で測定した U 原子数の値に不確実性が存在した可能性があること、③混合スパイクの校正未実施、④従来法による Nd の化学分離操作においてミスを生じた可能性があること、の 4 点により発生した可能性がある。以下に、本フォローアップ測定の結果を基準に、従来法と現行法の Nd 定量値及び U 濃度測定結果の差異の原因をまとめる。

(1) 本フォローアップ測定と平成 21 年度に実施した従来法の Nd 定量値の差異の原因

①の原因に対し、全試料で Pu 定量値及び各試料の Nd 同位体組成が良く一致していることから、試料に起因するものではないこと、②の原因に対し、混合スパイクによる燃焼率測定の原理から、U 原子数の不確実性は関与しないこと、③の原因に対し、フォローアップ測定結果との比較では 5 試料中 3 試料は良く一致していること、の各結果から、①から③は該当しないと考えられる。したがって、平成 21 年度定量値に生じた差異は原因④に該当し、2F1ZN2c3 及び 2F1ZN3c2 の定量において、スパイクと混合した試料中の Nd の化学分離の過程で、試薬や環境中からの天然 Nd の汚染や、他試料からの Nd の相互汚染等により生じたと考えられる。

(2) 本フォローアップ測定と平成 23 年度に実施した現行法の Nd 定量値の差異の原因

平成 23 年度の現行法（平成 22 年度に現行法で測定した Nd 定量値を、平成 23 年度に実施した二次希釈試料の U 濃度の測定によって再評価した結果）と、平成 21 年度の従来法との差異は 2F1ZN2c3 及び 2F1ZN3c2 で 7%、2F1ZN2c2、2F1ZN3c3 及び 2F1ZN3a9 で 4%であった（2.3 節及び表 3-4 参照）。平成 23 年度定量値とフォローアップ測定結果を比較すると、系統的な差異を有するものの全試料で同様の傾向を有している。このことから、本フォローアップ測定と平成 23 年度に実施した現行法の差異の原因は、保管試料の経時に伴う蒸発による濃度変化であると推定される。すなわち、平成 21 年度に二次希釈試料を調製し、平成 23 年度に当該試料の U 濃度の測定を実施するまでの期間に試料中 U 濃度が 3~4%程度高く

なり、その値を使用して平成 22 年度に現行法で測定した Nd 定量値を再規格化したことにより、Nd 定量値が 3~4%程度低く算出されたと考えられる。また、平成 21 年度従来法と平成 23 年度現行法における 2F1ZN2c3 及び 2F1ZN3c2 の差異が他の 3 試料に比べてさらに 3%程度低くなっているが、これは上記 (1) に記載したとおり、平成 21 年度従来法に起因する原因④に該当すると推定した。

(3) U 濃度測定結果における本フォローアップ測定と平成 23 年度定量値の差異の原因

U 濃度測定結果の差異については、平成 21 年度に実施したホットセル内での試料原液から一次希釈試料を調製する際に重量測定を実施しなかったことが影響したと推定した。

これらの検討結果を踏まえ、本受託事業の核分裂生成核種の組成測定に関するデータの取扱いを以下のとおりとする。

(1) 2F1ZN2c3 及び 2F1ZN3c2 試料の Nd 測定結果については、本フォローアップ測定値を確度の高いデータとして採用する。これにより、この 2 試料の燃焼率は、平成 23 年度の報告書に記載されているよりも 3-4%小さい値に変わる。また、当該 2 試料の U 及び Pu 測定値については、本年度と平成 21 年度の測定間の差は小さいが、Nd の測定との整合性をとる観点から、本フォローアップの測定結果を確度の高いデータとする。

(2) 平成 23 年度に定量した ^{95}Mo , ^{99}Tc , ^{101}Ru , ^{103}Rh , ^{109}Ag , ^{133}Cs の規格化を行う時に使用する U 濃度は、本フォローアップ測定の値とする。

(3) 平成 21 年度に報告し、平成 23 年度に行った U 濃度の再測定結果を反映して改定していた ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{155}Eu の測定値について、平成 23 年度の U 濃度再測定値は、試料蒸発の影響を受けていることが考えられる。このため、平成 21 年度の値の方が試料の希釈作業からの経過時間が短く、試料蒸発の影響が少ないことから確度が高いと考え、平成 21 年度の値を採用する。

4. データ解析評価

4.1 同重体混入の効果

現行法は極微量の試料を使用して迅速に測定が出来るという特徴を持つ。一方で元素の化学分離が完全に行われないことから、HR-ICP-MS による同位体比測定時に着目同位体と同じ質量数の他元素（同重体）も同時に検出される可能性がある。この同重体混入の影響は、混入割合が各試料の化学的条件や生成量の差によって異なるため、評価を行うこと自体が困難である。しかし、本手法における同重体の混入の効果を把握することは測定試験データのバイアス評価をする際に重要であり、今後の同様の試験における測定結果の評価時にも参考になることから、今回取得した分離試験結果と詳細な燃焼計算結果に基づいて同重体の混入効果の評価を試みた。

4.2 同重体混入の割合

平成23年度報告書⁴⁾ 5.3.1項に記載している元素分離の模擬試験において得られた各元素量の混入割合と、燃焼計算で得られた同位体量を掛け合わせることで、着目同位体に対する同重体の割合を求めた。今回の計算値は、核データライブラリに JENDL-4⁸⁾を使用した MVP-BURN⁹⁾による燃焼計算結果を用いている。ただし、一部の同位体については MVP-BURN の燃焼チェーンに含まれていないために、SWAT3.1¹⁰⁾を用いた燃焼計算結果を使用した。その評価結果を表 4-1 から表 4-5 に示す。これらの表から以下のことが示される。

- (1) Nd 同位体では ^{142}Ce 混入の影響が大きい。Nd は従来から行ってきた分離法と TIMS を使用した測定値をリファレンスとしているために、この混入は本測定結果に影響を与えない。
- (2) Sm 同位体では、 ^{154}Sm に対して ^{154}Eu が 5%程度の混入と、Gd 入り燃料では ^{154}Sm に対する ^{154}Gd の混入が数 10%あることが分かる。
- (3) Eu 同位体では、Gd 入り燃料の場合には、 ^{154}Gd の ^{154}Eu への混入の効果が非常に大きく、数十倍の ^{154}Gd が ^{154}Eu に重なっている。 ^{155}Eu に対する ^{155}Gd の効果は、 UO_2 燃料及び Gd 入り燃料のいずれの場合でも 200%以下と大きくなっている。ただし、 ^{154}Eu と ^{155}Eu は γ 線測定で定量しているため、この効果は本測定結果に影響を与えない。
- (4) Gd 同位体では、 ^{154}Gd に対する ^{154}Sm と ^{154}Eu の混入は、 UO_2 燃料の場合にはそれぞれ 5%程度と 20%程度となっているが、Gd 入り燃料の場合には ^{154}Gd 量が多いために影響は小さい。 ^{155}Gd に対する ^{155}Eu の混入は 10-15%程度存在するが、その値は燃焼度に依存しており、また、 UO_2 燃料の方が Gd 入り燃料に比べて効果が大きい。

表 4-1 : 2F1ZN2c2 試料 (28.0GWd/t; UO₂-Gd₂O₃)

質量数	同重体の混入による誤差(%)									
	Nd [§]		Sm				Eu		Gd	
	Ce の混入	Sm の混入	Nd の混入	Pm の混入	Eu の混入	Gd の混入	Sm の混入	Gd の混入	Sm の混入	Eu の混入
142	1026.3%	0.0%								
143	0.0%	0.0%								
144	0.0%	0.0%								
145	0.0%	0.0%								
146	0.0%	0.0%		*						
147			0.0%	5%	0.0%	0.0%				
148	0.0%	0.3%	7.4%	0.0%	0.0%	0.0%				
149			0.0%	0.0%	0.0%	0.0%				
150	0.0%	1.7%	1.5%	0.0%	0.0%	0.0%				
151			0.0%	0.0%	1.8%	0.0%	77%			
152			0.0%	0.0%	0.0%	0.0%			N.A.	N.A.
153								0.0001%*		
154			0.0%	0.0%	5.9%*	110.7%*	24%#	3938%#	0.1%*	0.3%
155							0%#	184%#	0.0%	5.9%
156									0.0%	0.0%
157									0.0%	0.0%
158									0.0%	0.0%
159									0.0%	0.0%
160									0.0%	0.0%

*: SWAT3.1 計算値による

§:ネオジムの測定値は従来法によるものを採用している所以他们は参考値

#:¹⁵⁴Eu, ¹⁵⁵Eu はγ線測定で定量しているため他们は参考値

表 4-2 : 2F1ZN2c3 試料 (39.3GWd/t;UO₂)

質量数	同重体の混入による誤差(%)									
	Nd [§]		Sm				Eu		Gd	
	Ce の混入	Sm の混入	Nd の混入	Pm の混入	Eu の混入	Gd の混入	Sm の混入	Gd の混入	Sm の混入	Eu の混入
142	894.8%	0.0%								
143	0.0%	0.0%								
144	0.0%	0.0%								
145	0.0%	0.0%								
146	0.0%	0.0%								
147			0.0%	5%	0.0%	0.0%				
148	0.0%	0.4%	6.7%	0.0%	0.0%	0.0%				
149			0.0%	0.0%	0.0%	0.0%				
150	0.0%	1.8%	1.4%	0.0%	0.0%	0.0%				
151			0.0%	0.0%	1.4%	0.0%	98%			
152			0.0%	0.0%	0.0%	0.0%			N.A.	N.A.
153								0.0003%*		
154			0.0%	0.0%	5.7%*	1.5%*	24%#	54%#	4.3%*	20.3%
155							0%#	129%#	0.0%	8.4%
156									0.0%	0.0%
157									0.0%	N.A.
158									0.0%	0.0%
159									0.0%	0.0%
160									0.0%	0.0%

*: SWAT3.1 計算値による

§:ネオジムの測定値は従来法によるものを採用している所以他们は参考値

#:¹⁵⁴Eu, ¹⁵⁵Eu はγ線測定で定量しているため他们は参考値

表 4-3 : 2F1ZN3c2 試料 (56.6GWd/t;UO₂-Gd₂O₃)

質量数	同重体の混入による誤差(%)									
	Nd [§]		Sm				Eu		Gd	
	Ce の混入	Sm の混入	Nd の混入	Pm の混入	Eu の混入	Gd の混入	Sm の混入	Gd の混入	Sm の混入	Eu の混入
142	396.2%	0.0%								
143	0.0%	0.0%								
144	0.0%	0.0%								
145	0.0%	0.0%								
146	0.0%	0.0%		*						
147			0.0%	7%	0.0%	0.0%				
148	0.0%	0.5%	4.9%	0.0%	0.0%	0.0%				
149			0.0%	0.0%	0.0%	0.0%				
150	0.0%	1.6%	1.6%	0.0%	0.0%	0.0%				
151			0.0%	0.0%	2.0%	0.0%	70%			
152			0.0%	0.0%	0.0%	0.0%			N.A.	N.A.
153								0.0002%*		
154			0.0%	0.0%	5.5%*	34.2%*	25% [#]	1298% [#]	0.2%*	0.8%
155							0% [#]	96% [#]	0.0%	11.4%
156									0.0%	0.0%
157									0.0%	0.0%
158									0.0%	0.0%
159									0.0%	0.0%
160									0.0%	0.0%

*: SWAT3.1 計算値による

§:ネオジムの測定値は従来法によるものを採用している所以他们は参考値

#:¹⁵⁴Eu, ¹⁵⁵Eu はγ線測定で定量しているため他们は参考値

表 4-4 : 2F1ZN3c3 試料 (68.1GWd/t;UO₂)

質量数	同重体の混入による誤差(%)									
	Nd [§]		Sm				Eu		Gd	
	Ce の混入	Sm の混入	Nd の混入	Pm の混入	Eu の混入	Gd の混入	Sm の混入	Gd の混入	Sm の混入	Eu の混入
142	396%	0.0%								
143	0.0%	0.0%								
144	0.0%	0.0%								
145	0.0%	0.0%								
146	0.0%	0.0%		N.A.						
147			0.0%	7%	0.0%	0.0%				
148	0.0%	0.5%	4.7%	0.0%	0.0%	0.0%				
149			0.0%	0.0%	0.0%	0.0%				
150	0.0%	1.6%	1.5%	0.0%	0.0%	0.0%				
151			0.0%	0.0%	1.8%	0.0%	77%			
152			0.0%	0.0%	0.0%	0.0%			N.A.	N.A.
153										
154			0.0%	0.0%	5.1%*	1.1%*	27% [#]	46% [#]	5.7%*	23.6%
155							0% [#]	68% [#]	0.0%	16.1%
156									0.0%	0.0%
157									0.0%	N.A.
158									0.0%	0.0%
159									0.0%	0.0%
160									0.0%	0.0%

*: SWAT3.1 計算値による

§:ネオジムの測定値は従来法によるものを採用している所以他们は参考値

#:¹⁵⁴Eu, ¹⁵⁵Eu はγ線測定で定量しているため他们は参考値

表 4-5 : 2F1ZN3a9 試料 (64.1GWd/t;UO₂)

質量数	同重体の混入による誤差(%)									
	Nd [§]		Sm				Eu		Gd	
	Ce の混入	Sm の混入	Nd の混入	Pm の混入	Eu の混入	Gd の混入	Sm の混入	Gd の混入	Sm の混入	Eu の混入
142	262%	0.0%								
143	0.0%	0.0%								
144	0.0%	0.0%								
145	0.0%	0.0%								
146	0.0%	0.0%		N.A.						
147			0.0%	7%	0.0%	0.0%				
148	0.0%	0.5%	4.6%	0.0%	0.0%	0.0%				
149			0.0%	0.0%	0.0%	0.0%				
150	0.0%	1.4%	1.8%	0.0%	0.0%	0.0%				
151			0.0%	0.0%	2.2%	0.0%	63%			
152			0.0%	0.0%	0.0%	0.0%			N.A.	N.A.
153										
154			0.0%	0.0%	3.8%*	0.8%*	37% [#]	45% [#]	7.8%*	24.2%
155							0% [#]	68% [#]	0.0%	16.1%
156									0.0%	0.0%
157									0.0%	N.A.
158									0.0%	0.0%
159									0.0%	0.0%
160									0.0%	0.0%

*: SWAT3.1 計算値による

§:ネオジムの測定値は従来法によるものを採用している所以他们らは参考値

#:¹⁵⁴Eu, ¹⁵⁵Eu はγ線測定で定量しているため他们らは参考値

4.3 同重体混入の影響評価

4.1 章でもとめた同重体混入の効果をもとに、その定量値への影響を評価した。測定された試料の同位体比について、同重体の影響を補正した上で同位体比の合計が全体で 100%となるように再規格化し、平成 23 年度報告書 4) p30 の式(1)に示した同位体希釈法の定義に戻ってその影響を調べた。

影響評価の結果を、表 4-6 から表 4-10 に示す。Nd 同位体の場合、¹⁴²Nd の量が大幅に小さくなる以外は全体としてその影響は少ない。Sm 同位体の場合、全体に定量値が 5%程度大きくなる傾向にあることがわかる。また ¹⁵⁴Sm については、Gd 入り燃料の場合には ¹⁵⁴Gd の混入の影響があるため、50%近い差を生じている。Eu 同位体では、¹⁵¹Eu がほぼ半分の値となっている。Gd 同位体については、Gd 入り燃料では混入の影響は小さいが、UO₂燃料では最大で 5%程度の差を示すことがわかった。報告書で示すフォローアップ測定の最終結果は、本章で示した混入の効果を考慮して補正する事とする。

表 4-6 : 2F1ZN2c2 試料 (28.0GWd/t; UO₂-Gd₂O₃)
同重体の定量値に与える影響

同位体	H23 年度報告書の値 (原子数/Total-U) (A)	同重体混入の影響 を補正した値 (原子数/Total-U) (C)	(C)/(A)
¹⁴⁷ Sm	4.01E-04*	4.13E-04	1.03
¹⁴⁸ Sm	1.86E-04	1.87E-04	1.00
¹⁴⁹ Sm	5.10E-06	5.50E-06	1.08
¹⁵⁰ Sm	3.78E-04	4.03E-04	1.06
¹⁵¹ Sm	1.79E-05	1.90E-05	1.06
¹⁵² Sm	1.45E-04	1.57E-04	1.08
¹⁵⁴ Sm	6.61E-05	3.29E-05	0.50
¹⁵¹ Eu	2.31E-06	1.32E-06	0.57
¹⁵³ Eu	1.55E-04	1.57E-04	1.01
¹⁵² Gd	4.96E-05	4.94E-05	0.99
¹⁵⁴ Gd	1.40E-03	1.38E-03	0.99
¹⁵⁵ Gd	2.03E-05	1.90E-05	0.94
¹⁵⁶ Gd	2.68E-02	2.66E-02	0.99
¹⁵⁷ Gd	1.07E-05	1.07E-05	0.99
¹⁵⁸ Gd	3.24E-02	3.22E-02	0.99
¹⁶⁰ Gd	1.70E-02	1.69E-02	0.99

*4.01×10⁻⁴を示す。

表 4-7 : 2F1ZN2c3 試料 (39.3GWd/t;UO₂)
同重体の定量値に与える影響

同位体	H23 年度報告書の値 (原子数/Total-U) (A)	同重体混入の影響 を補正した値 (原子数/Total-U) (C)	(C)/(A)
¹⁴⁷ Sm	5.39E-04*	5.47E-04	1.01
¹⁴⁸ Sm	2.59E-04	2.58E-04	1.00
¹⁴⁹ Sm	6.12E-06	6.51E-06	1.06
¹⁵⁰ Sm	5.06E-04	5.31E-04	1.05
¹⁵¹ Sm	2.21E-05	2.32E-05	1.05
¹⁵² Sm	1.79E-04	1.90E-04	1.06
¹⁵⁴ Sm	6.01E-05	5.96E-05	0.99
¹⁵¹ Eu	2.12E-06	1.10E-06	0.52
¹⁵³ Eu	1.85E-04	1.90E-04	1.02
¹⁵² Gd	9.16E-07	9.63E-07	1.05
¹⁵⁴ Gd	2.71E-05	2.28E-05	0.84
¹⁵⁵ Gd	1.02E-05	9.94E-06	0.97
¹⁵⁶ Gd	1.17E-04	1.23E-04	1.05
¹⁵⁷ Gd	3.50E-07	3.69E-07	1.05
¹⁵⁸ Gd	2.08E-05	2.19E-05	1.05
¹⁶⁰ Gd	1.65E-06	1.74E-06	1.05

*5.39×10⁻⁴を示す。

表 4-8 : 2F1ZN3c2 試料 (56.6GWd/t;UO₂-Gd₂O₃)
同重体の定量値に与える影響

同位体	H23年度報告書の値 (原子数/Total-U) (A)	同重体混入の影響 を補正した値 (原子数/Total-U) (C)	(C)/(A)
¹⁴⁷ Sm	5.43E-04*	5.40E-04	0.99
¹⁴⁸ Sm	5.47E-04	5.57E-04	1.02
¹⁴⁹ Sm	3.45E-06	3.68E-06	1.07
¹⁵⁰ Sm	7.55E-04	7.93E-04	1.05
¹⁵¹ Sm	1.76E-05	1.84E-05	1.05
¹⁵² Sm	2.48E-04	2.64E-04	1.07
¹⁵⁴ Sm	1.30E-04	9.95E-05	0.76
¹⁵¹ Eu	2.04E-06	1.20E-06	0.59
¹⁵³ Eu	3.09E-04	3.11E-04	1.01
¹⁵² Gd	9.55E-06	9.55E-06	1.00
¹⁵⁴ Gd	1.07E-03	1.06E-03	0.99
¹⁵⁵ Gd	2.33E-05	2.09E-05	0.90
¹⁵⁶ Gd	2.68E-02	2.68E-02	1.00
¹⁵⁷ Gd	5.87E-06	5.87E-06	1.00
¹⁵⁸ Gd	3.36E-02	3.36E-02	1.00
¹⁶⁰ Gd	1.72E-02	1.72E-02	1.00

*5.43×10⁻⁴を示す。

表 4-9 : 2F1ZN3c3 試料 (68.1GWd/t;UO₂)
同重体の定量値に与える影響

同位体	H23年度報告書の値 (原子数/Total-U) (A)	同重体混入の影響 を補正した値 (原子数/Total-U) (C)	(C)/(A)
¹⁴⁷ Sm	6.62E-04*	6.42E-04	0.97
¹⁴⁸ Sm	6.92E-04	6.85E-04	0.99
¹⁴⁹ Sm	3.81E-06	3.95E-06	1.04
¹⁵⁰ Sm	9.15E-04	9.35E-04	1.02
¹⁵¹ Sm	2.00E-05	2.04E-05	1.02
¹⁵² Sm	2.87E-04	2.98E-04	1.04
¹⁵⁴ Sm	1.32E-04	1.28E-04	0.98
¹⁵¹ Eu	1.98E-06	1.13E-06	0.57
¹⁵³ Eu	3.53E-04	3.57E-04	1.01
¹⁵² Gd	7.60E-07	7.75E-07	1.02
¹⁵⁴ Gd	4.96E-05	3.91E-05	0.79
¹⁵⁵ Gd	1.94E-05	1.70E-05	0.88
¹⁵⁶ Gd	5.58E-04	5.69E-04	1.02
¹⁵⁷ Gd	5.29E-07	5.39E-07	1.02
¹⁵⁸ Gd	7.21E-05	7.36E-05	1.02
¹⁶⁰ Gd	4.50E-06	4.60E-06	1.02

*6.62×10⁻⁴を示す。

表 4-10 : 2F1ZN3a9 試料 (64.1GWd/t;UO₂)
同重体の定量値に与える影響

同位体	H23 年度報告書の値 (原子数/Total-U) (A)	同重体混入の影響 を補正した値 (原子数/Total-U) (C)	(C)/(A)
¹⁴⁷ Sm	4.59E-04*	4.56E-04	0.99
¹⁴⁸ Sm	6.64E-04	6.77E-04	1.02
¹⁴⁹ Sm	3.52E-06	3.75E-06	1.07
¹⁵⁰ Sm	8.22E-04	8.60E-04	1.05
¹⁵¹ Sm	1.61E-05	1.68E-05	1.04
¹⁵² Sm	2.85E-04	3.04E-04	1.07
¹⁵⁴ Sm	1.61E-04	1.64E-04	1.02
¹⁵¹ Eu	1.53E-06	9.47E-07	0.62
¹⁵³ Eu	3.50E-04	3.54E-04	1.01
¹⁵² Gd	2.01E-06	2.06E-06	1.03
¹⁵⁴ Gd	4.48E-05	3.48E-05	0.78
¹⁵⁵ Gd	1.91E-05	1.69E-05	0.88
¹⁵⁶ Gd	8.46E-04	8.68E-04	1.03
¹⁵⁷ Gd	8.37E-07	8.58E-07	1.03
¹⁵⁸ Gd	1.18E-04	1.21E-04	1.03
¹⁶⁰ Gd	6.65E-06	6.82E-06	1.03

* 4.59×10^{-4} を示す。

5. 本再測定結果を反映した測定結果のまとめ

フォローアップ測定及び混入の効果も加味した本試験で得られた最終的な結果について、測定時に存在するウラン個数に対する原子数比（原子数/U 原子数比）でまとめたものを表 5-1 に示した。

さらに初期重元素(ウラン)個数 $InitialHM$ と燃焼後の全重元素数 $TotalHM$ の関係は %FIMA の定義より、

$$\frac{TotalHM}{InitialHM} = \frac{U + Pu}{U_0} = 1 - \frac{\%FIMA}{100} \quad (5.1)$$

であるため、測定された着目同位体のウラン原子あたりの個数 X と初期ウラン原子あたりの個数 Y の関係は、

$$Y = X \times \frac{U + Pu}{U_0} \times \frac{U}{U + Pu} = X \times \left(1 - \frac{\%FIMA}{100}\right) \times \frac{U}{U + Pu} \quad (5.2)$$

として与えられることから、測定サンプルの未燃焼時のウラン原子量を M_U (g/mol)、アボガドロ数を N_A 、着目同位体の原子量を M (g/mol) とすると、着目同位体の初期ウラン 1 ton あたりの重量 Z (g) は、

$$Z = \frac{Y}{N_A} \times M \times \frac{10^6}{M_U} \times N_A = X \times \left(1 - \frac{\%FIMA}{100}\right) \times \frac{U}{U + Pu} \times \frac{M}{M_U} \times 10^6 \quad (5.3)$$

によって表される。この関係式から、表 5-1 の値を初期ウラン重量 1 トンあたりの量で示したものを表 5-2 に示す。

表 5-1 及び表 5-2 に示した燃焼度は、受託事業実施時に JAEA 側に燃料初期組成やボイド率履歴等のパラメータが提供されておらず、詳細な ^{147}Nd 反応の中性子捕獲の効果の補正が行えないことから、最終確定値ではない。詳細燃焼度は本照射後試験の委託者である JNES において評価される。

表 5-1 : 平成 24 年度に再測定を行った結果を反映した測定値のまとめ
(ウラン原子数に対する比)

Measurement Method	Assembly Name	ZN2		ZN3		
	Sample Name	ZN2c2	ZN2c3	ZN3c2	ZN3c3	ZN3a9
	Fuel Type	UO ₂ -Gd ₂ O ₃	UO ₂	UO ₂ -Gd ₂ O ₃	UO ₂	UO ₂
	Sample Position from Bottom of Fuel (mm)	2951.5	2951	1674	1674.5	1678
	Sample Position in Node	18.9	18.9	10.7	10.7	10.8
	FIMA(%)**	2.888	3.947	5.598	7.069	6.583
	Burnup (GWd/t)**	27.843	37.994	54.692	68.322	64.267
		Ratio of Number of Atoms / Total-U				
IDM(TIMS)	²³⁴ U	1.70E-04*	3.29E-04	1.41E-04	2.34E-04	6.87E-05
IDM(TIMS)	²³⁵ U	1.12E-02	1.74E-02	2.32E-03	3.69E-03	2.30E-04
IDM(TIMS)	²³⁶ U	3.80E-03	6.27E-03	4.80E-03	7.89E-03	2.92E-03
IDM(TIMS)	²³⁸ U	9.85E-01	9.76E-01	9.93E-01	9.88E-01	9.97E-01
IDM(TIMS)	U total	1.00E+00	1.00E+00	1.00E+00	1.00E+00	1.00E+00
IDM(TIMS)+ α.Spectrometry	²³⁸ Pu	1.29E-04	1.81E-04	3.85E-04	5.76E-04	4.00E-04
IDM(TIMS)	²³⁹ Pu	5.83E-03	6.10E-03	4.72E-03	4.68E-03	4.06E-03
IDM(TIMS)	²⁴⁰ Pu	2.33E-03	2.39E-03	3.58E-03	3.58E-03	3.28E-03
IDM(TIMS)	²⁴¹ Pu	7.41E-04	6.96E-04	9.94E-04	1.12E-03	1.01E-03
IDM(TIMS)	²⁴² Pu	3.52E-04	3.75E-04	1.49E-03	1.48E-03	2.34E-03
IDM(TIMS)	Pu total	9.37E-03	9.74E-03	1.12E-02	1.15E-02	1.11E-02
IDM(TIMS)	¹⁴² Nd	3.15E-05	5.07E-05	1.25E-04	1.50E-04	1.93E-04
IDM(TIMS)	¹⁴³ Nd	1.23E-03	1.73E-03	1.52E-03	1.95E-03	1.14E-03
IDM(TIMS)	¹⁴⁴ Nd	1.78E-03	2.60E-03	4.23E-03	5.71E-03	5.31E-03
IDM(TIMS)	¹⁴⁵ Nd	9.67E-04	1.36E-03	1.68E-03	2.19E-03	1.76E-03
IDM(TIMS)	¹⁴⁶ Nd	9.61E-04	1.37E-03	2.09E-03	2.76E-03	2.58E-03
IDM(TIMS)	¹⁴⁸ Nd	5.15E-04	7.11E-04	1.03E-03	1.32E-03	1.23E-03
IDM(TIMS)	¹⁵⁰ Nd	2.50E-04	3.27E-04	5.25E-04	6.37E-04	6.50E-04
IDM(TIMS)	Nd total	5.73E-03	8.14E-03	1.12E-02	1.47E-02	1.29E-02
γ Spectrometry	¹³⁴ Cs	6.45E-06	1.01E-05	4.17E-05	5.35E-05	5.45E-05
γ Spectrometry	¹³⁷ Cs	1.54E-03	2.18E-03	3.47E-03	4.32E-03	3.90E-03
IDM(ICP-MS)	¹⁵¹ Eu	1.32E-06	1.10E-06	1.20E-06	1.13E-06	9.47E-07
IDM(ICP-MS)	¹⁵² Eu	1.57E-04	1.90E-04	3.11E-04	3.57E-04	3.54E-04
γ Spectrometry	¹⁵⁴ Eu	1.56E-05	2.00E-05	3.77E-05	4.36E-05	3.83E-05
γ Spectrometry	¹⁵⁵ Eu	2.69E-06	3.42E-06	9.63E-06	1.13E-05	1.12E-05
Liquid Scintillator	¹⁴⁷ Pm	1.75E-05	2.40E-05	3.65E-05	4.47E-05	3.14E-05
IDM(ICP-MS)	¹⁴⁷ Sm	4.13E-04	5.47E-04	5.40E-04	6.42E-04	4.56E-04
IDM(ICP-MS)	¹⁴⁸ Sm	1.87E-04	2.58E-04	5.57E-04	6.85E-04	6.77E-04
IDM(ICP-MS)	¹⁴⁹ Sm	5.50E-06	6.51E-06	3.68E-06	3.95E-06	3.75E-06
IDM(ICP-MS)	¹⁵⁰ Sm	4.03E-04	5.31E-04	7.93E-04	9.35E-04	8.60E-04
IDM(ICP-MS)	¹⁵¹ Sm	1.90E-05	2.32E-05	1.84E-05	2.04E-05	1.68E-05
IDM(ICP-MS)	¹⁵² Sm	1.57E-04	1.90E-04	2.64E-04	2.98E-04	3.04E-04
IDM(ICP-MS)	¹⁵⁴ Sm	3.29E-05	5.96E-05	9.95E-05	1.28E-04	1.64E-04
IDM(ICP-MS)	¹⁵² Gd	4.94E-05	9.63E-07	9.55E-06	7.75E-07	2.06E-06
IDM(ICP-MS)	¹⁵⁴ Gd	1.38E-03	2.28E-05	1.06E-03	3.91E-05	3.48E-05
IDM(ICP-MS)	¹⁵⁵ Gd	1.90E-05	9.94E-06	2.09E-05	1.70E-05	1.69E-05
IDM(ICP-MS)	¹⁵⁶ Gd	2.66E-02	1.23E-04	2.68E-02	5.69E-04	8.68E-04
IDM(ICP-MS)	¹⁵⁷ Gd	1.07E-05	3.69E-07	5.87E-06	5.39E-07	8.58E-07
IDM(ICP-MS)	¹⁵⁸ Gd	3.22E-02	2.19E-05	3.36E-02	7.36E-05	1.21E-04
IDM(ICP-MS)	¹⁶⁰ Gd	1.69E-02	1.74E-06	1.72E-02	4.60E-06	6.82E-06
Calibration Curve (ICP-MS)	⁹⁵ Mo	1.77E-03	2.46E-03	3.15E-03	4.17E-03	3.32E-03
Calibration Curve (ICP-MS)	⁹⁹ Tc	1.24E-03	1.66E-03	2.17E-03	2.82E-03	2.29E-03
Calibration Curve (ICP-MS)	¹⁰¹ Ru	1.65E-03	2.21E-03	3.22E-03	4.09E-03	3.84E-03
Calibration Curve (ICP-MS)	¹⁰³ Rh	1.04E-03	1.26E-03	1.62E-03	1.88E-03	1.71E-03
Calibration Curve (ICP-MS)	¹⁰⁹ Ag	1.02E-04	1.03E-04	2.30E-04	2.51E-04	3.81E-04
Calibration Curve (ICP-MS)	¹³³ Cs	1.87E-03	2.45E-03	3.33E-03	4.07E-03	3.44E-03

* Read as 1.70 × 10⁻⁴

** ここで示した燃焼度は詳細解析に基づいておらず最終確定値ではない。

表 5-2 : 平成 24 年度に再測定を行った結果を反映した測定値のまとめ
(初期ウラン重量 1ton に対する重量)

	Assembly Name	ZN2		ZN3		
	Sample Name	ZN2c2	ZN2c3	ZN3c2	ZN3c3	ZN3a9
	Fuel Type	UO ₂ -Gd ₂ O ₃	UO ₂	UO ₂ -Gd ₂ O ₃	UO ₂	UO ₂
	Sample Position from Bottom of Fuel (mm)	2951.5	2951	1674	1674.5	1678
	Sample Position in Node	18.9	18.9	10.7	10.7	10.8
	FIMA(%)**	2.888	3.947	5.598	7.069	6.583
	Burnup (GWd/t)**	27.843	37.994	54.692	68.322	64.267
Measurement Method	weight(g) / ton-Initial Heavy Metal					
IDM(TIMs)	²³⁴ U	1.61E+02*	3.08E+02	1.29E+02	2.11E+02	6.24E+01
IDM(TIMs)	²³⁵ U	1.07E+04	1.64E+04	2.14E+03	3.35E+03	2.10E+02
IDM(TIMs)	²³⁶ U	3.63E+03	5.92E+03	4.44E+03	7.19E+03	2.67E+03
IDM(TIMs)	²³⁸ U	9.48E+05	9.29E+05	9.27E+05	9.09E+05	9.21E+05
IDM(TIMs) + α Spectrometry	²³⁸ Pu	1.24E+02	1.72E+02	3.60E+02	5.29E+02	3.70E+02
IDM(TIMs)	²³⁹ Pu	5.63E+03	5.83E+03	4.43E+03	4.32E+03	3.77E+03
IDM(TIMs)	²⁴⁰ Pu	2.26E+03	2.29E+03	3.37E+03	3.32E+03	3.05E+03
IDM(TIMs)	²⁴¹ Pu	7.23E+02	6.70E+02	9.40E+02	1.04E+03	9.47E+02
IDM(TIMs)	²⁴² Pu	3.44E+02	3.63E+02	1.41E+03	1.39E+03	2.20E+03
IDM(TIMs)	¹⁴² Nd	1.81E+01	2.88E+01	6.97E+01	8.19E+01	1.06E+02
IDM(TIMs)	¹⁴³ Nd	7.08E+02	9.87E+02	8.53E+02	1.08E+03	6.32E+02
IDM(TIMs)	¹⁴⁴ Nd	1.03E+03	1.49E+03	2.39E+03	3.17E+03	2.97E+03
IDM(TIMs)	¹⁴⁵ Nd	5.67E+02	7.90E+02	9.56E+02	1.23E+03	9.91E+02
IDM(TIMs)	¹⁴⁶ Nd	5.67E+02	7.98E+02	1.20E+03	1.55E+03	1.46E+03
IDM(TIMs)	¹⁴⁸ Nd	3.08E+02	4.20E+02	5.99E+02	7.52E+02	7.05E+02
IDM(TIMs)	¹⁵⁰ Nd	1.52E+02	1.96E+02	3.09E+02	3.69E+02	3.78E+02
γ Spectrometry	¹³⁴ Cs	3.49E+00	5.41E+00	2.19E+01	2.77E+01	2.83E+01
γ Spectrometry	¹³⁷ Cs	8.53E+02	1.19E+03	1.86E+03	2.28E+03	2.07E+03
IDM(ICP-MS)	¹⁵¹ Eu	8.04E-01	6.62E-01	7.13E-01	6.57E-01	5.55E-01
IDM(ICP-MS)	¹⁵³ Eu	9.68E+01	1.16E+02	1.87E+02	2.11E+02	2.10E+02
γ Spectrometry	¹⁵⁴ Eu	9.71E+00	1.23E+01	2.28E+01	2.59E+01	2.29E+01
γ Spectrometry	¹⁵⁵ Eu	1.69E+00	2.12E+00	5.85E+00	6.76E+00	6.74E+00
Liquid Scintillator	¹⁴⁷ Pm	1.04E+01	1.41E+01	2.10E+01	2.54E+01	1.79E+01
IDM(ICP-MS)	¹⁴⁷ Sm	2.45E+02	3.21E+02	3.12E+02	3.64E+02	2.60E+02
IDM(ICP-MS)	¹⁴⁸ Sm	1.12E+02	1.53E+02	3.23E+02	3.92E+02	3.89E+02
IDM(ICP-MS)	¹⁴⁹ Sm	3.31E+00	3.87E+00	2.15E+00	2.27E+00	2.17E+00
IDM(ICP-MS)	¹⁵⁰ Sm	2.44E+02	3.18E+02	4.67E+02	5.41E+02	5.01E+02
IDM(ICP-MS)	¹⁵¹ Sm	1.16E+01	1.40E+01	1.09E+01	1.19E+01	9.85E+00
IDM(ICP-MS)	¹⁵² Sm	9.64E+01	1.16E+02	1.58E+02	1.75E+02	1.79E+02
IDM(ICP-MS)	¹⁵⁴ Sm	2.05E+01	3.67E+01	6.01E+01	7.64E+01	9.81E+01
IDM(ICP-MS)	¹⁵² Gd	3.03E+01	5.85E-01	5.69E+00	4.55E-01	1.22E+00
IDM(ICP-MS)	¹⁵⁴ Gd	8.62E+02	1.41E+01	6.43E+02	2.32E+01	2.08E+01
IDM(ICP-MS)	¹⁵⁵ Gd	1.19E+01	6.16E+00	1.27E+01	1.02E+01	1.02E+01
IDM(ICP-MS)	¹⁵⁶ Gd	1.68E+04	7.66E+01	1.64E+04	3.43E+02	5.25E+02
IDM(ICP-MS)	¹⁵⁷ Gd	6.77E+00	2.31E-01	3.61E+00	3.27E-01	5.23E-01
IDM(ICP-MS)	¹⁵⁸ Gd	2.06E+04	1.38E+01	2.08E+04	4.49E+01	7.40E+01
IDM(ICP-MS)	¹⁶⁰ Gd	1.10E+04	1.11E+00	1.08E+04	2.84E+00	4.23E+00
Calibration Curve (ICP-MS)	⁹⁵ Mo	6.79E+02	9.32E+02	1.17E+03	1.53E+03	1.22E+03
Calibration Curve (ICP-MS)	⁹⁹ Tc	4.95E+02	6.58E+02	8.43E+02	1.08E+03	8.80E+02
Calibration Curve (ICP-MS)	¹⁰¹ Ru	6.72E+02	8.92E+02	1.27E+03	1.59E+03	1.51E+03
Calibration Curve (ICP-MS)	¹⁰³ Rh	4.32E+02	5.18E+02	6.55E+02	7.47E+02	6.83E+02
Calibration Curve (ICP-MS)	¹⁰⁹ Ag	4.50E+01	4.47E+01	9.81E+01	1.06E+02	1.61E+02
Calibration Curve (ICP-MS)	¹³³ Cs	1.01E+03	1.30E+03	1.74E+03	2.09E+03	1.77E+03

* Read as 1.61 × 10²

** ここで示した燃焼度は詳細解析に基づいておらず最終確定値ではない。

図 5-1 から図 5-15 は、経済協力開発機構原子力機関 (OECD/NEA) 原子力科学委員会(NSC) 臨界安全性ワーキングパーティー (WPNCs) 燃焼度クレジット臨界安全性専門家会合 (EGBUC) において燃焼度クレジットで考慮する核種として選定されている核分裂生成物の値を比較したものである。図 5-16 から図 5-19 には、 $^{134,137}\text{Cs}$ 及び $^{154,155}\text{Eu}$ の測定結果の比較も示した。図 5-20 から図 5-28 にはウラン及びプルトニウム同位体の生成量を示した。他の原子炉から得られた照射後試験データは SFCOMPO(<http://www.oecd-nea.org/sfcompo/>)から引用したものである。

本測定で与える測定値は崩壊補正を行っていないが、その他の測定値では照射直後の値に補正をしているものもあるので、図を作成する際に崩壊補正を行い、照射直後の値にして図に示している。なお、 ^{236}U の測定値については、Cooper 炉及び Gundermningen 炉からも得られているが、SFCOMPO には Build up 値として登録しており、照射後の存在量であるかどうかの確認が出来なかったため、ここには記載しなかった。 ^{155}Gd は ^{155}Eu の放射性崩壊 (半減期 4.75 年) によって生成するため ^{155}Gd 単独での崩壊補正ができないことから、本測定値のみをプロットした。

本試験で得られた測定値を他の測定値と比較すると、ウラン及びプルトニウムの測定については、2007 年に同じ燃料集合体から得られたデータと同じ傾向を示しており、妥当な測定が行われていることが分かる。

FP 核種測定結果では、燃焼度に対して線形に増加することが知られている ^{137}Cs の生成量が、他の測定結果の推定から考えられる直線の上によく乗っており、妥当な測定値となっていることが分かる。その他の FP 核種の生成量についても他の実験結果との比較を示すが、 ^{133}Cs や ^{150}Sm は、他の測定値が燃焼度に対して線形に増加していることと比較しても妥当と言える結果が得られている。一方で、反応断面積の大きい ^{143}Nd 、 ^{149}Sm 、 ^{151}Sm などについては、測定データは高燃焼度領域において大きくばらつく結果となっている。出力履歴やボイド率の履歴によって生成量が影響をうけているためであり、詳細な運転履歴を取り入れた解析によってその妥当性の検討が必要である。

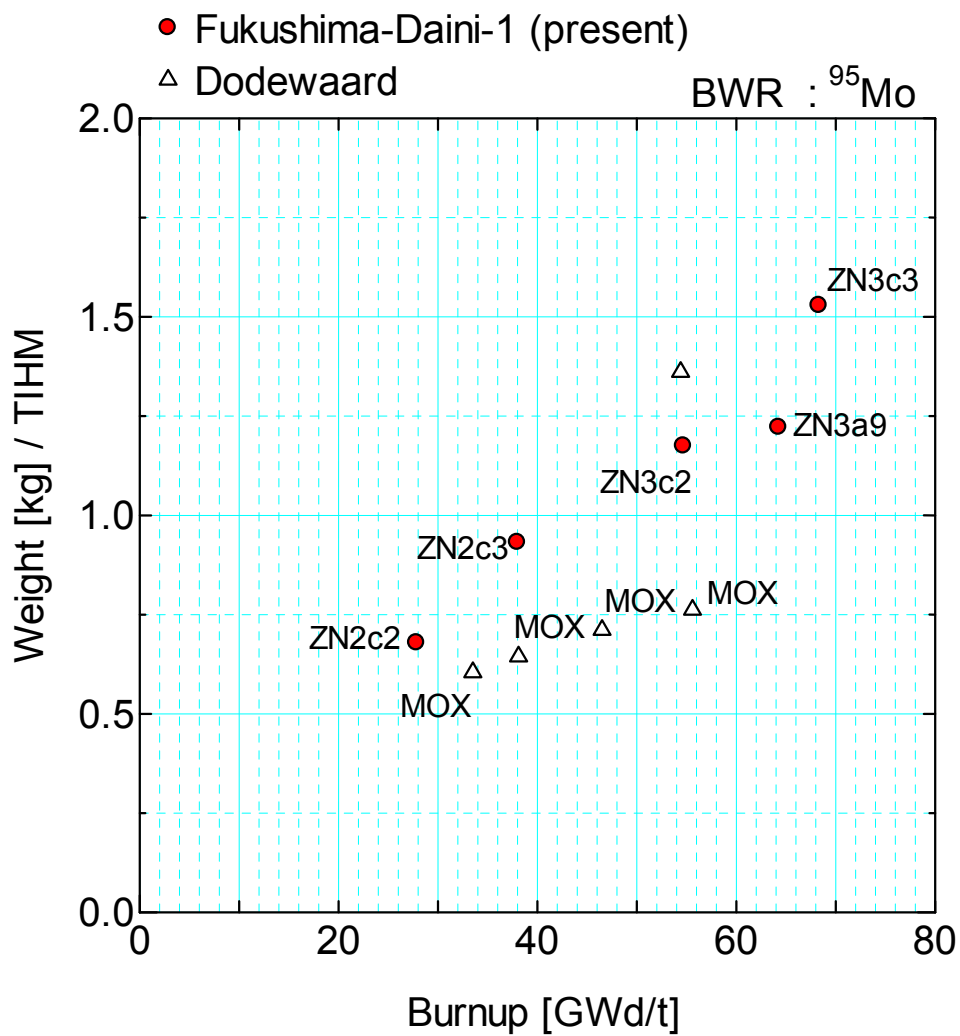


図 5-1 : ^{95}Mo 生成量の比較

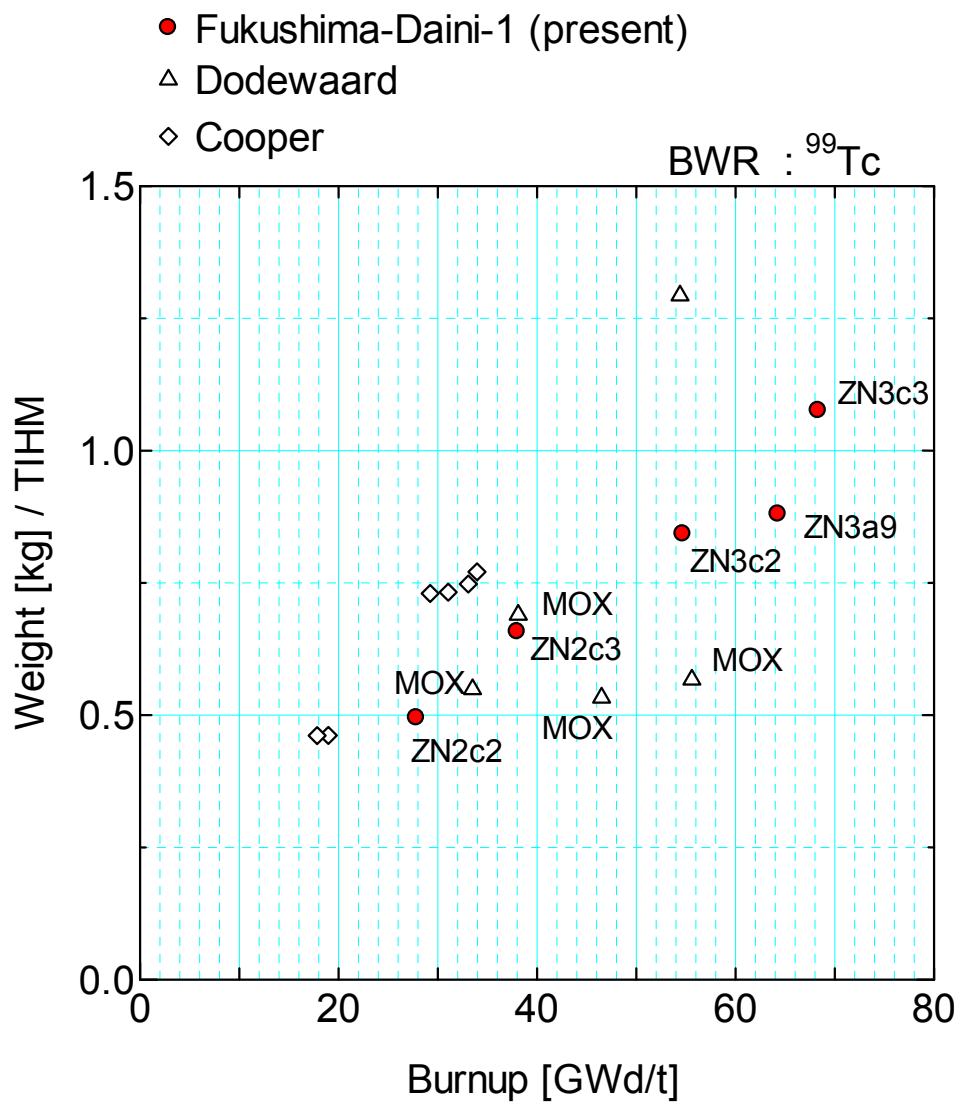


図 5-2 : ^{99}Tc の生成量の比較

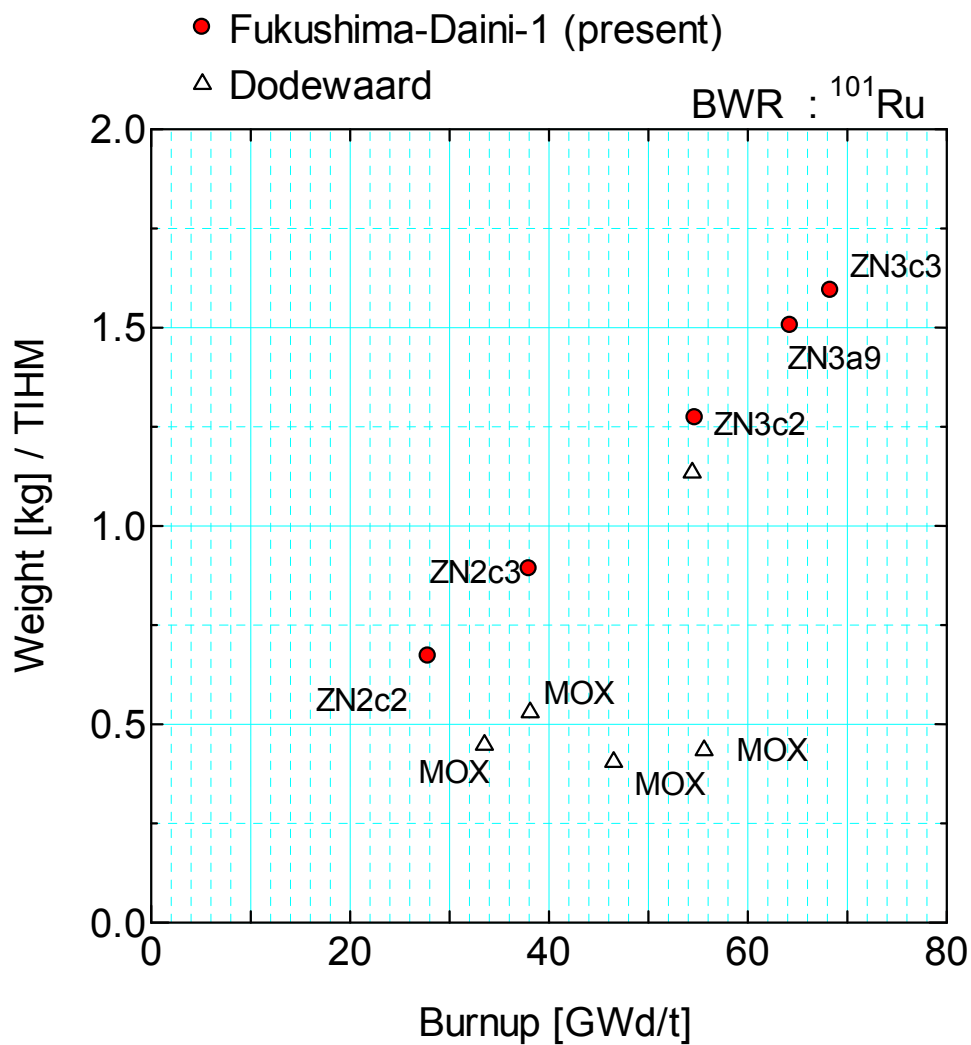


図 5-3 : ^{101}Ru の生成量の比較

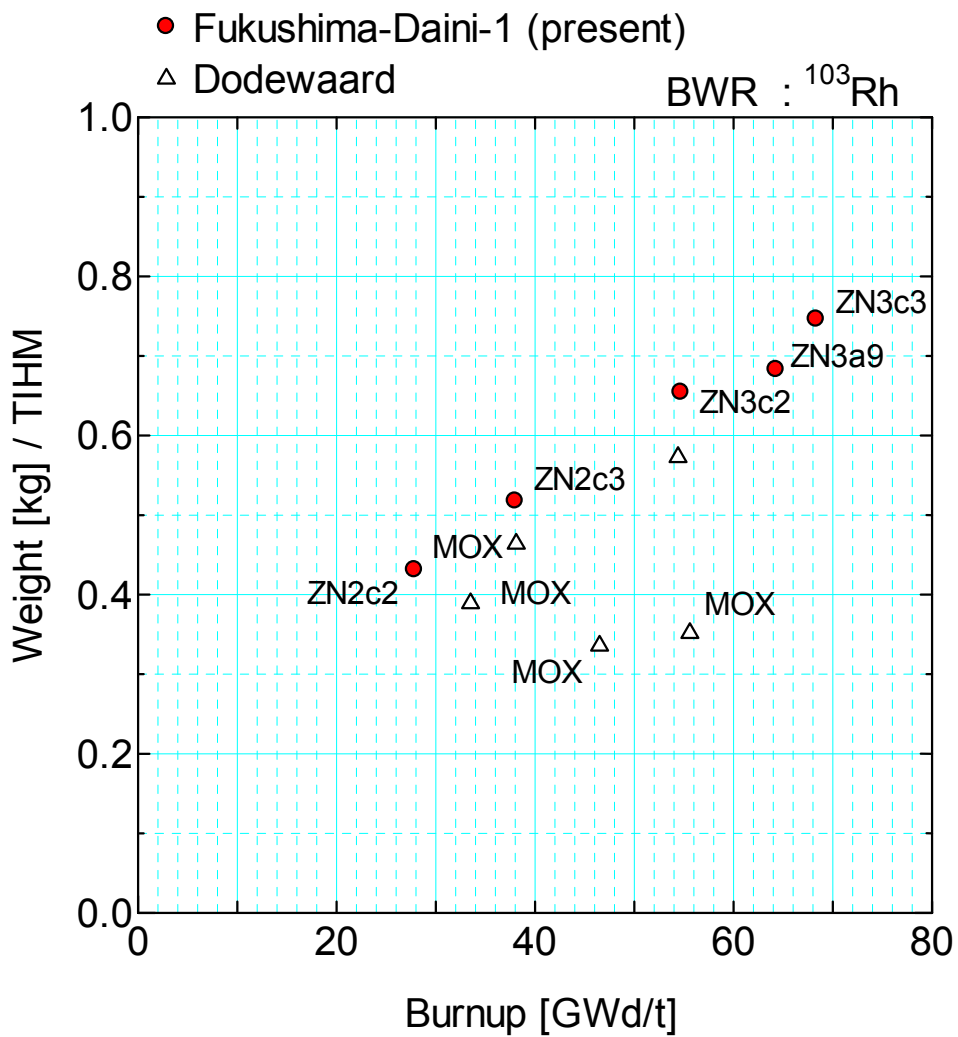


図 5-4 : ^{103}Rh 生成量の比較

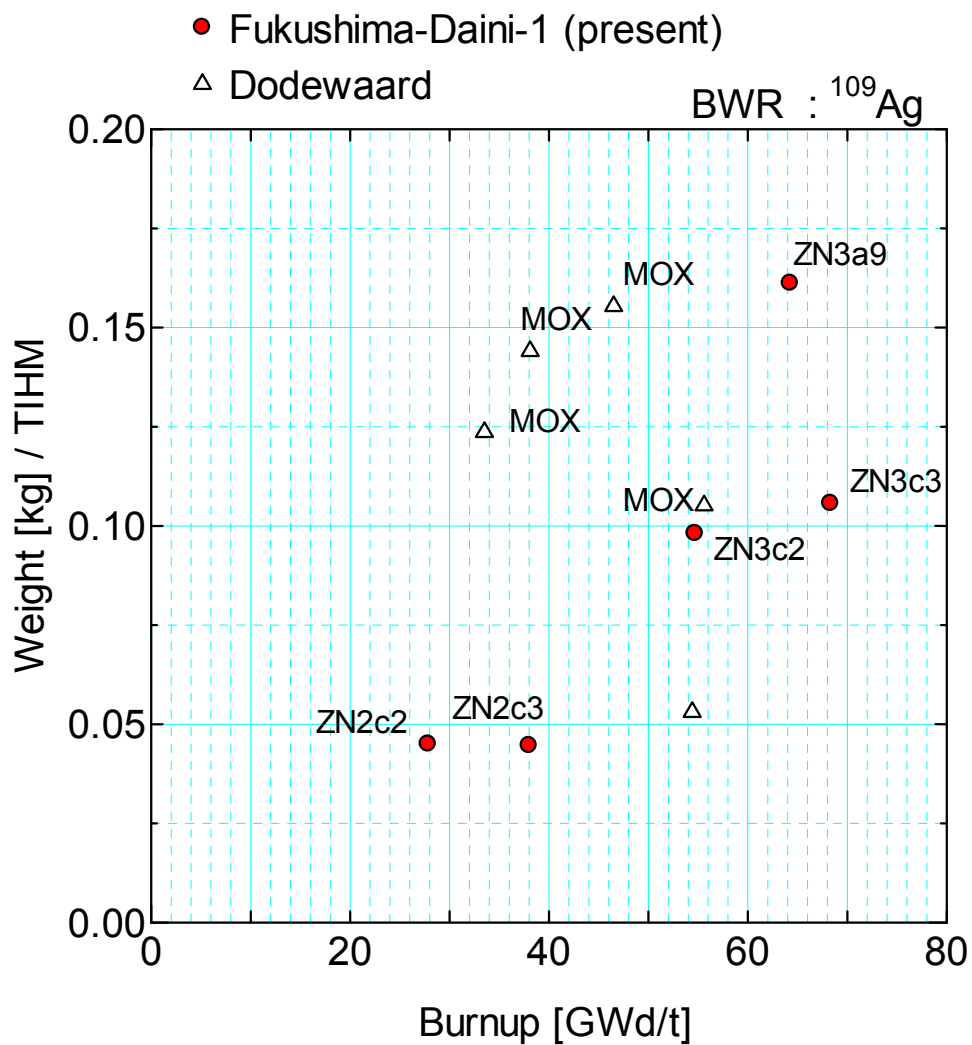


図 5-5 : ^{109}Ag 生成量の比較

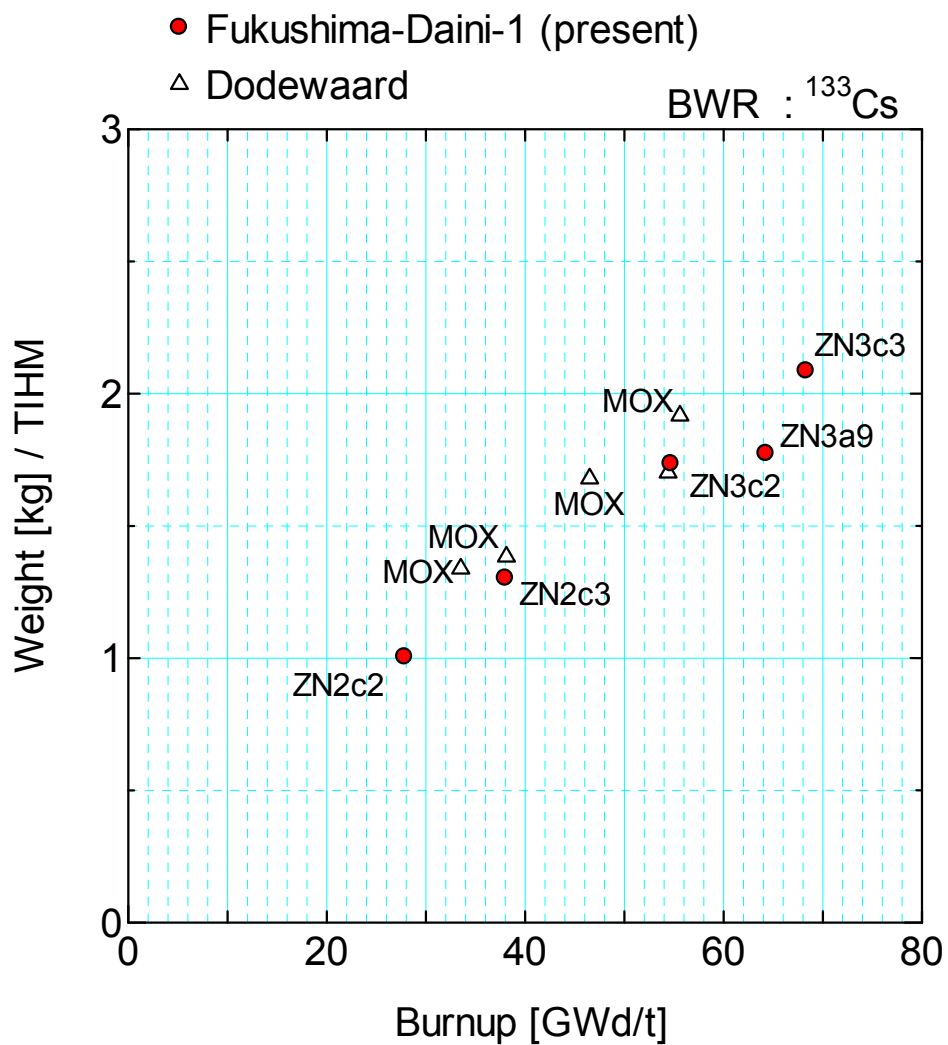


図 5-6 : ^{133}Cs 生成量の比較

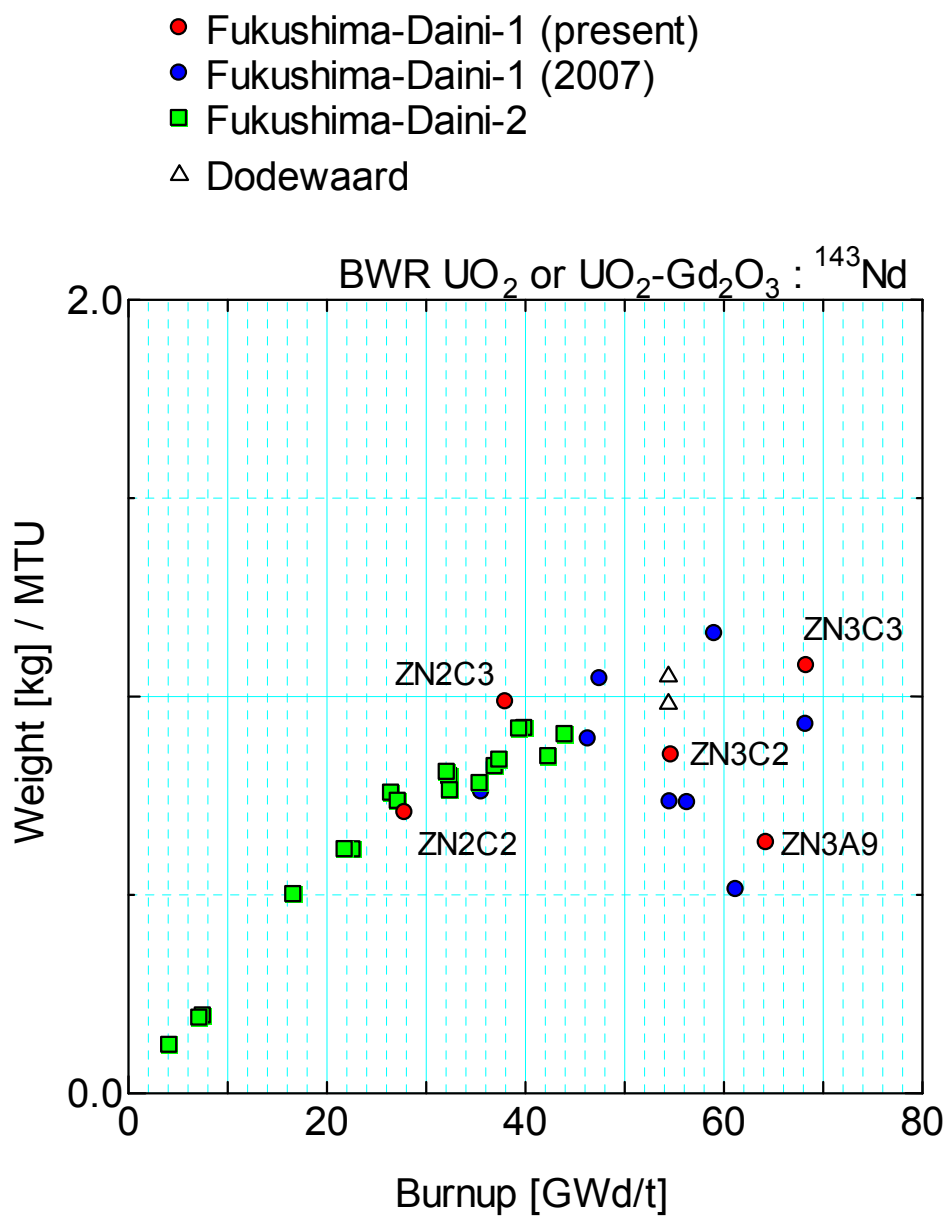


図 5-7 : ¹⁴³Nd 生成量の比較

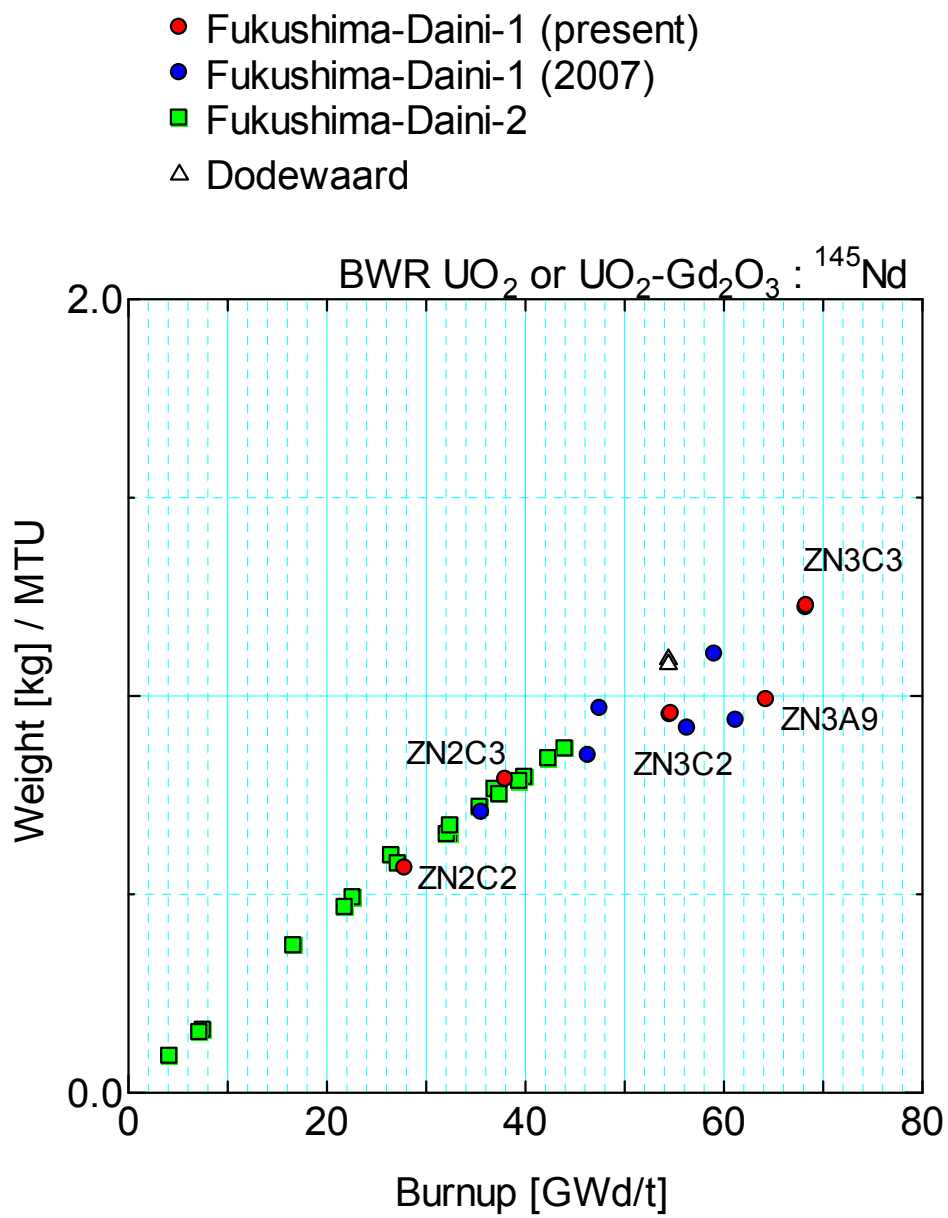


図 5-8 : ^{145}Nd 生成量の比較

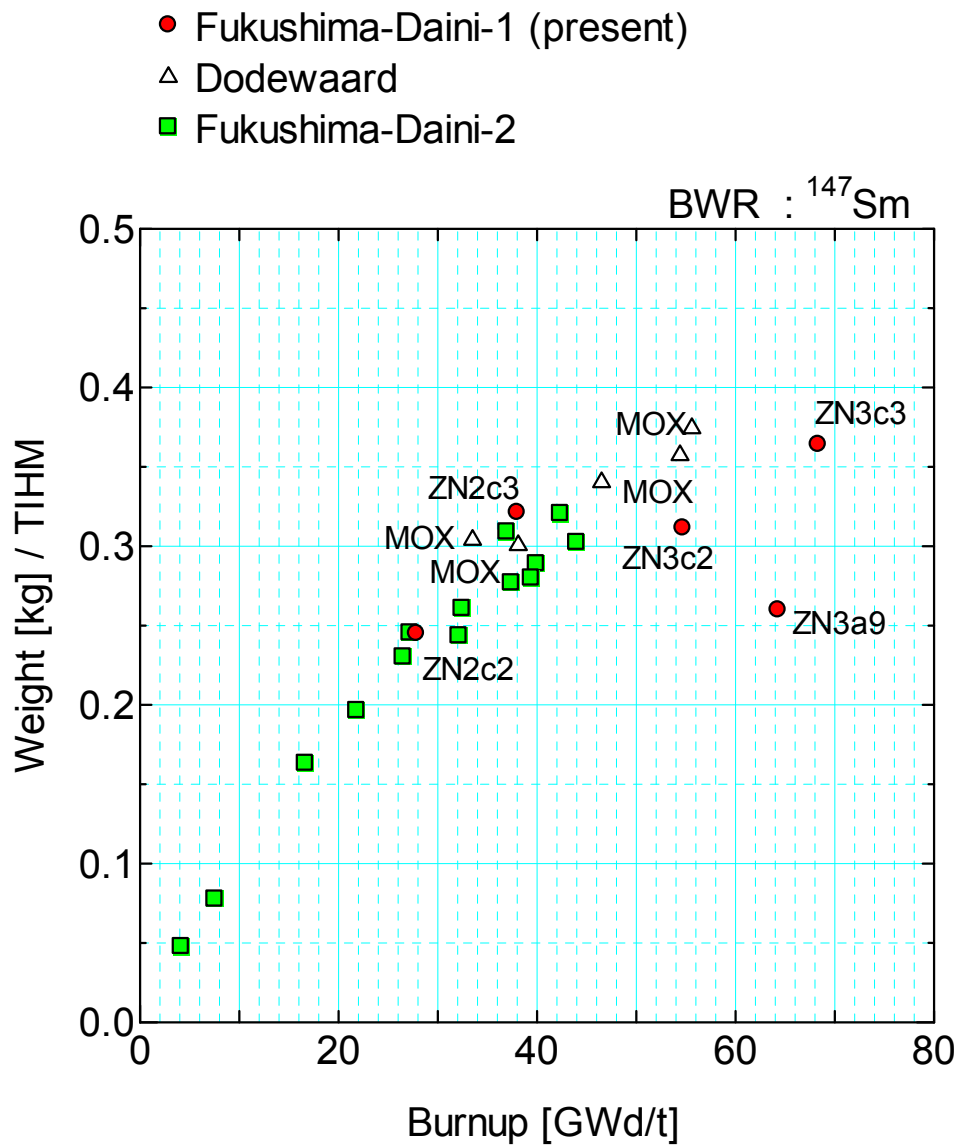


図 5-9 : ^{147}Sm 生成量の比較

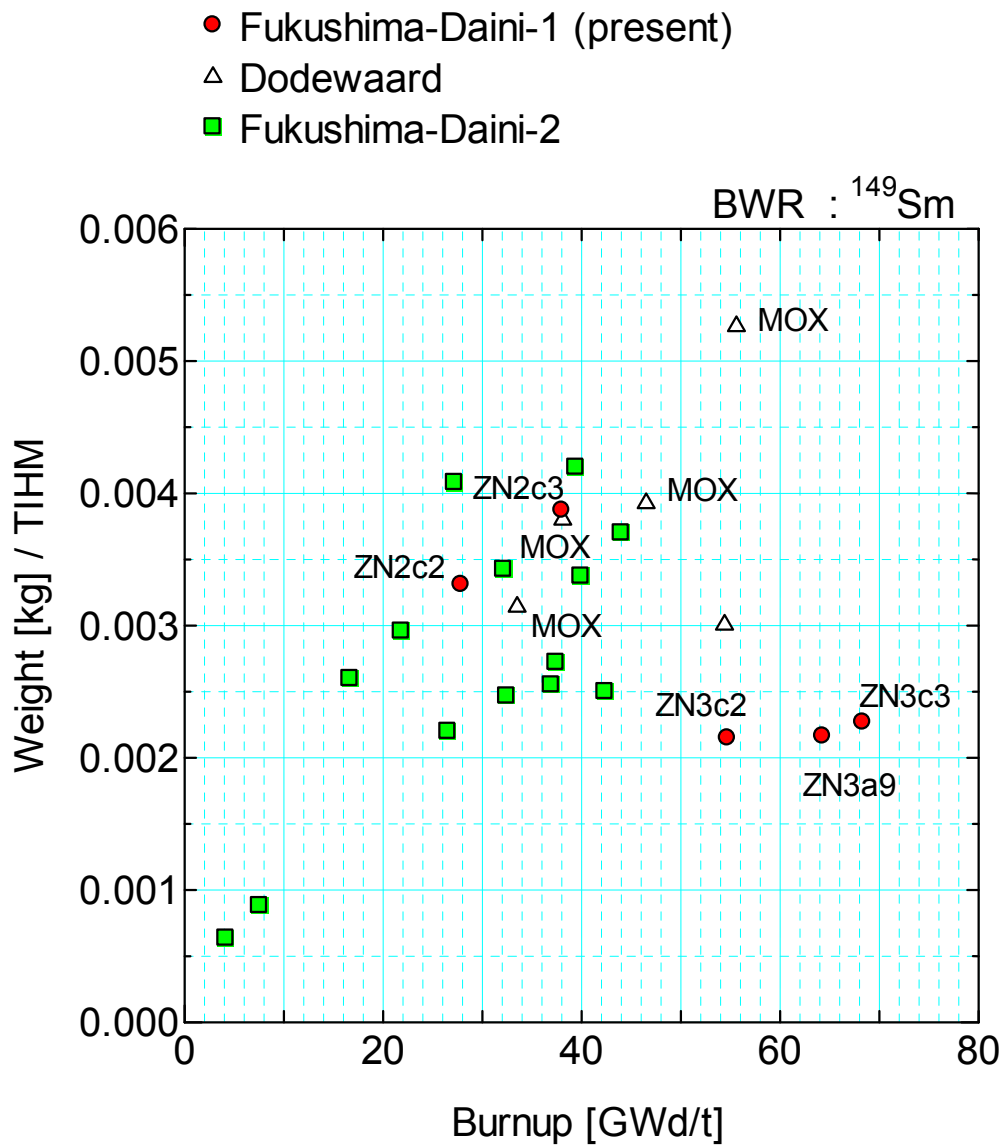


図 5-10 : ^{149}Sm 生成量の比較

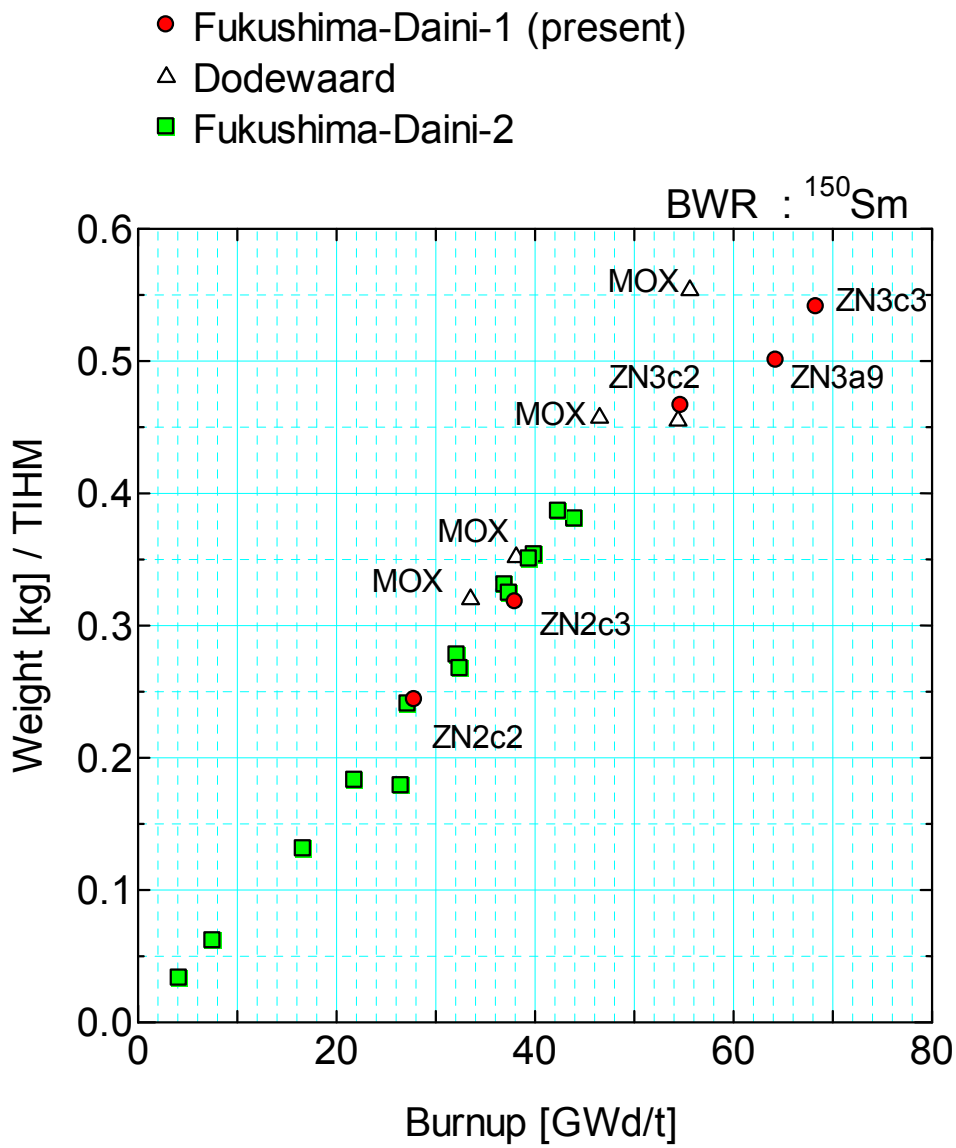


図 5-11 : ^{150}Sm 生成量の比較

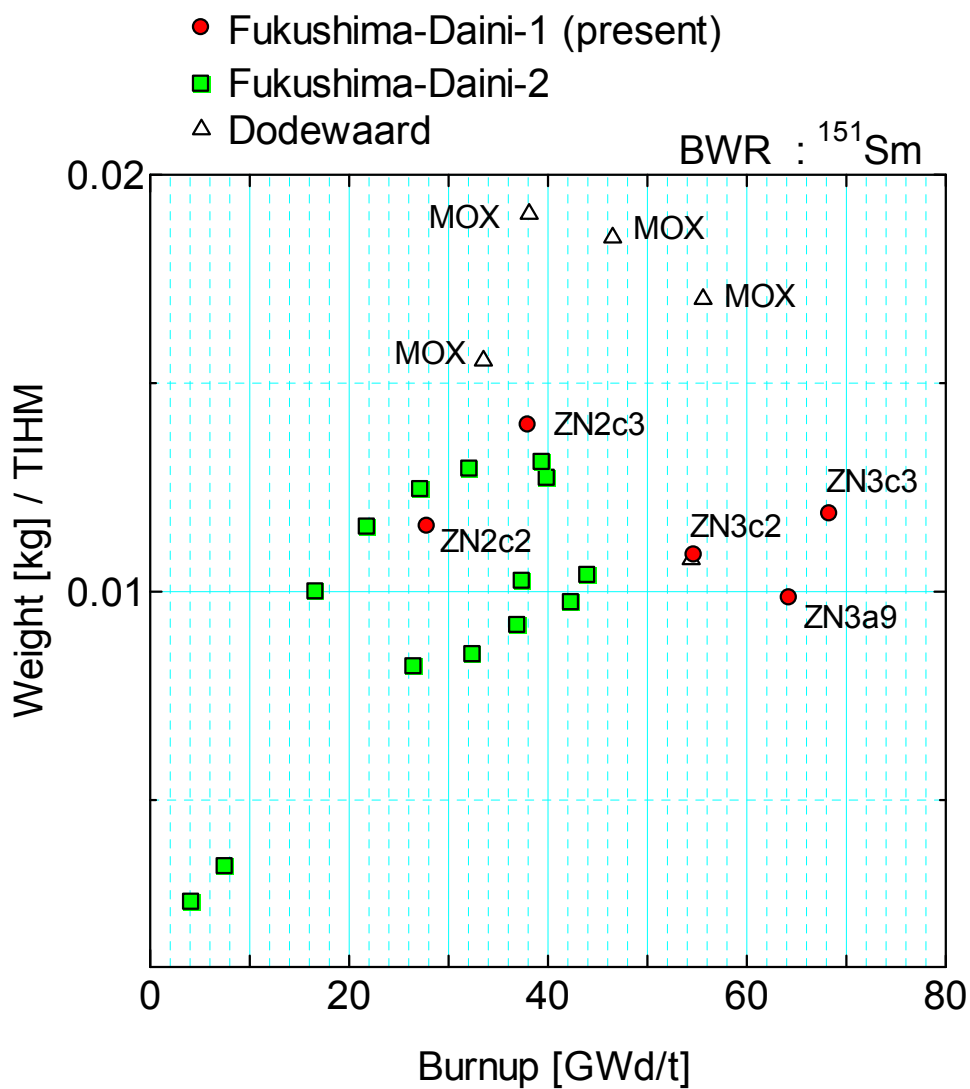


図 5-12 : ^{151}Sm 生成量の比較

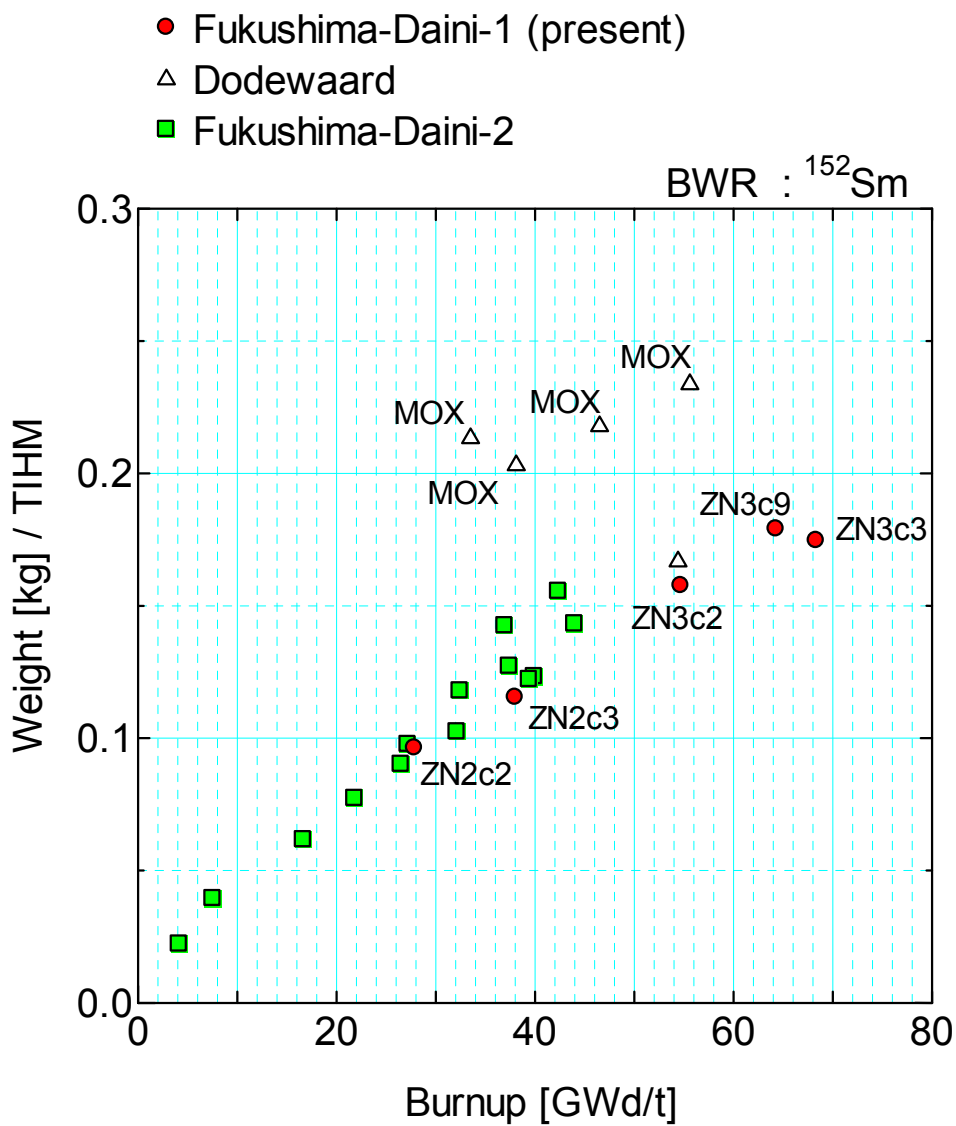


図 5-13 : ^{152}Sm 生成量の比較

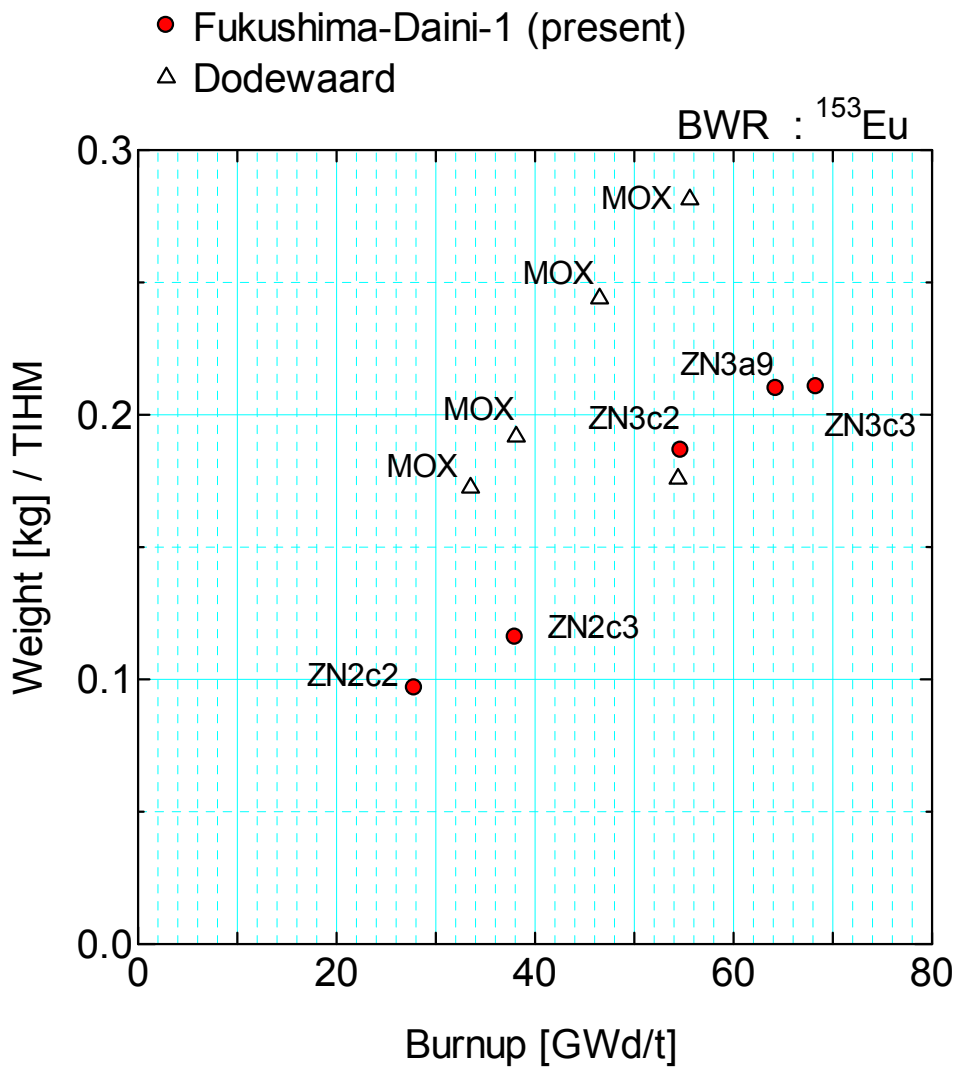


図 5-14 : ^{153}Eu 生成量の比較

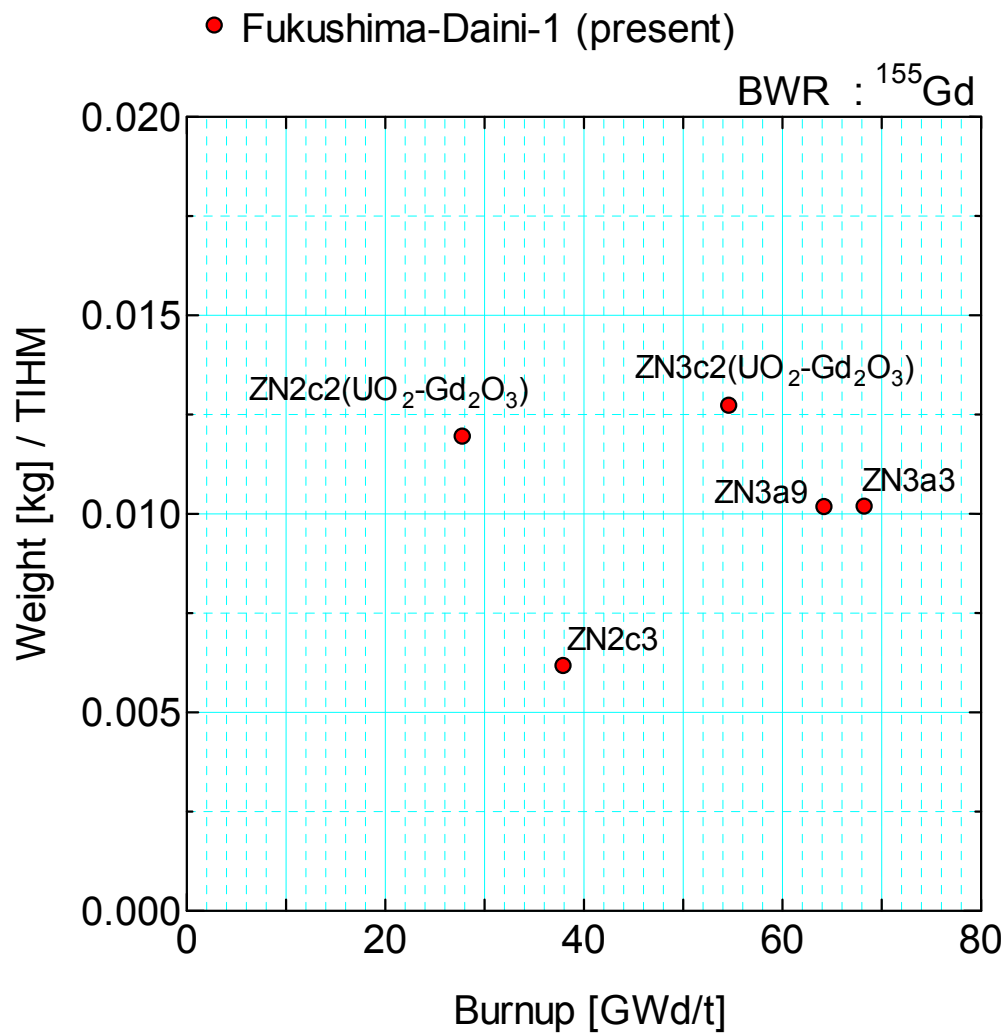


図 5-15 : ^{155}Gd 生成量の比較

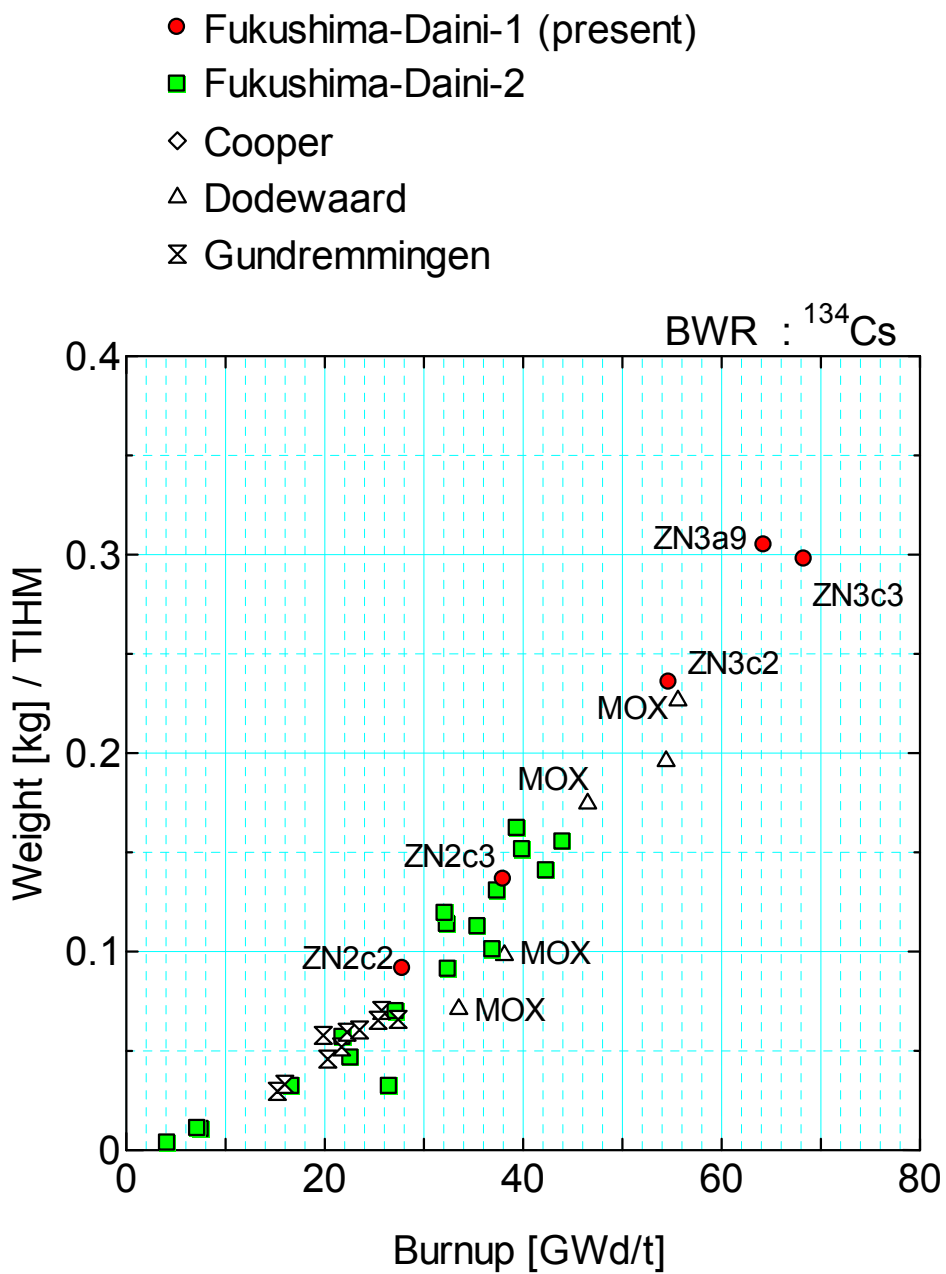


図 5-16 : ^{134}Cs 生成量の比較

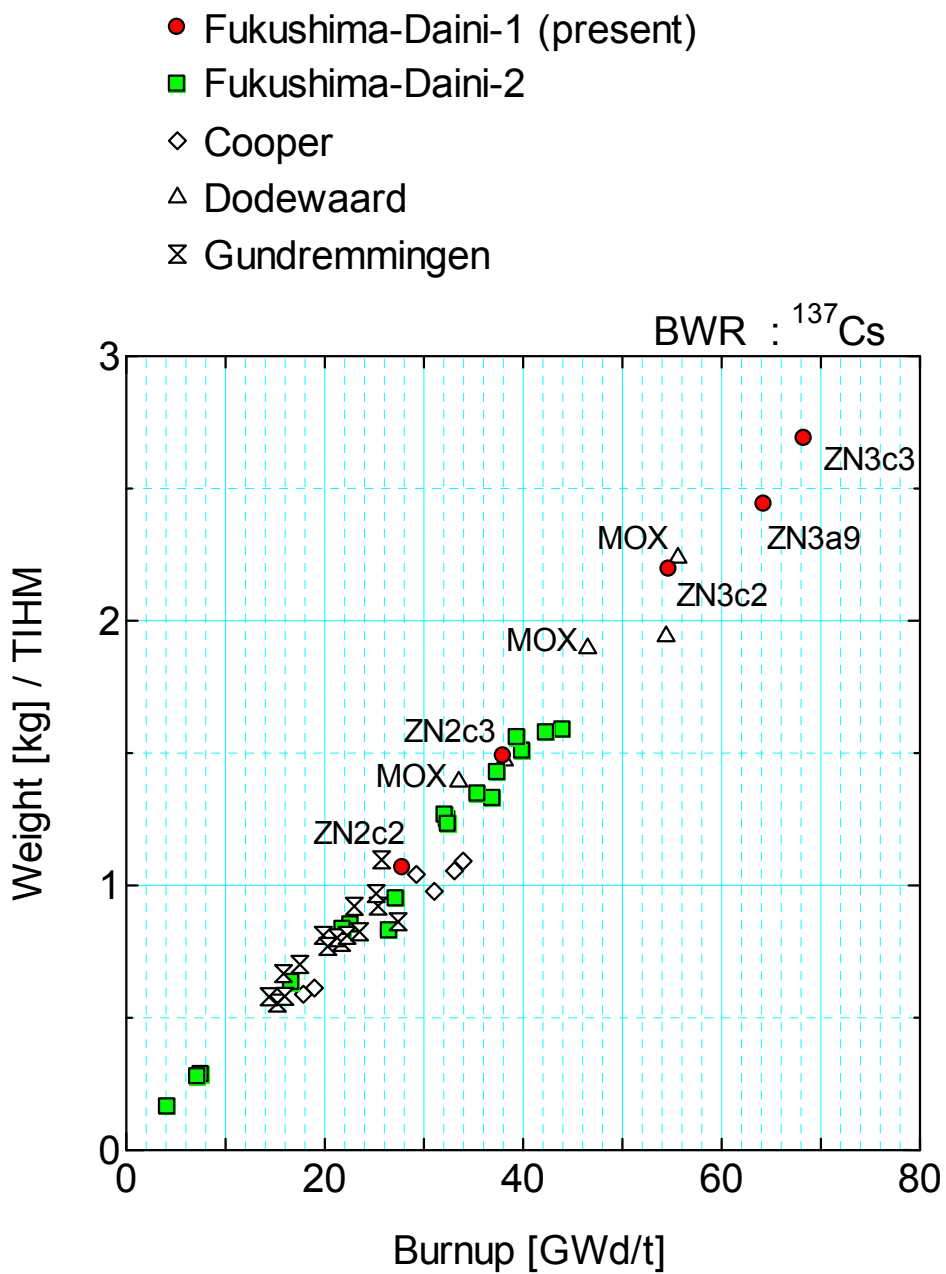


図 5-17 : ^{137}Cs 生成量の比較

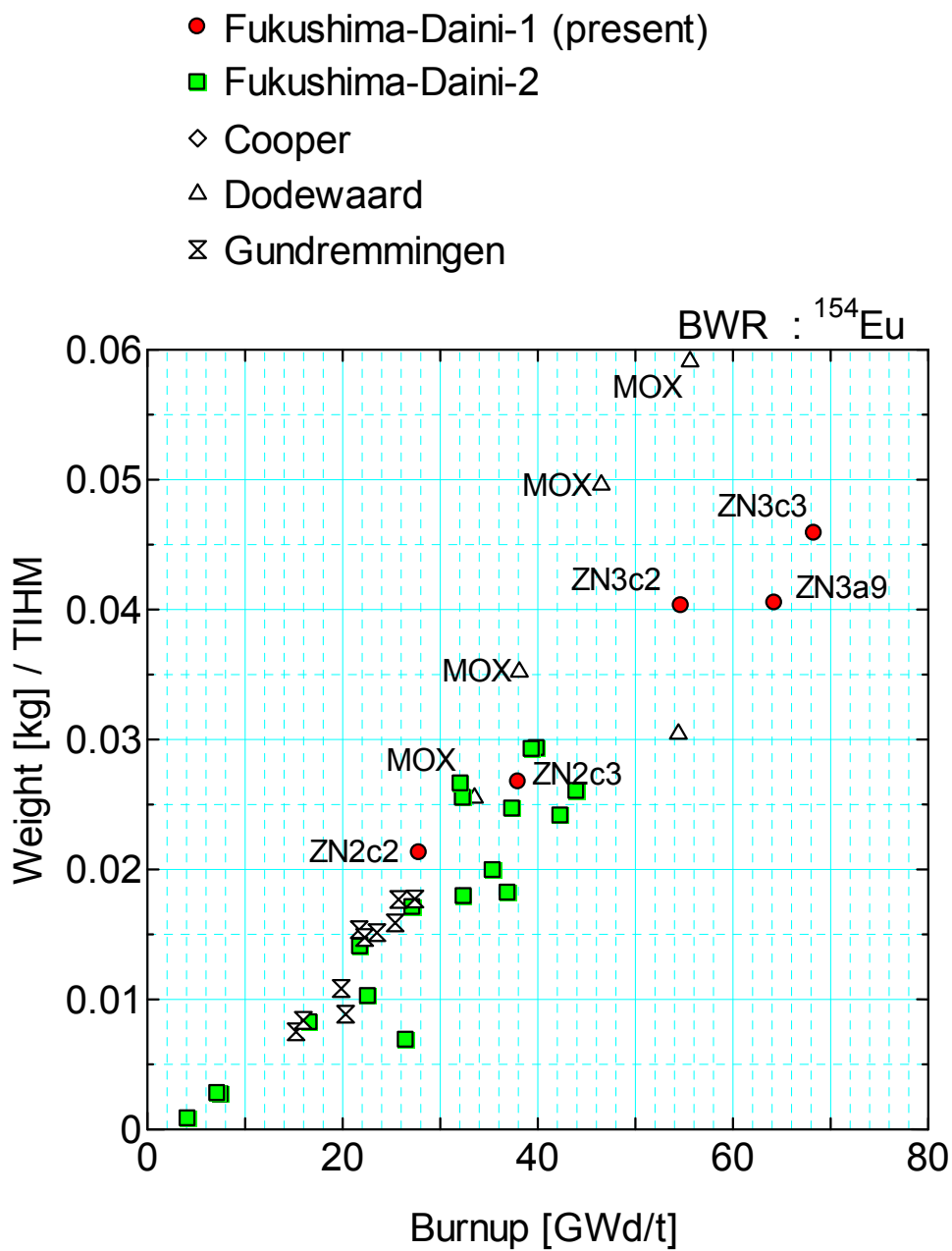


図 5-18 : ^{154}Eu 生成量の比較

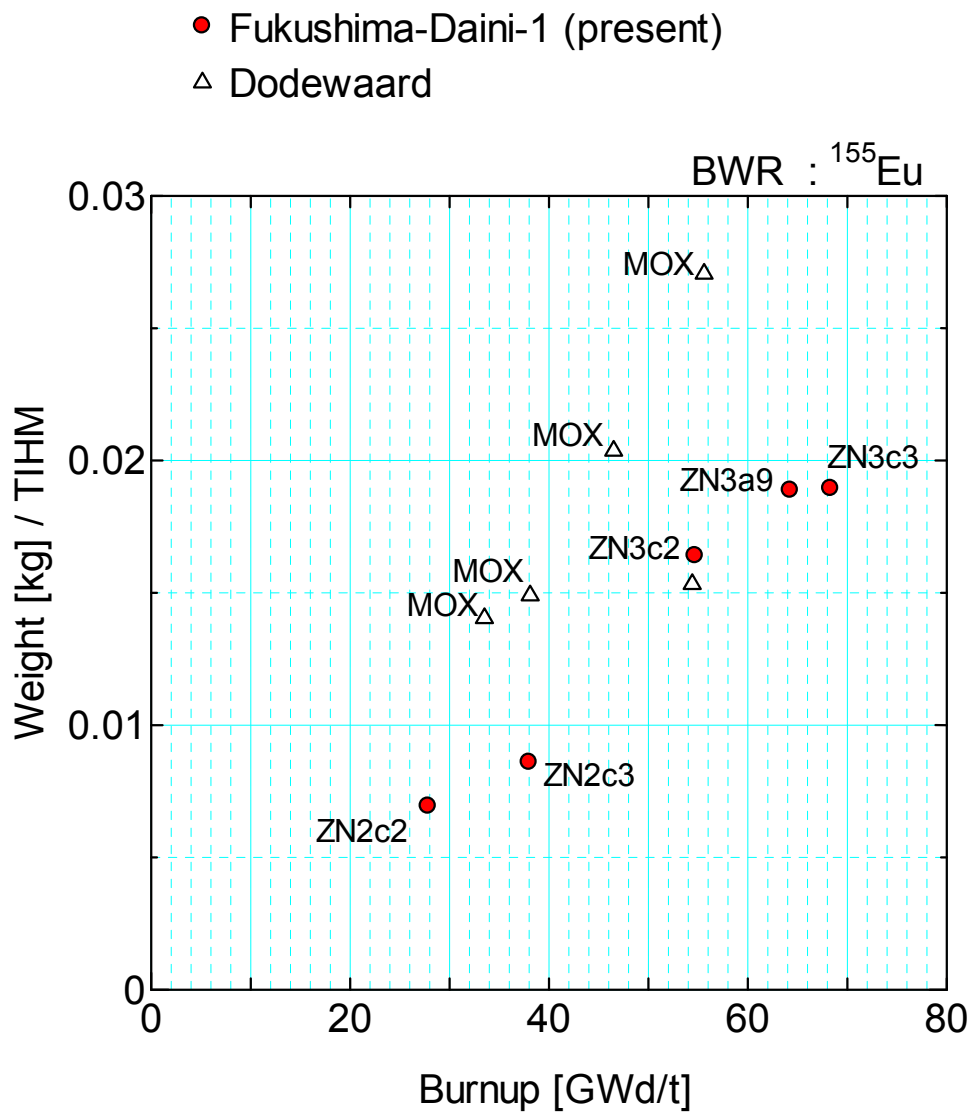


図 5-19 : ^{155}Eu 生成量の比較

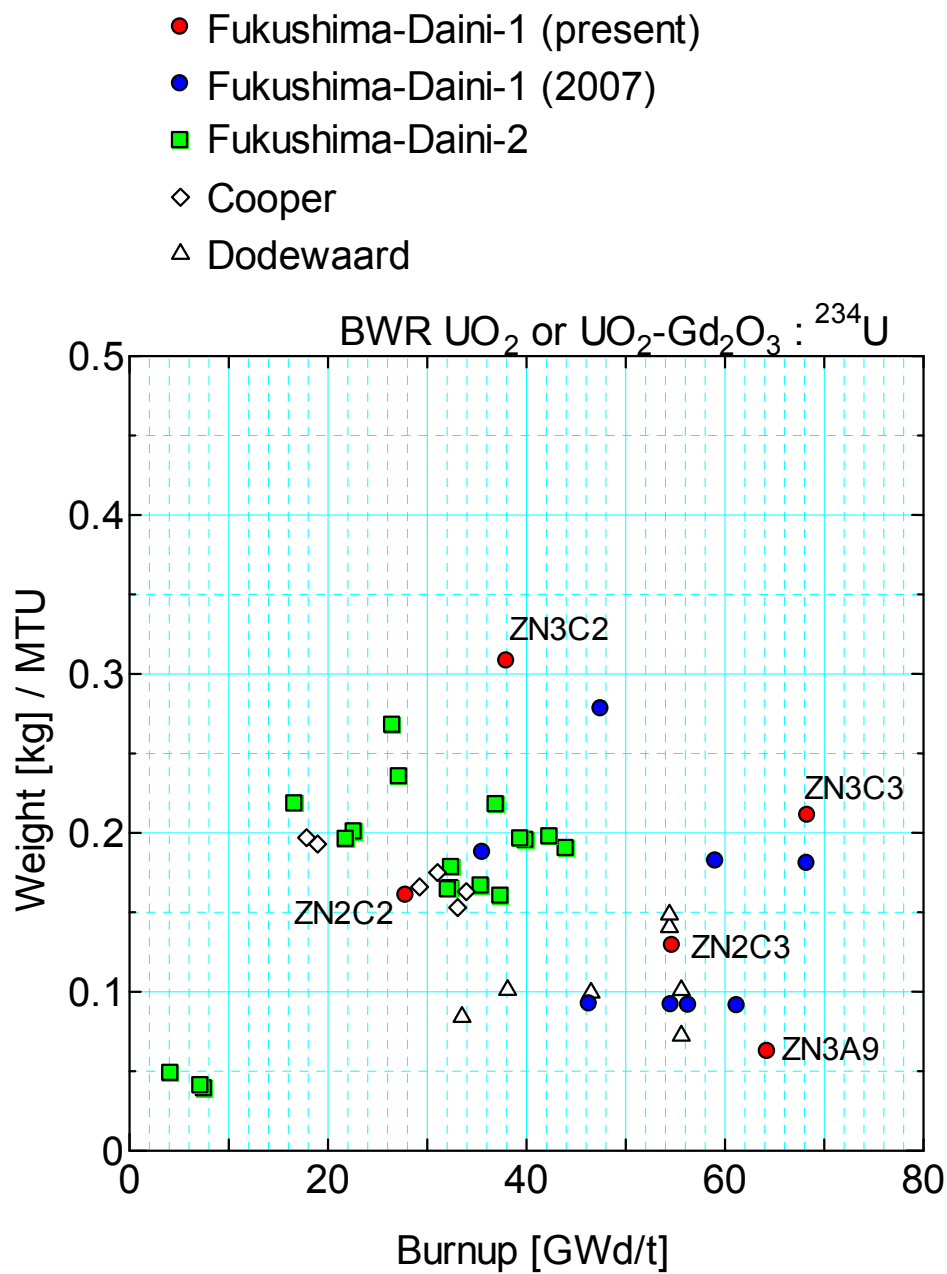


図 5-20 : ^{234}U 生成量の比較

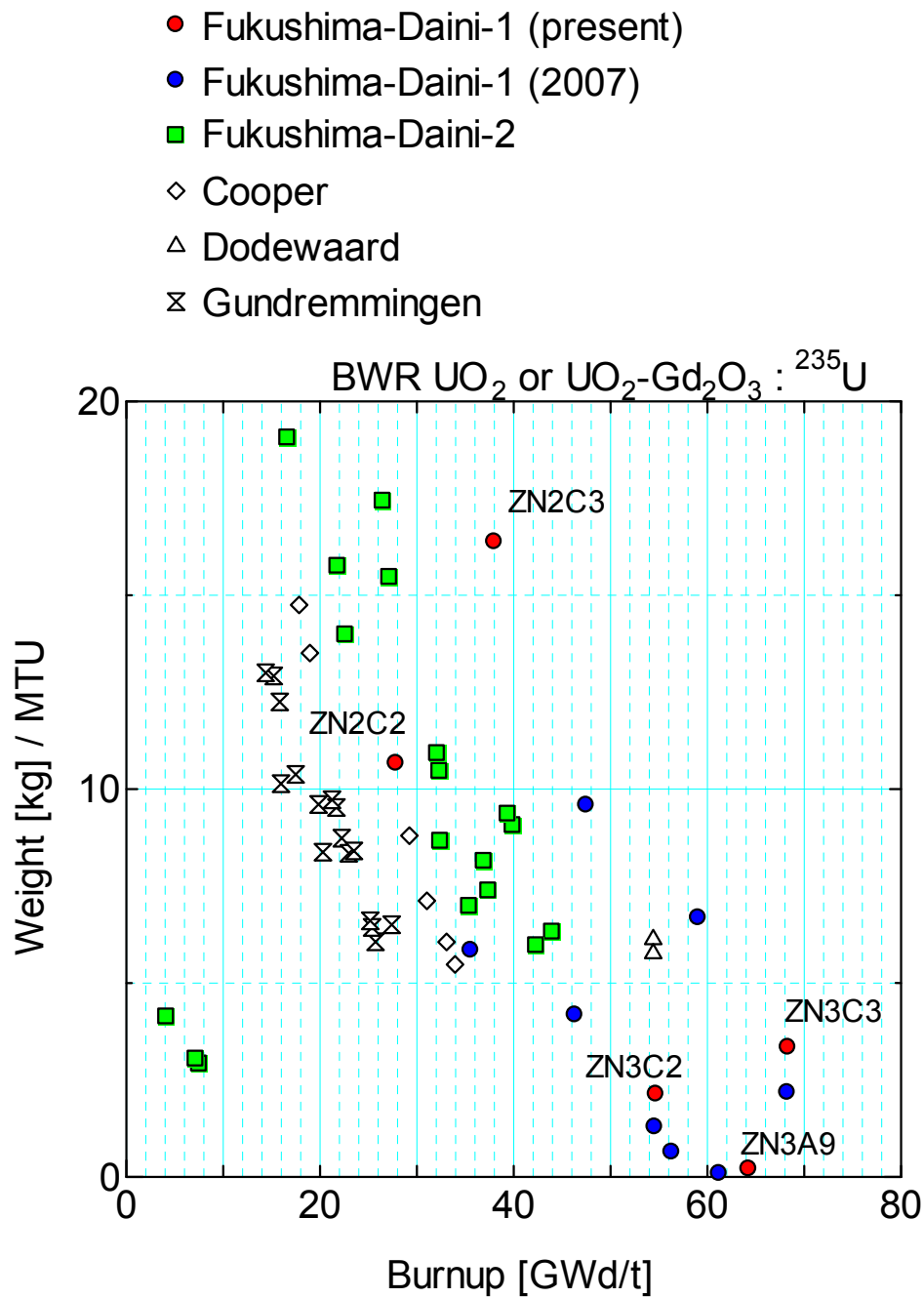


図 5-21 : ^{235}U 残存量の比較

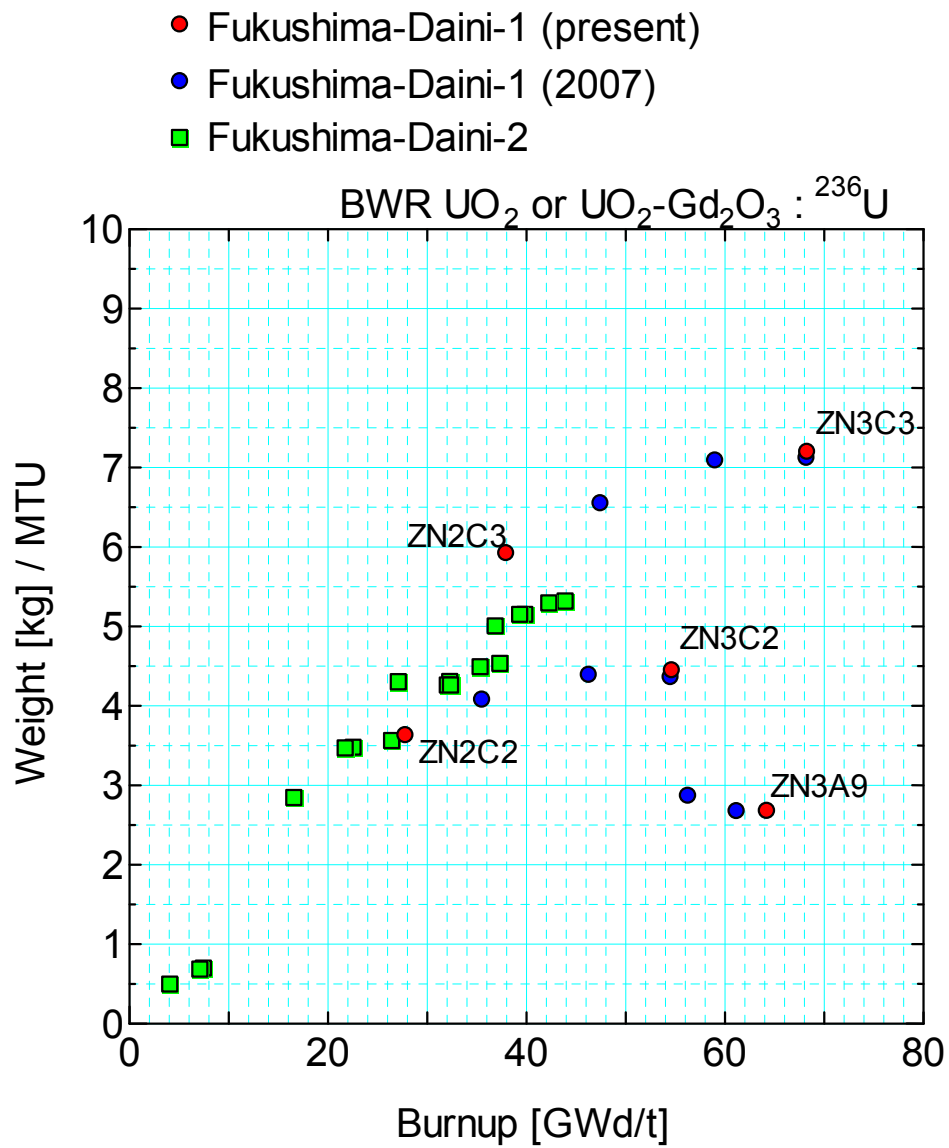


図 5-22 : ^{236}U 残存量の比較

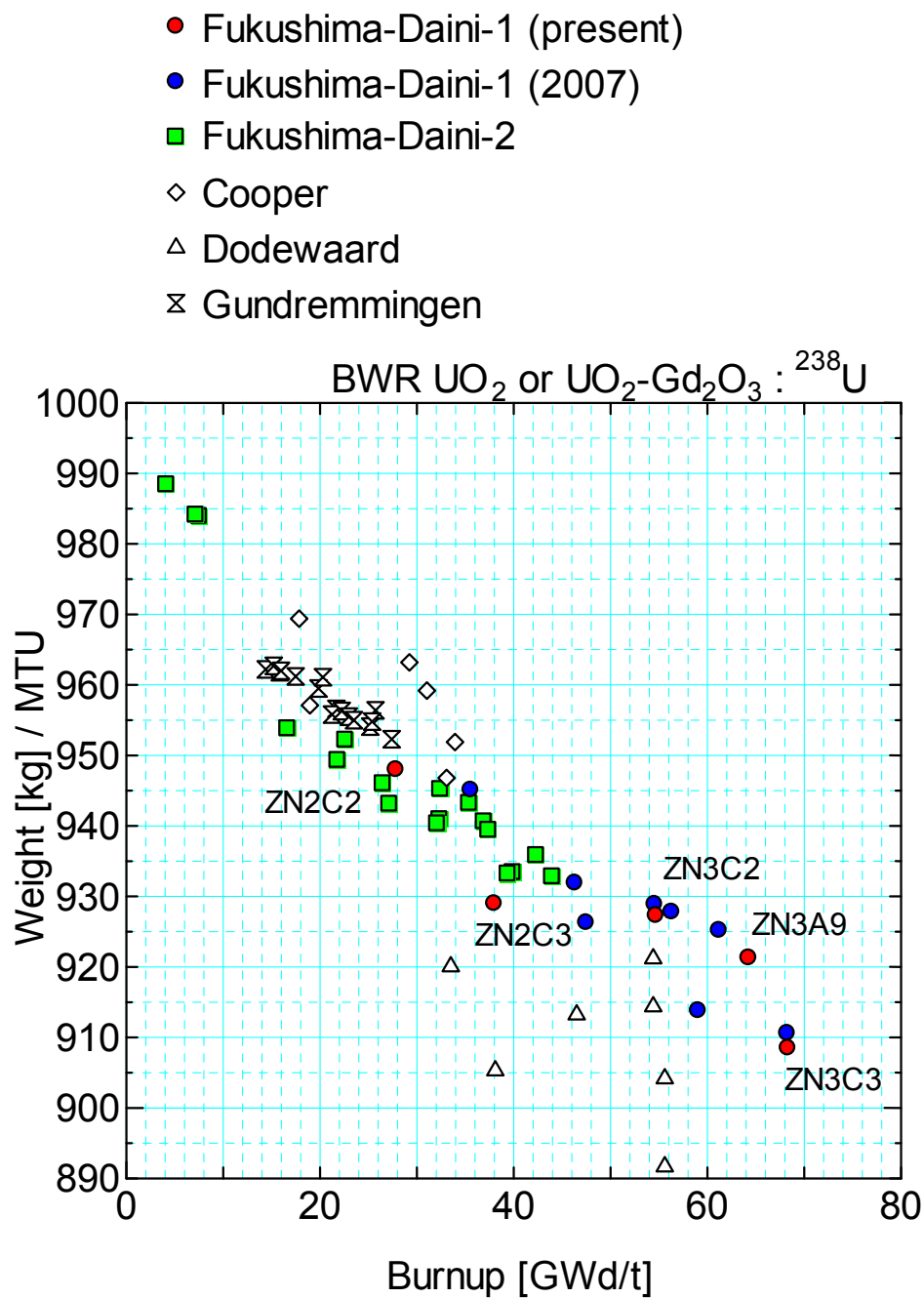


図 5-23 : ^{238}U 残存量の比較

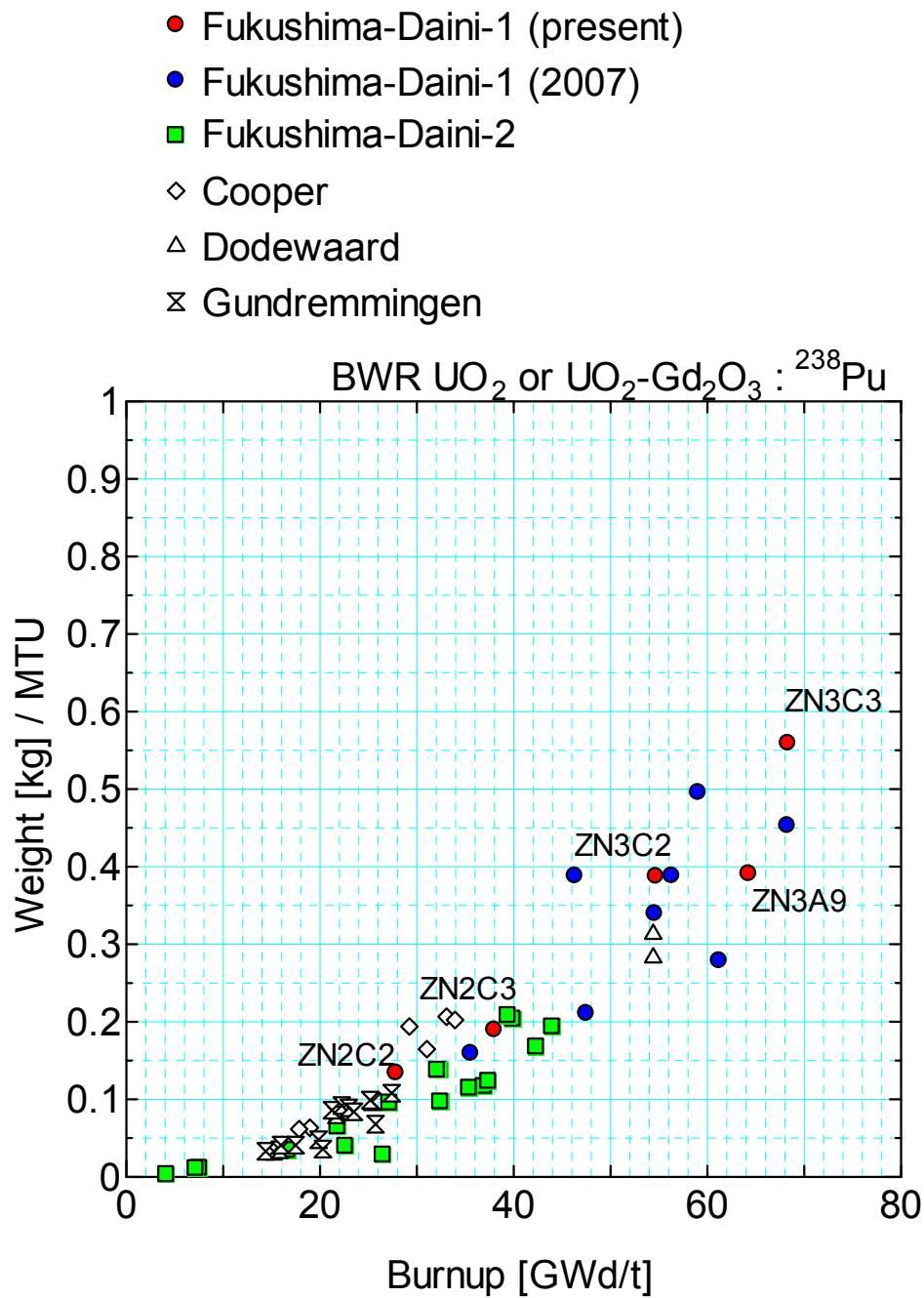


図 5-24 : ^{238}Pu 生成量の比較

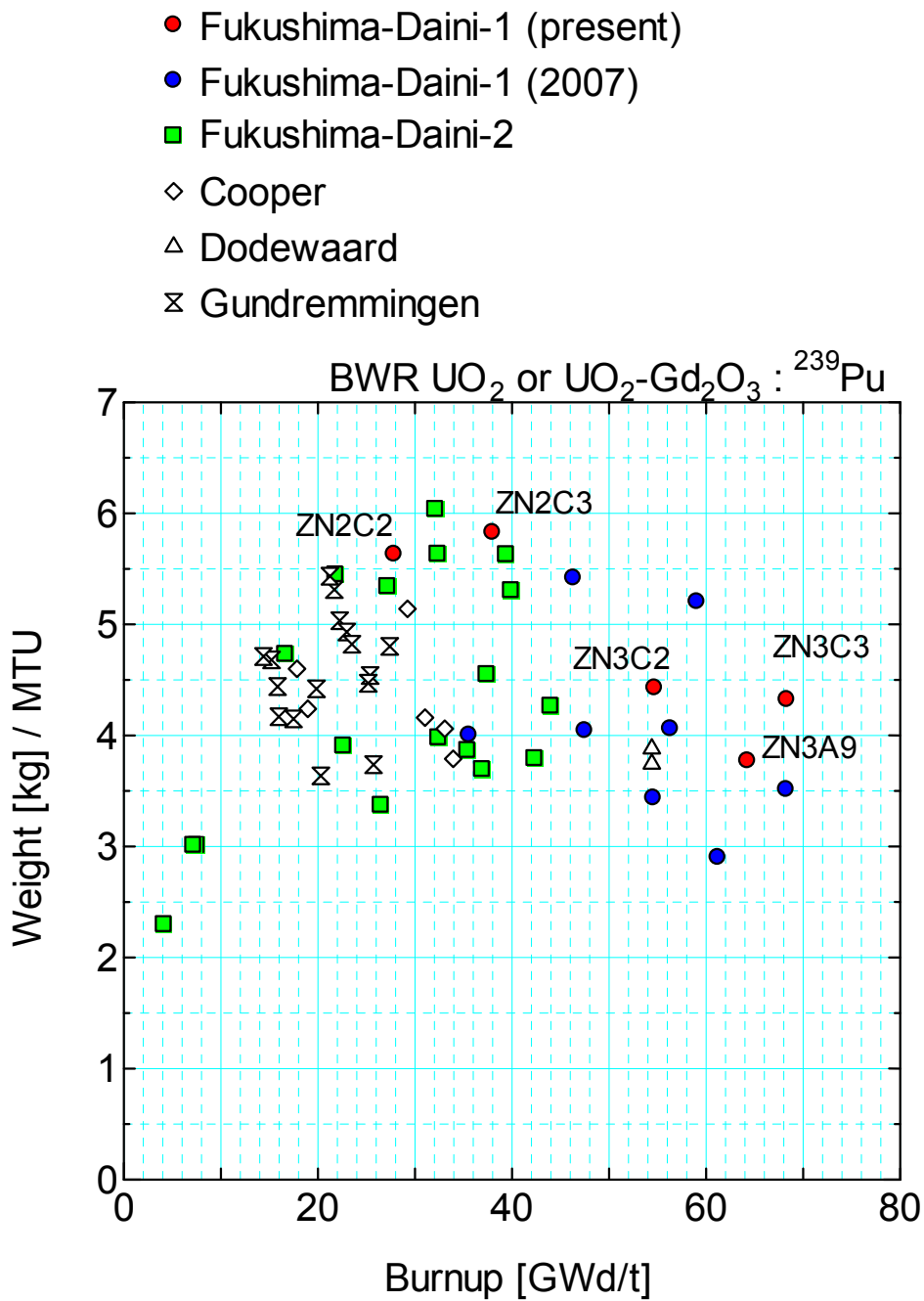


図 5-25 : ^{239}Pu 生成量の比較

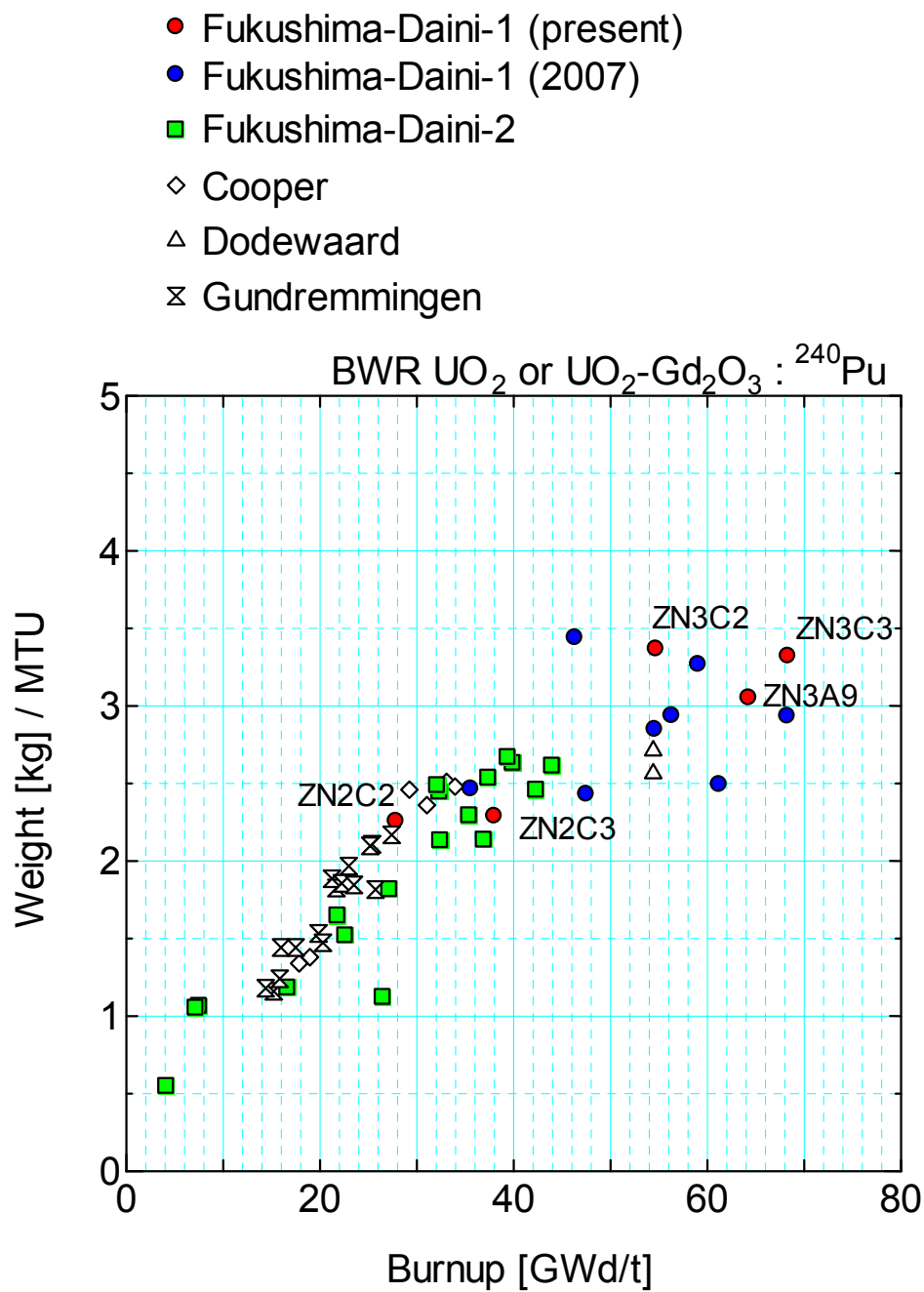


図 5-26 : ^{240}Pu 生成量の比較

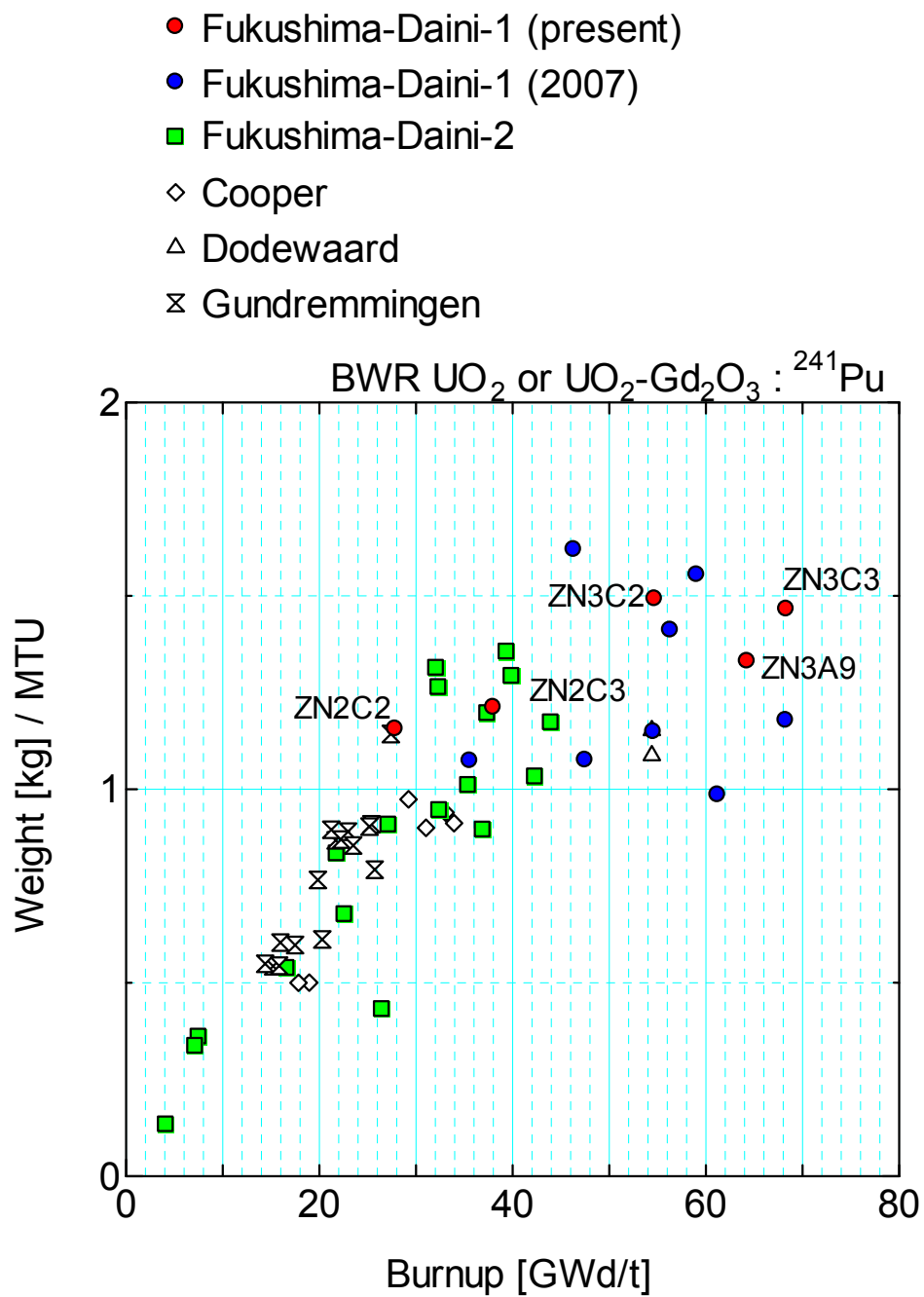


図 5-27 : ^{241}Pu 生成量の比較

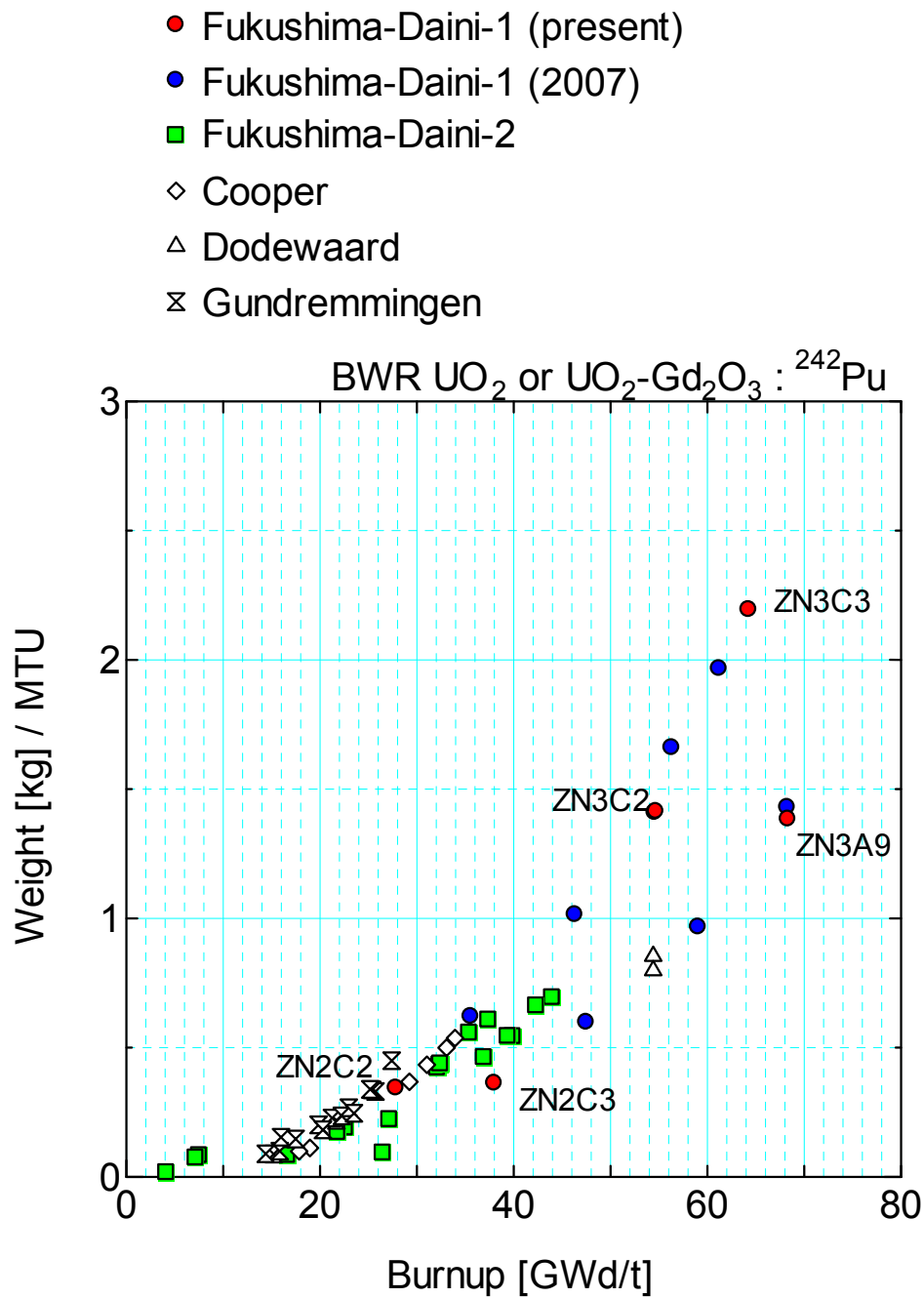


図 5-28 : ^{242}Pu 生成量の比較

図 5-29 と図 5-30 には、この測定で得られた ^{95}Mo 、 ^{99}Tc 、 ^{101}Ru 、 ^{103}Rh 、 ^{109}Ag 、 ^{133}Cs の溶解溶液と不溶性残渣中の初期ウラン 1 トンあたりの存在量を示す。また、図 5-31 にはそれらの和を、図 5-32 には不溶性残渣中の存在割合を示す。難測定 FP と呼んでいるこれらの FP の量は、図 5-31 からわかるように、 ^{109}Ag が最も燃焼度の高いサンプルで測定値が小さくなっている例外はあるが、燃焼度に対して指数関数的に（片対数グラフで直線的に）増大をしている。不溶性残渣の量は燃焼度と共に単調に増大すると考えられたが、図 5-32 に示すように、燃焼度が最も高いサンプルで不溶性残渣中の FP 量が減少する結果を得た。これが燃料の燃焼条件等によるものなのか、溶解を行った時の条件の差によって生じたものなのかは、現段階では不明である。旧原研を含めて原子力機構で行ってきた使用済燃料同位体組成測定実験では、これら不溶性残渣中に含まれる FP の測定は行われてこなかった。今後、測定手法のさらなる見直しなどを通じて、不溶性残渣に含まれる FP 量の測定技術の向上を図っていくことが求められる。

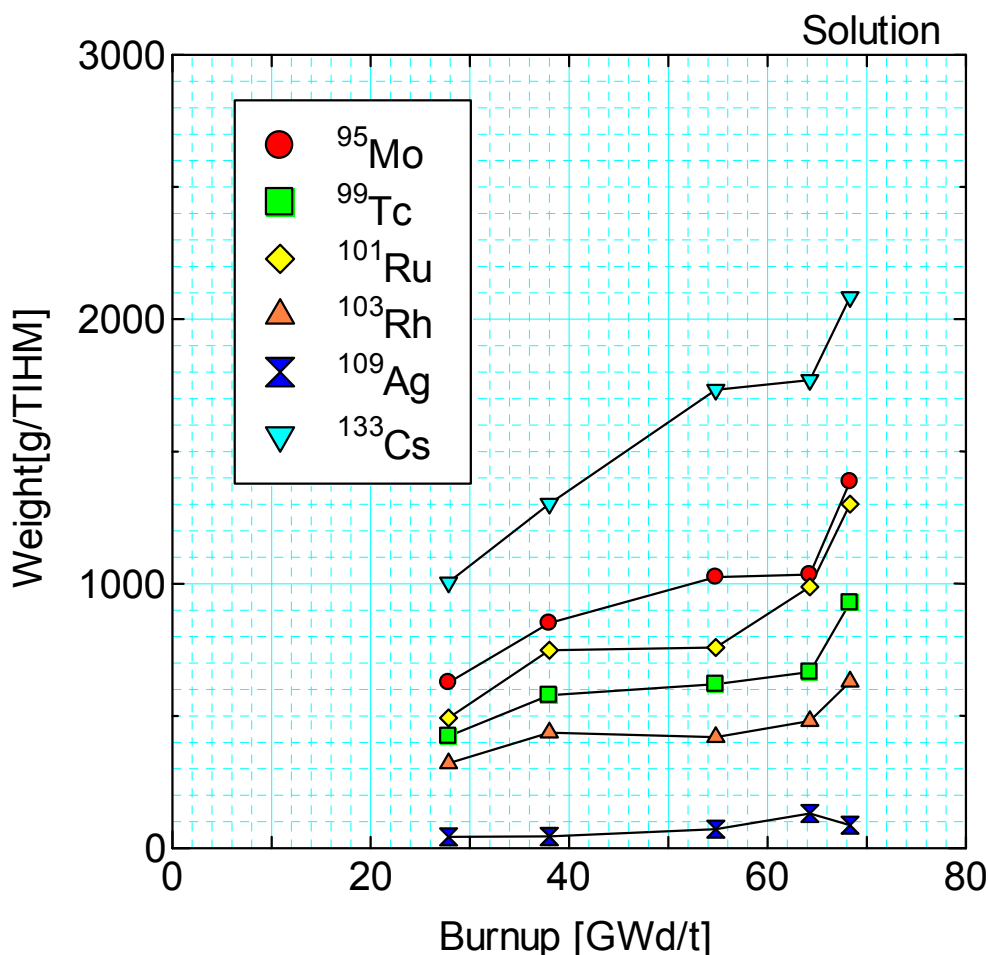


図 5-29： 難測定 FP 測定結果（溶解溶液中の FP 量 (g/TIHM)）

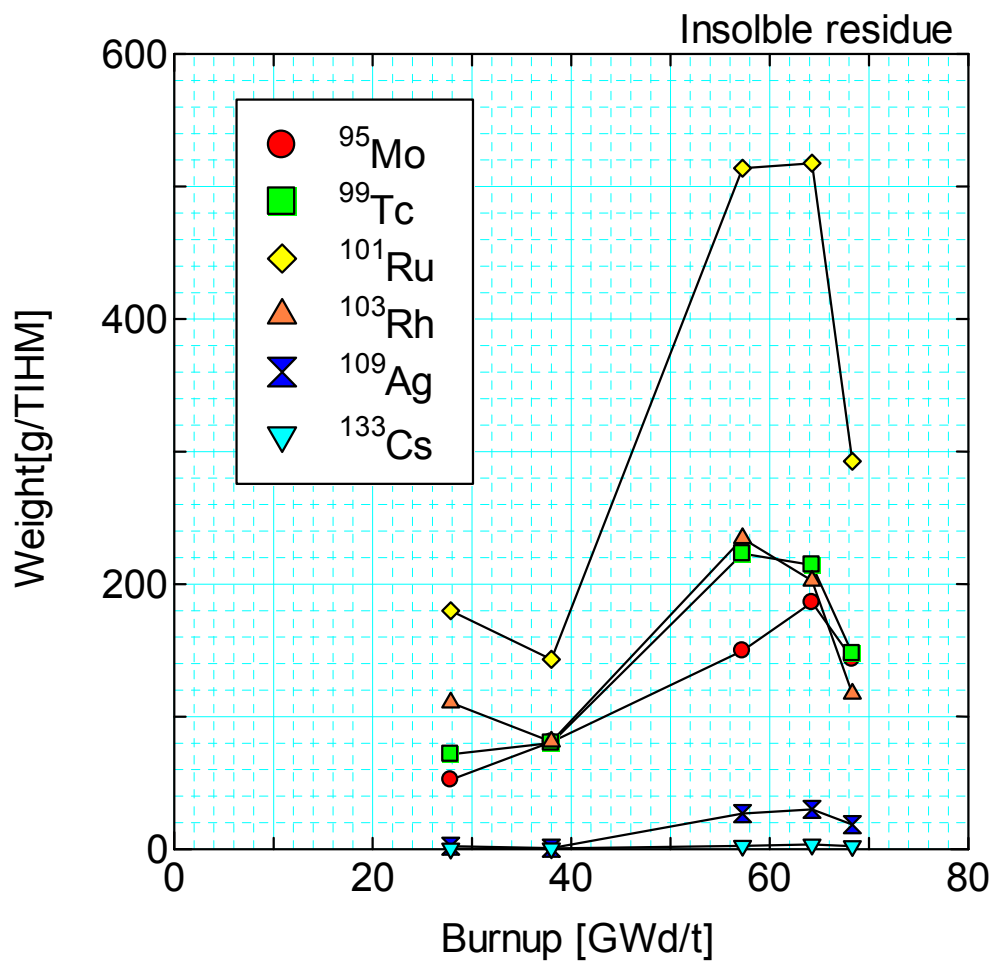


図 5-30 : 難測定 FP 測定結果 (不溶性残渣中の FP の量 (g/TIHM))

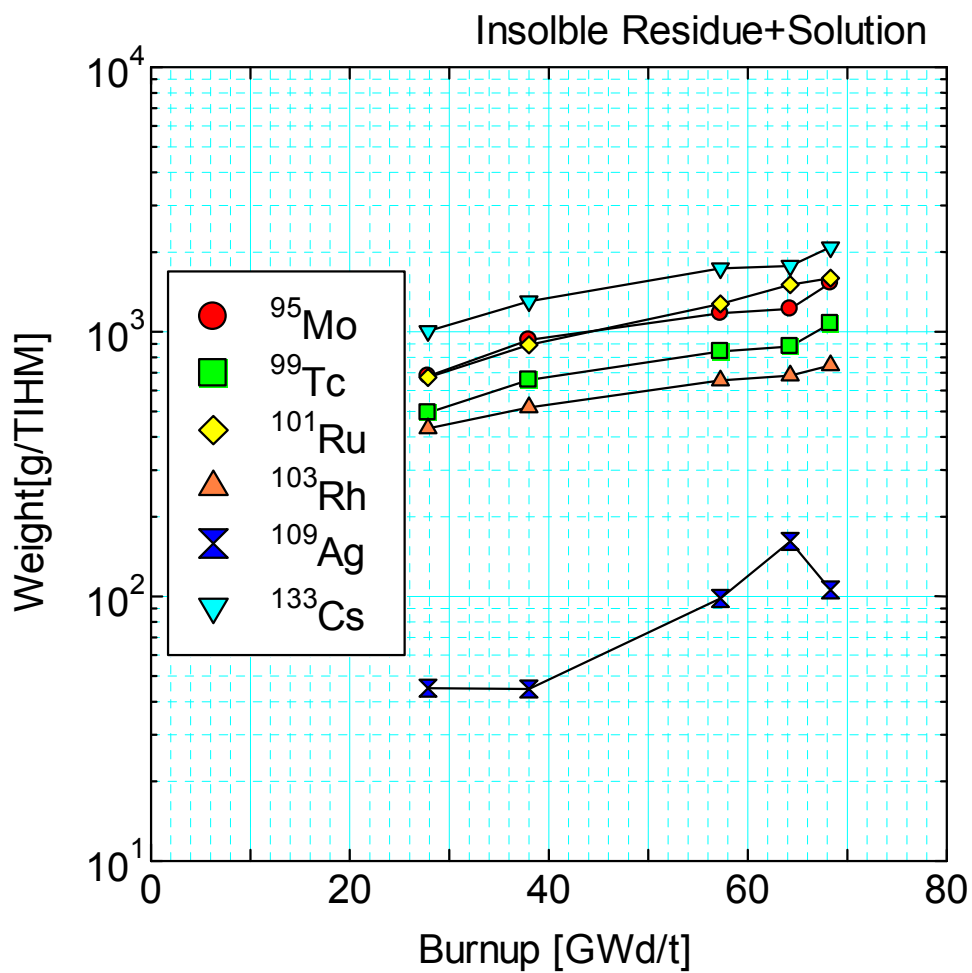


図 5-31 : 難測定 FP 測定結果 (溶解溶液と不溶性残渣中の FP 量の和 (g/TIHM))

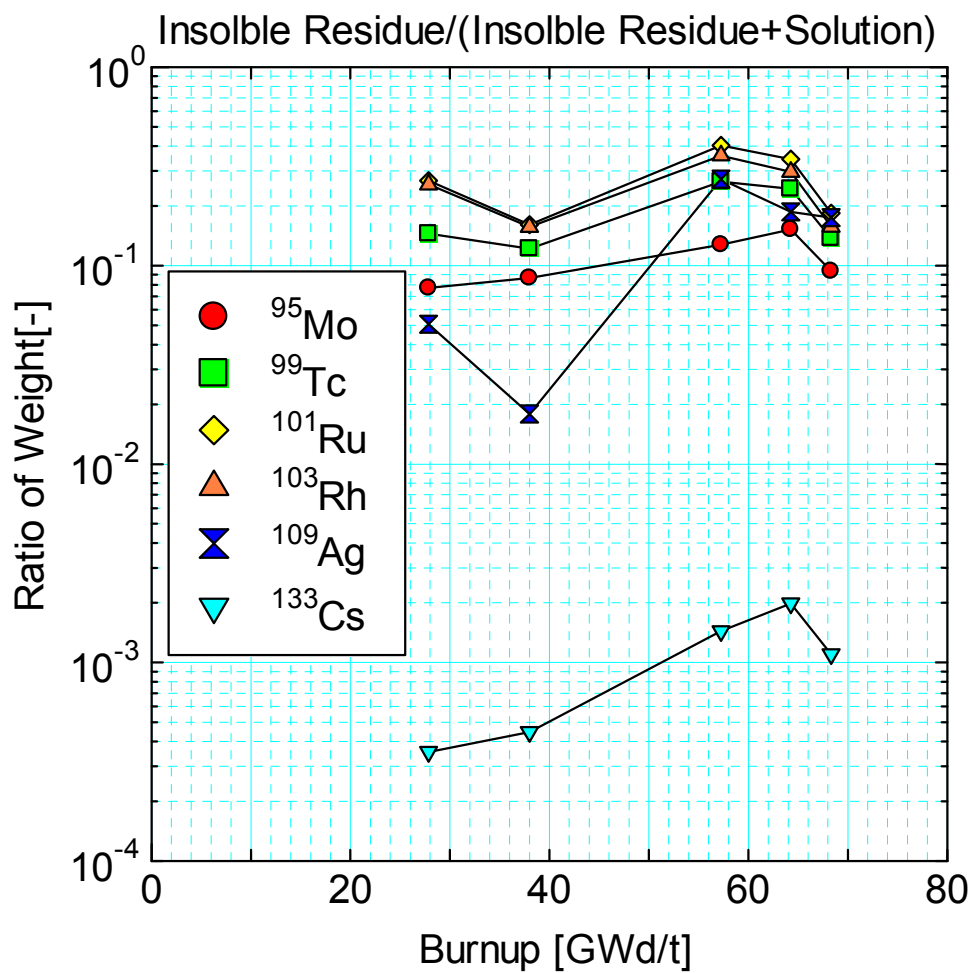


図 5-32 : 難測定 FP 測定結果 (不溶性残渣中の FP の割合)

表 5-3 には各サンプルの各同位体について、原子炉停止から測定までの時間（冷却時間）を示した。表 5-4 には各サンプルの測定値について測定誤差（相対標準偏差）を示した。

表 5-3： 原子炉停止から測定日までの冷却時間（年）のまとめ

Assembly Name	ZN2		ZN3		
	ZN2c2	ZN2c3	ZN3c2	ZN3c3	ZN3a9
²³⁴ U	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
²³⁵ U	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
²³⁶ U	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
²³⁸ U	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
²³⁸ Pu	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
²³⁹ Pu	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
²⁴⁰ Pu	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
²⁴¹ Pu	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
²⁴² Pu	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
¹⁴² Nd	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
¹⁴³ Nd	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
¹⁴⁴ Nd	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
¹⁴⁵ Nd	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
¹⁴⁶ Nd	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
¹⁴⁸ Nd	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
¹⁵⁰ Nd	9.69	12.21	9.54	7.02	7.02
¹³⁴ Cs	9.73	9.62	7.02	7.02	7.02
¹³⁷ Cs	9.73	9.62	7.02	7.02	7.02
¹⁵¹ Eu	10.68	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁵³ Eu	10.68	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁵⁴ Eu	9.73	9.62	7.08	7.08	7.08
¹⁵⁵ Eu	9.73	9.62	7.08	7.08	7.08
¹⁴⁷ Pm	10.70	10.61	8.02	7.96	7.96
¹⁴⁷ Sm	10.68	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁴⁸ Sm	10.68	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁴⁹ Sm	10.68	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁵⁰ Sm	10.68	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁵¹ Sm	10.68	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁵² Sm	10.68	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁵⁴ Sm	10.68	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁵² Gd	10.69	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁵⁴ Gd	10.69	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁵⁵ Gd	10.69	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁵⁶ Gd	10.69	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁵⁷ Gd	10.69	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁵⁸ Gd	10.69	10.48	8.02	7.96	7.96
¹⁶⁰ Gd	10.69	10.48	8.02	7.96	7.96
⁹⁵ Mo	11.65	11.65	8.99	8.99	8.99
⁹⁹ Tc	11.65	11.65	8.99	8.99	8.99
¹⁰¹ Ru	11.65	11.65	8.99	8.99	8.99
¹⁰³ Rh	11.65	11.65	8.99	8.99	8.99
¹⁰⁹ Ag	11.65	11.65	8.99	8.99	8.99
¹³³ Cs	11.65	11.65	8.99	8.99	8.99

表 5-4： 測定誤差（RSD:相対標準偏差（%））のまとめ

Assembly Name	ZN2		ZN3		
	ZN2c2	ZN2c3	ZN3c2	ZN3c3	ZN3a9
²³⁴ U	< 2.2	< 2.2	< 2.2	< 2.2	< 2.2
²³⁵ U	< 1.0	< 1.0	< 1.0	< 1.0	< 1.0
²³⁶ U	< 0.3	< 0.3	< 0.3	< 0.3	< 0.3
²³⁸ U	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2
²³⁸ Pu	< 0.6	< 0.6	< 0.6	< 0.6	< 0.6
²³⁹ Pu	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2
²⁴⁰ Pu	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2
²⁴¹ Pu	< 0.3	< 0.3	< 0.3	< 0.3	< 0.3
²⁴² Pu	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2
¹⁴² Nd	< 0.6	< 0.6	< 0.6	< 0.6	< 0.6
¹⁴³ Nd	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2
¹⁴⁴ Nd	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2
¹⁴⁵ Nd	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2
¹⁴⁶ Nd	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2
¹⁴⁸ Nd	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2	< 0.2
¹⁵⁰ Nd	< 0.3	< 0.3	< 0.3	< 0.3	< 0.3
¹³⁴ Cs	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4
¹³⁷ Cs	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4
¹⁵¹ Eu	3.8	1.4	2.5	1.3	1.4
¹⁵³ Eu	2.6	1.3	2.1	0.5	0.7
¹⁵⁴ Eu	< 4	< 4	< 4	< 4	< 4
¹⁵⁵ Eu	< 6	< 6	< 6	< 6	< 6
¹⁴⁷ Pm	< 5	< 5	< 5	< 5	< 5
¹⁴⁷ Sm	2.1	1.0	1.8	1.2	1.2
¹⁴⁸ Sm	2.4	1.1	1.8	1.2	1.2
¹⁴⁹ Sm	3.7	1.9	3.4	1.5	2.1
¹⁵⁰ Sm	2.2	1.0	1.8	1.2	1.3
¹⁵¹ Sm	2.6	1.9	2.4	1.5	2.1
¹⁵² Sm	1.9	1.0	1.6	1.1	1.1
¹⁵⁴ Sm	2.4	1.2	2.0	1.2	1.2
¹⁵² Gd	4.3	3.8	5.9	5.3	5.8
¹⁵⁴ Gd	2.0	1.4	1.6	1.3	1.6
¹⁵⁵ Gd	8.2	1.1	8.5	1.1	1.3
¹⁵⁶ Gd	1.4	0.8	1.2	0.8	1.0
¹⁵⁷ Gd	6.2	2.0	10.1	3.7	3.0
¹⁵⁸ Gd	1.4	1.1	1.2	0.9	1.2
¹⁶⁰ Gd	1.6	1.8	1.4	1.9	2.1
⁹⁵ Mo	3.9	4.0	2.2	4.5	2.3
⁹⁹ Tc	3.1	3.1	2.4	3.5	2.4
¹⁰¹ Ru	3.0	3.1	2.0	3.8	2.2
¹⁰³ Rh	2.6	2.4	2.0	3.7	1.9
¹⁰⁹ Ag	1.9	2.1	1.5	1.5	1.5
¹³³ Cs	3.9	3.8	3.1	4.8	3.5

ここに示した値は測定機器の性能と分離や希釈による誤差を考慮したものである。

表 5-5 と表 5-6 には、ZN2 及び ZN3 集合体の照射にかかわる原子炉の運転履歴を示す。

表 5-5： ZN2 集合体の運転履歴

	開始日	終了日	日数
運転 (第 12 サイクル)	1996/7/26	1997/9/23	424
定検	1997/9/23	1997/10/31	38
運転 (第 13 サイクル)	1997/10/31	1998/12/17	412
定検	1998/12/17	1999/3/12	85
運転 (第 14 サイクル)	1999/3/12	2000/5/9	424

表 5-6： ZN3 集合体の運転履歴

	開始日	終了日	日数
運転 (第 12 サイクル)	1996/7/26	1997/9/23	424
定検	1997/9/23	1997/10/31	38
運転 (第 13 サイクル)	1997/10/31	1998/12/17	412
定検	1998/12/17	1999/3/12	85
運転 (第 14 サイクル)	1999/3/12	2000/5/9	424
定検	2000/5/9	2000/6/15	37
運転 (第 15 サイクル)	2000/6/15	2001/8/13	424
定検	2001/8/13	2001/11/9	88
運転 (第 16 サイクル)	2001/11/9	2003/1/7	424

図 5-33 と図 5-34 には、ZN2 集合体及び ZN3 集合体を上から見た断面図と、それぞれのサンプルの取得位置を示した。また、図 5-35 には、各燃料棒でサンプルを取り出した軸方向の高さを示した。図 5-36 及び図 5-37 には、ZN2 及び ZN3 集合体の炉内での装荷位置を示した。

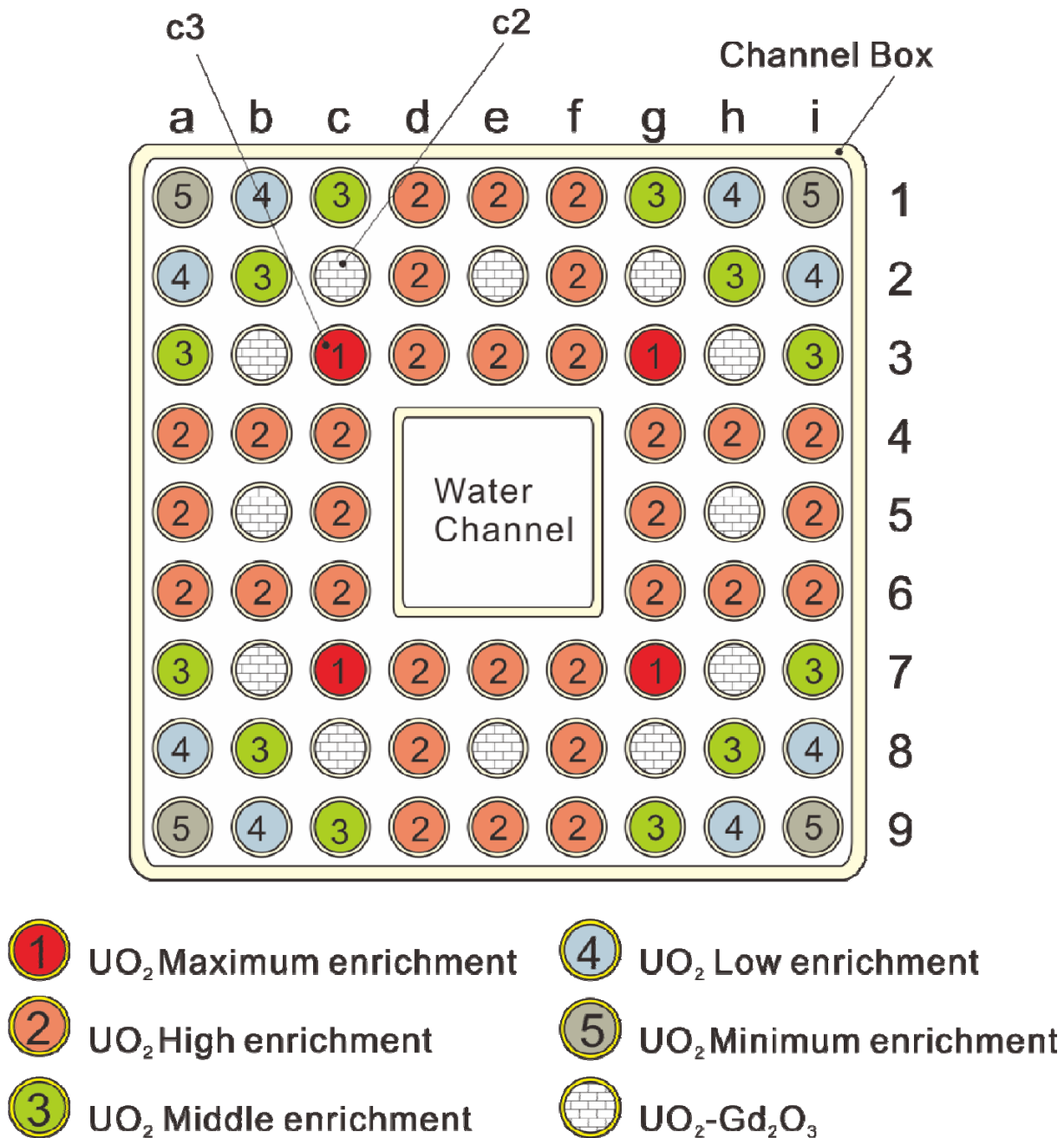


図 5-33 : 本試験でサンプルが取得された燃料棒の位置 (ZN2 集合体)
(3 サイクル照射; 平均燃焼度 35.6GWd/t)

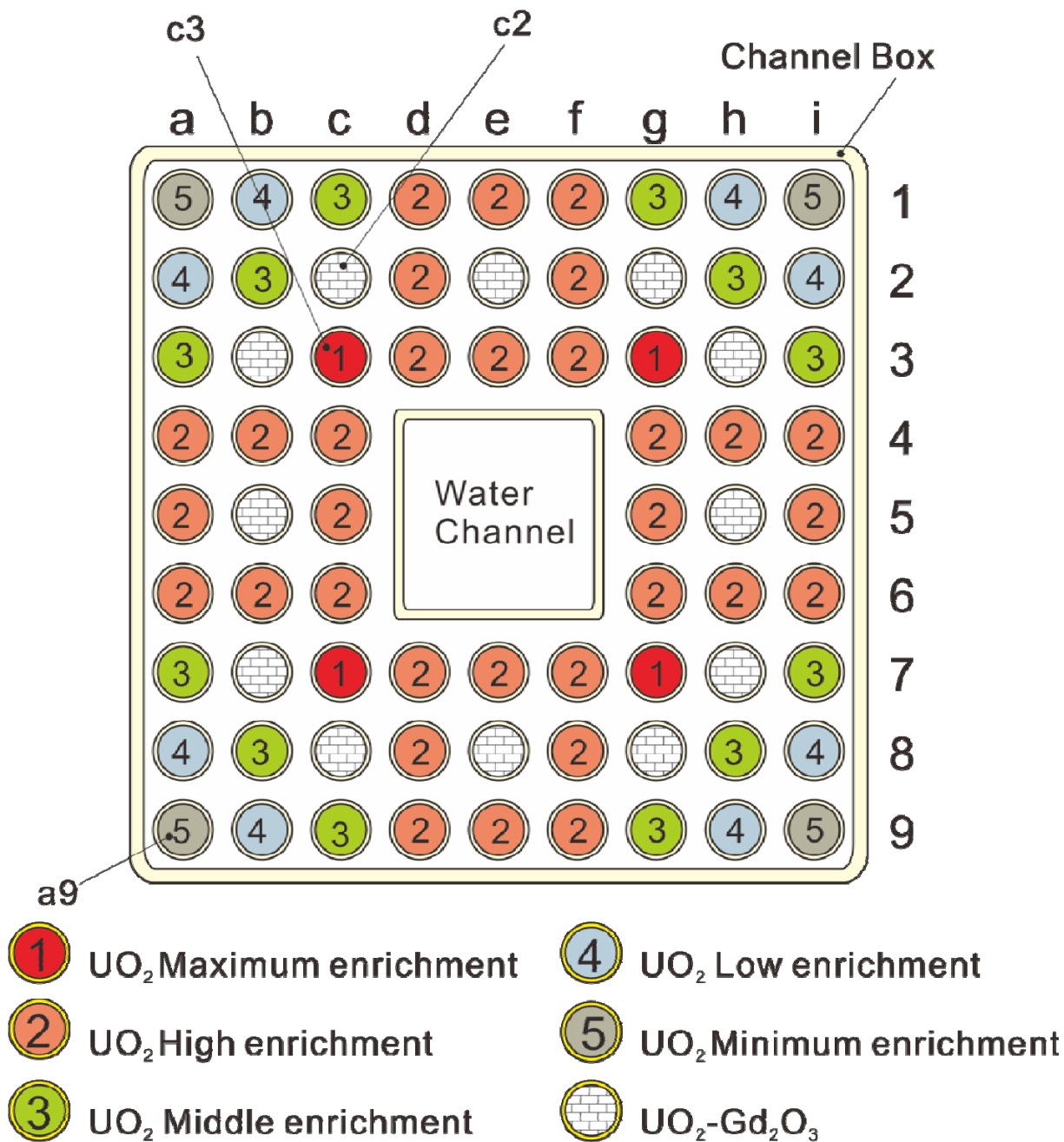


図 5-34 : 本試験でサンプルが取得された燃料棒の位置 (ZN3 集合体)
(5 サイクル照射; 平均燃焼度 53.5 GWd/t)

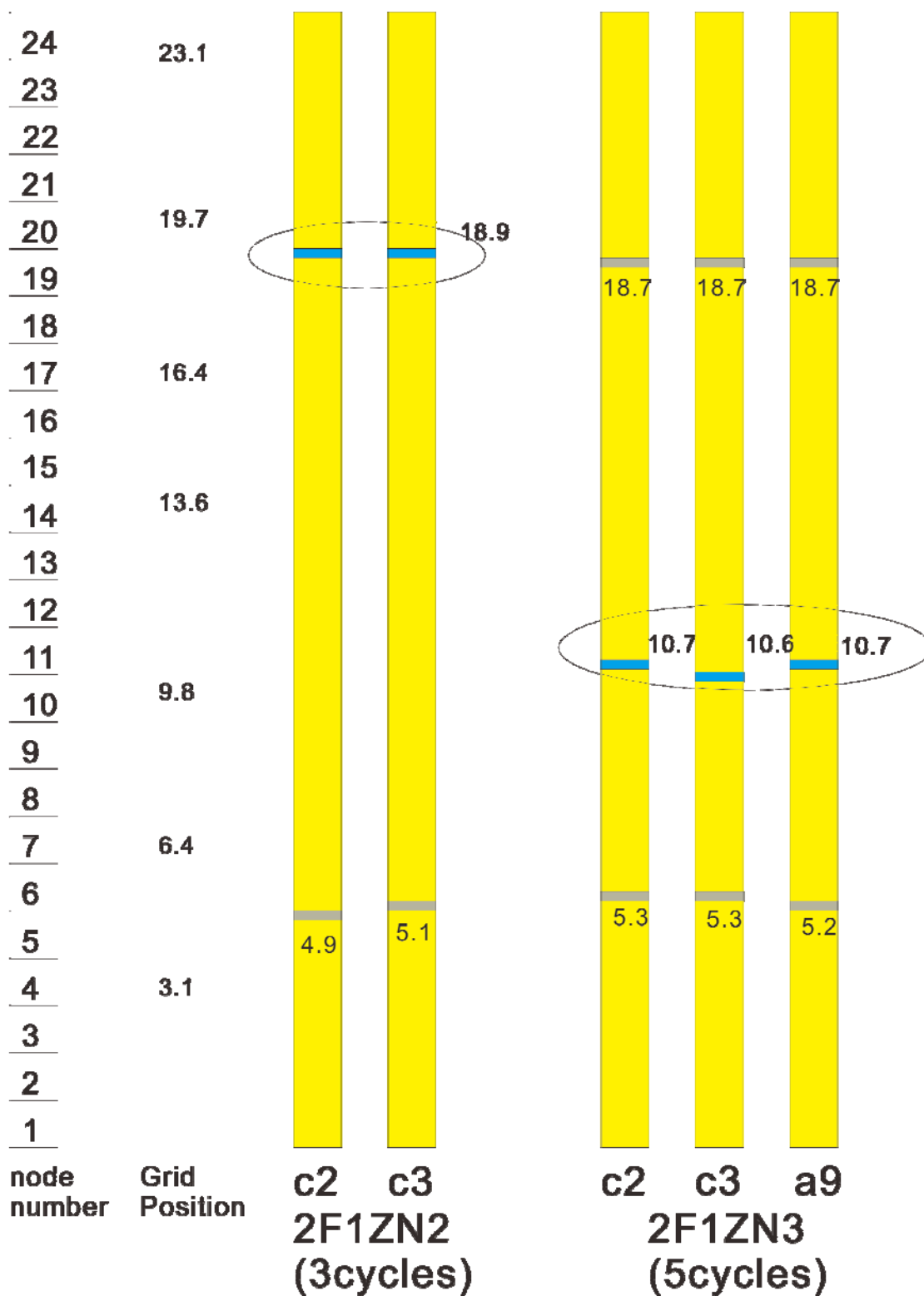


図 5-35 : 本試験でサンプルが取得された位置 (軸方向)

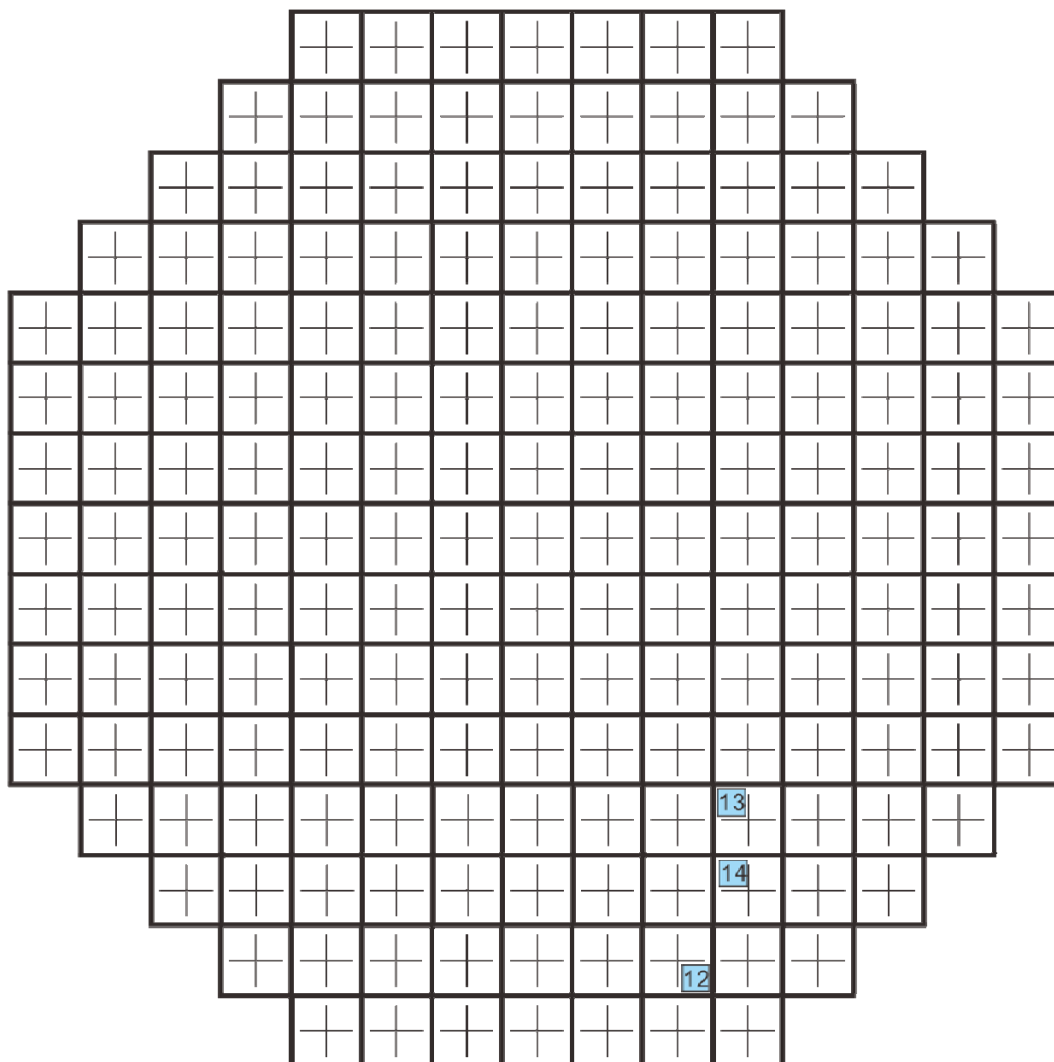


図 5-36 : ZN2 集合体のシャッフリング^{11,12)}

(福島第 2 原子力発電所第 12 サイクルから第 14 サイクル)

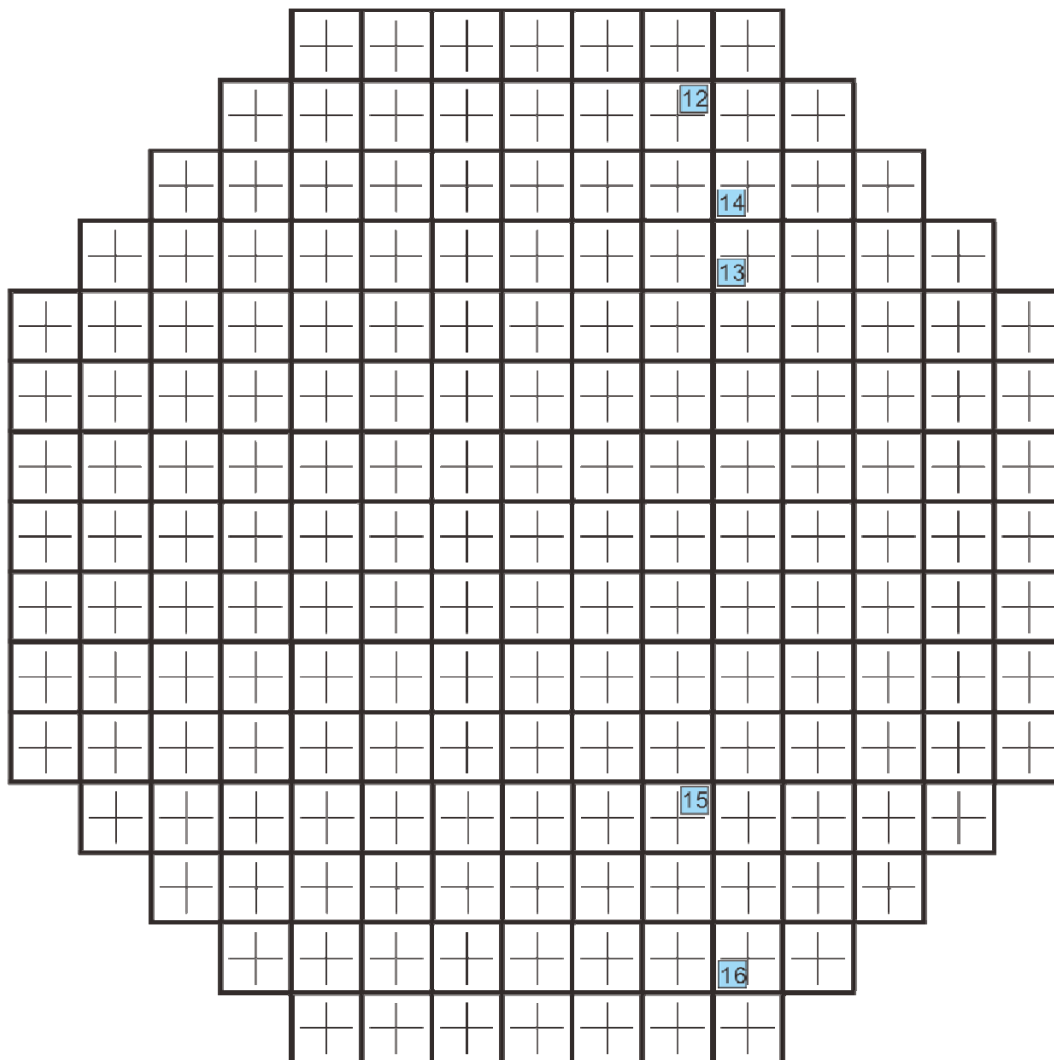


図 5-37 : ZN3 集合体のシャッフリング^{11,12)}

(福島第 2 原子力発電所第 12 サイクルから第 16 サイクル)

6. おわりに

JAEA が JNES からの受託事業として実施した「平成 20～23 年度軽水炉燃焼燃料の核分裂生成核種組成測定試験」において、燃焼率評価で測定が必要な元素の 1 つである Nd について、2 種類の手法で測定を行ったが結果に差異が生じた。そのため、確度の高い測定結果を取得することと、生じた差異の原因究明を目的としたフォローアップ測定を実施した。

本件で発生した Nd 定量値の差異の原因は、3 章で述べたとおり、(1) Nd 定量における化学操作中に相互汚染等が発生した可能性があったこと、(2) Nd を含む FP 核種の測定結果算出に使用した溶解溶液中の U 原子数に不確定性があったこと、の 2 点により生じたものと推定される。今後同様の測定を実施する際に注意すべき点をまとめると以下ようになる。

- ① 着目元素の定量を行う際、同時期かつ同一試料で U 原子数を測定すること。
- ② 試料の保管時には、蒸発が無視できるだけの十分な量を確保した上で保管すること。
- ③ 保管試料は定期的に重量を測定し、自然蒸発の影響を把握すること。
- ④ 分取・希釈等の操作時には天秤による秤量を行い、データ管理を確実に行うこと。

の 4 点である。特に、どのデータをどの時期に測定するかは全体の測定計画の検討で調整できることであるため、出来るだけ同一試料のデータを短期間にまとめて取得できるように配慮すべきである。

また、作業環境からの天然元素の汚染等の影響の排除について、近年の分析装置の高感度化に伴い試料の取扱量が極めて少なくなっていることに注意すべきである。取り扱う試料量が少なくなれば、被ばくや汚染の可能性を低減できる反面、同時に取扱う試料間から生じる相互汚染、使用する試薬や器具及び作業を実施する環境下から混入する天然元素の影響等による汚染の可能性が高くなる。これらの試料間の相互及び環境下等から生じる汚染は、その原因が多岐に渡って考えられることから、作業全般に繊細な注意を払う必要がある。あるいは、被ばく量に注意を払いつつ、環境下等から生じる天然元素の汚染の影響が出ない程度に取り扱う量を増加させる等の検討も必要となるだろう。このためにも、さらに確度の高いデータの取得を目指し、同様の測定を繰り返し行うことで測定経験を得ることが必要である。

本件で発生した Nd 定量値の差異について、今後同様の事象を繰り返さないためには上記対応を必要とする。したがって、分析作業の実施の際には、事前に作業員間で分析方法及び手順について十分に検討を行い、綿密な計画を立て、それらを確実に遂行していくことの重要性を再認識する必要がある。

謝 辞

JNES からの受託事業として実施した「平成 20～23 年度軽水炉燃焼燃料の核分裂生成核種組成測定試験」においては、JNES の山本徹氏には当該事業の立ち上げから実施及び本フォローアップ測定の実施に至るまで、多大なご指導とご支援を頂きました。JNES の安藤良平氏及び鈴木求氏には、事業の遂行だけでなく、取得データの解析結果に関するご指導をいただきました。深く感謝申し上げます。安全研究センター サイクル安全研究グループの外池幸太郎研究主幹には JNES からの受託事業立ち上げに際して事業の主担当者としてご尽力いただきました。また、同グループの戸塚真義氏と原科研福島技術開発特別チーム 臨界管理技術開発グループの蒲原佳子女史には本レポートに掲載するデータの整理を、旧ホット試験施設管理部 ホット材料試験課の宮田精一氏並びに原科研福島技術開発特別チーム 臨界管理技術開発グループの佐藤真人氏には試料の再調製を行っていただきました。原子力基礎工学研究部門 分析化学研究グループの河野信昭氏並びに鈴木大輔氏には試料分離法について貴重なご助言をいただきました。ここに記してお礼申し上げます。

参考文献

- 1) (独)原子力安全基盤機構受託業務「平成 20～23 年度軽水炉燃焼燃料の核分裂生成核種組成測定試験」平成 20 年度報告書
- 2) (独)原子力安全基盤機構受託業務「平成 20～23 年度軽水炉燃焼燃料の核分裂生成核種組成測定試験」平成 21 年度報告書 (<http://www.jnes.go.jp/content/000016661.pdf>)
- 3) (独)原子力安全基盤機構受託業務「平成 20～23 年度軽水炉燃焼燃料の核分裂生成核種組成測定試験」平成 22 年度報告書 (<http://www.jnes.go.jp/content/000118961.pdf>)
- 4) (独)原子力安全基盤機構受託業務「平成 20～23 年度軽水炉燃焼燃料の核分裂生成核種組成測定試験」平成 23 年度報告書 (<http://www.jnes.go.jp/content/000123740.pdf>)
- 5) S.Usuda, N.Kohno : “Anion-Exchange Separation of Nd and the Transplutonium Elements in Spent Nuclear Fuels for Burn-up Determination”, Separation Sci. Technol., 23(10&11), pp.1119-1131 (1988)
- 6) G.Uchiyama, et al : “Development of quantitative analytical method of U, Pu and fission products in spent fuel by combined-chromatographic-mass-spectrometric-isotopic-dilution technology”, European Nuclear Conference 2012 (ENC 2012), December 2012, Manchester, United Kingdom.
- 7) ISO11483 : “Preparation of plutonium sources and determination of $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotope ratio by alpha spectrometry ” , ISO , Geneva(1994)
- 8) K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, N. Iwamoto, A. Ichihara, S. Kunieda, S. Chiba, K.

- Furutaka, N. Otuka, T. Ohsawa, T. Murata, H. Matsunobu, A. Zukeran, S. Kamada, and J. Katakura: "JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering," *Journal of Nuclear Science and Technology*, 48, 1 (2011).
- 9) K. Okumura, T. Mori, M. Nakagawa, K. Kaneko, "Validation of a Continuous-Energy Monte Carlo Burn-up Code MVP-BURN and Its Application to Analysis of Post Irradiation Experiment," *Journal of Nuclear Science and Technology*, 37(2), pp.128-138(2000).
- 10) 須山賢也、望月弘樹、高田友幸、龍福進、奥野浩、村崎穰、大久保清志、「連続エネルギーモンテカルロコード MVP 及び MCNP を使用する統合化燃焼計算コードシステム – SWAT3.1」 JAEA-Data/Code 2009-002, 日本原子力研究開発機構 (2009).
- 11) 「平成 18 年度全 MOX 炉心核設計手法信頼性実証試験成果報告書」07 基炉報-0001 原子力安全基盤機構 (2007).
- 12) 「平成 18 年度高燃焼度 9x9 型燃料信頼性実証試験成果報告書」07 基炉報-0002 原子力安全基盤機構 (2007).

付録
測定データ集

A 混合スパイク試料の値付け

表 A-1： 各標準濃度一覧

標準試料	濃度	誤差(%) [※]
U 濃度標準	26.820 μg/g	0.05
Pu 濃度標準	835.06 ng/g	0.05
Nd 濃度標準	134.95 ng/g	0.07

※：各標準の純度及び秤量誤差から算出した。

表 A-2： 混合スパイクと各濃度標準の混合データ

試料名	分取量(g)
混合スパイク	1.1452
U 濃度標準	1.0968
Pu 濃度標準	1.0723
Nd 濃度標準	1.0324

表 A-3： 各濃度標準の同位体組成

U 濃度標準			Pu 濃度標準			Nd 濃度標準		
同位体組成 (原子百分率)		誤差(%) [※]	同位体組成 (原子百分率)		誤差(%) [※]	同位体組成 (原子百分率)		誤差(%) [※]
²³⁴ U	0.0054	3.62	²³⁸ Pu	0.0030	2.15	¹⁴² Nd	27.119	0.007
²³⁵ U	0.7205	0.03	²³⁹ Pu	97.4234	0.001	¹⁴³ Nd	12.174	0.009
²³⁸ U	99.2741	0.0003	²⁴⁰ Pu	2.5607	0.003	¹⁴⁴ Nd	23.789	0.014
			²⁴¹ Pu	0.0100	1.91	¹⁴⁵ Nd	8.295	0.020
			²⁴² Pu	0.0028	18.5	¹⁴⁶ Nd	17.202	0.026
						¹⁴⁸ Nd	5.767	0.038
						¹⁵⁰ Nd	5.653	0.049

※：各誤差は、質量分析法による同位体比測定結果の各標準偏差に基づき、統計的な誤差伝播の計算により算出した。

表 A-4： 混合スパイク中 ²³⁸Pu の放射能測定結果

放射能比 (²³⁸ Pu/ ²⁴² Pu)
0.12692

表 A-5： 混合スパイクに各濃度標準を添加した試料の同位体比測定結果

試料名	測定値
²³³ U/ ²³⁸ U (原子数比)	0.075767 ± 0.000064
²⁴² Pu/ ²³⁹ Pu (原子数比)	0.065232 ± 0.000004
¹⁵⁰ Nd/ ¹⁴² Nd (原子数比)	0.75200 ± 0.00028

原子数の算出には次の式を用いた。

$$\text{原子数} = \frac{\text{Rm/s} \times \text{Sps} - \text{Spm}}{\text{Abm} - \text{Rm/s} \times \text{Abs}}$$

Rm/s: 濃度標準添加後の $^{238}\text{U}/^{233}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$ 、 $^{150}\text{Nd}/^{142}\text{Nd}$ 原子数比

Sps: 添加した各濃度標準中同位体の量 (原子数)、 ^{233}U 、 ^{242}Pu 、 ^{142}Nd 量

Spm: 添加した各濃度標準中同位体の量 (原子数)、 ^{238}U 、 ^{239}Pu 、 ^{150}Nd 量

Abm: 混合スパイク中の同位体の比、 $^{238}\text{U}/\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}/\text{Pu}$ 、 $^{150}\text{Nd}/\text{Nd}$

Abs: 混合スパイク中の同位体の比、 $^{233}\text{U}/\text{U}$ 、 $^{242}\text{Pu}/\text{Pu}$ 、 $^{142}\text{Nd}/\text{Nd}$

表 A-6: 原子数算出に使用したデータ

元素	Rm/s	Sps	Spm	Abm	Abs
U	13.19833	0	7.388E+16	0.0086391	0.9826830
Pu	0.065232	2.19735E+15	6.3943E+10	0.998653	0.0002917
Nd	0.752004	1.5774E+14	3.2882E+13	0.9077548	0.0201111

B 燃料溶解溶液試料の測定データ

表 B-1：燃料溶解溶液の分取・希釈データ

試料名	一次希釈		二次希釈		希釈倍率
	分取	希釈	分取	希釈	
2F1ZN2c2	1.0814	58.4007	0.5658	11.2594	1074.7
2F1ZN2c3	1.1753	58.3867	0.5676	11.2728	986.6
2F1ZN3c2	1.1739	57.6345	0.5696	11.1741	963.1
2F1ZN3c3	1.1685	58.5754	0.5686	11.1584	983.7
2F1ZN3a9	1.1636	58.1027	0.5686	11.2304	986.2

表 B-2：試料中 ^{238}Pu の放射能測定結果

試料名	放射能比 $^{238}\text{Pu}/(^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu})$
2F1ZN2c2	2.4520
2F1ZN2c3	3.3482
2F1ZN3c2	5.9239
2F1ZN3c3	8.1127
2F1ZN3a9	6.3257

表 B-3： α 線スペクトロメトリーを併用した Pu の同位体組成測定結果

(単位：原子百分率)

試料名	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	^{238}Pu
2F1ZN2c2	62.731	25.047	7.050	3.792	1.38
2F1ZN2c3	62.634	24.507	7.143	3.855	1.86
2F1ZN3c2	42.290	32.030	8.898	13.333	3.45
2F1ZN3c3	41.498	31.898	8.770	13.147	4.68
2F1ZN3a9	36.971	30.207	8.136	21.280	3.41

表 B-4 : 燃料溶解溶液中の U,Pu 及び Nd の同位体組成分析結果
(単位 : 原子百分率)

試料名	2F1ZN2c2	2F1ZN2c3	2F1ZN3c2	2F1ZN3c3	2F1ZN3a9
²³⁴ U	0.01789	0.0329	0.0141	0.0246	0.0077
±	0.00007	0.0001	0.0002	0.0002	0.0002
²³⁵ U	1.1220	1.7429	0.2320	0.3689	0.0219
±	0.0008	0.0005	0.0003	0.0003	0.0002
²³⁶ U	0.3805	0.62693	0.4799	0.7900	0.2916
±	0.0004	0.00002	0.0001	0.0002	0.0001
²³⁸ U	98.4796	97.5973	99.2741	98.8164	99.6787
±	0.0008	0.0005	0.0004	0.0004	0.0003
²³⁸ Pu [※]	1.381	1.86	3.45	4.68	3.41
±	0.008	0.01	0.02	0.03	0.02
²³⁹ Pu	62.7305	62.634	42.290	41.498	36.9711
±	0.0008	0.001	0.003	0.005	0.0007
²⁴⁰ Pu	25.047	24.5073	32.030	31.898	30.2074
±	0.001	0.0008	0.004	0.007	0.0006
²⁴¹ Pu	7.0503	7.143	8.898	8.77	8.136
±	0.0005	0.001	0.004	0.01	0.002
²⁴² Pu	3.7915	3.8550	13.333	13.147	21.2796
±	0.0007	0.0007	0.004	0.003	0.0008
¹⁴² Nd	1.639	0.623	1.1173	1.088	1.655
±	0.003	0.003	0.0003	0.001	0.002
¹⁴³ Nd	21.002	21.210	13.5747	13.2774	8.8781
±	0.005	0.002	0.0008	0.0008	0.0005
¹⁴⁴ Nd	30.748	31.879	37.724	38.747	41.187
±	0.004	0.002	0.001	0.002	0.002
¹⁴⁵ Nd	16.540	16.760	15.007	14.895	13.6618
±	0.004	0.002	0.001	0.001	0.0009
¹⁴⁶ Nd	16.799	16.789	18.682	18.740	20.038
±	0.008	0.003	0.002	0.003	0.002
¹⁴⁸ Nd	8.868	8.730	9.211	8.933	9.522
±	0.007	0.003	0.002	0.002	0.002
¹⁵⁰ Nd	4.404	4.010	4.684	4.320	5.059
±	0.005	0.002	0.001	0.001	0.001

※ : ²³⁸Pu については、²³⁸U による影響を考慮し、α 線測定の結果を用いた。
²³⁸Pu の±は、α 線測定誤差を 0.5%、質量分析法による同位体比測定誤差を 0.1%とし、統計的な誤差伝播の計算により算出した。
Pu の同位体組成は、表 B-3 の結果に ²⁴¹Pu 及び ²⁴²Pu を加え、百分率したものである。
各±は、質量分析法による同位体比測定結果の各標準偏差に基づき、統計的な誤差伝播の計算により算出した。

表 B-5 : 二次希釈試料分取量とスパイク添加量

試料名	試料分取量(g)	添加量(g)
2F1ZN2c2	1.1070	1.1496
2F1ZN2c3	1.1060	1.1481
2F1ZN3c2	1.1069	1.1492
2F1ZN3c3	1.1071	1.1495
2F1ZN3a9	1.1068	1.1517

原子数の算出には次の式を用いた。

$$\text{原子数} = \frac{\text{Rm/s} \times \text{Sps} - \text{Spm}}{\text{Abm} - \text{Rm/s} \times \text{Abs}}$$

Rm/s: スパイク添加後の $^{238}\text{U}/^{233}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}/^{242}\text{Pu}$ 、 $^{148}\text{Nd}/^{150}\text{Nd}$ 原子数比

Sps: 添加した濃縮同位体の量 (原子数)、 ^{233}U 、 ^{242}Pu 、 ^{150}Nd 量

Spm: 添加した濃縮同位体の量 (原子数)、 ^{238}U 、 ^{239}Pu 、 ^{148}Nd 量

Abm: 試料中の同位体の比、 $^{238}\text{U}/\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}/\text{Pu}$ 、 $^{148}\text{Nd}/\text{Nd}$

Abs: 試料中の同位体の比、 $^{233}\text{U}/\text{U}$ 、 $^{242}\text{Pu}/\text{Pu}$ 、 $^{150}\text{Nd}/\text{Nd}$

表 B-6 : 添加したスパイク中の U、Pu 及び Nd の原子数

(単位: 原子数)

試料名	U	^{233}U Sps	^{238}U Spm
2F1ZN2c2	5.7221E+15*	5.6230E+15	4.9433E+13
2F1ZN2c3	5.7146E+15	5.6156E+15	4.9369E+13
2F1ZN3c2	5.7201E+15	5.6210E+15	4.9416E+13
2F1ZN3c3	5.7216E+15	5.6225E+15	4.9429E+13
2F1ZN3a9	5.7325E+15	5.6332E+15	4.9523E+13
試料名	Pu	^{242}Pu Sps	^{239}Pu Spm
2F1ZN2c2	1.4402E+14	1.4382E+14	4.2006E+10
2F1ZN2c3	1.4383E+14	1.4364E+14	4.1952E+10
2F1ZN3c2	1.4397E+14	1.4377E+14	4.1992E+10
2F1ZN3c3	1.4401E+14	1.4381E+14	4.2003E+10
2F1ZN3a9	1.4428E+14	1.4409E+14	4.2083E+10
試料名	Nd	^{150}Nd Sps	^{148}Nd Spm
2F1ZN2c2	9.6421E+13	8.7527E+13	1.1428E+12
2F1ZN2c3	9.6295E+13	8.7412E+13	1.1413E+12
2F1ZN3c2	9.6388E+13	8.7496E+13	1.1424E+12
2F1ZN3c3	9.6413E+13	8.7519E+13	1.1427E+12
2F1ZN3a9	9.6597E+13	8.7687E+13	1.1449E+12

*5.7221×10¹⁵を示す。

表 B-7： 二次希釈試料の U、Pu 及び Nd 同位体組成（測定値）
（単位：原子数比）

試料名	$^{233}\text{U}/\text{U}$ Abs	$^{238}\text{U}/\text{U}$ Abm
2F1ZN2c2	0	0.9848
2F1ZN2c3	0	0.9760
2F1ZN3c2	0	0.9927
2F1ZN3c3	0	0.9882
2F1ZN3a9	0	0.9968
試料名	$^{242}\text{Pu}/\text{Pu}$ Abs	$^{239}\text{Pu}/\text{Pu}$ Abm
2F1ZN2c2	0.0379	0.6273
2F1ZN2c3	0.0386	0.6263
2F1ZN3c2	0.1333	0.4229
2F1ZN3c3	0.1315	0.4150
2F1ZN3a9	0.2128	0.3697
試料名	$^{150}\text{Nd}/\text{Nd}$ Abs	$^{148}\text{Nd}/\text{Nd}$ Abm
2F1ZN2c2	0.0440	0.0887
2F1ZN2c3	0.0401	0.0873
2F1ZN3c2	0.0468	0.0921
2F1ZN3c3	0.0432	0.0893
2F1ZN3a9	0.0506	0.0952

表 B-8： 混合スパイク添加後の二次希釈試料の同位体比測定結果
（単位：原子数比）

試料名	2F1ZN2c2	2F1ZN2c3	2F1ZN3c2	2F1ZN3c3	2F1ZN3a9
$^{233}\text{U}/^{238}\text{U}$ ±	0.410984 0.000042	0.31750 0.00010	0.34736 0.00010	0.383628 0.000094	0.264855 0.000048
$^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ±	1.82016 0.00011	1.364439 0.000042	2.18793 0.00021	2.36969 0.00020	2.22127 0.00017
$^{148}\text{Nd}/^{150}\text{Nd}$ ±	0.089986 0.000017	0.149877 0.000033	0.186518 0.000034	0.211642 0.000024	0.266697 0.000058

各±は、質量分析法による同位体比測定結果（3回繰り返し測定）の標準偏差を示す。

表 B-9 : 二次希釈試料の U、Pu 及び Nd 原子数の算出結果

試料名	U		
	Rm/s	原子数	誤差 (%)
2F1ZN2c2	2.43319	1.3843E+16*	0.101
2F1ZN2c3	3.14965	1.8072E+16	0.105
2F1ZN3c2	2.87884	1.6251E+16	0.104
2F1ZN3c3	2.60669	1.4782E+16	0.103
2F1ZN3a9	3.77565	2.1288E+16	0.102
試料名	Pu		
	Rm/s	原子数	誤差 (%)
2F1ZN2c2	0.54940	1.3022E+14	0.060
2F1ZN2c3	0.73290	1.7594E+14	0.060
2F1ZN3c2	0.45705	1.8143E+14	0.062
2F1ZN3c3	0.42200	1.6870E+14	0.062
2F1ZN3a9	0.45019	2.3666E+14	0.061
試料名	Nd		
	Rm/s	原子数	誤差 (%)
2F1ZN2c2	0.08999	7.9480E+13	0.125
2F1ZN2c3	0.14988	1.4713E+14	0.103
2F1ZN3c2	0.18652	1.8203E+14	0.096
2F1ZN3c3	0.21164	2.1674E+14	0.096
2F1ZN3a9	0.26670	2.7214E+14	0.096

*1.3843×10¹⁶ を示す。

表 B-10 : 二次希釈試料のウラン濃度

試料名	二次希釈試料 分取量(g) ※1	分取試料中の U 原子数※2	二次希釈試料の U 濃度 (原子数/g 溶液)
2F1ZN2c2	1.1070	1.3843E+16*	1.250E+16
2F1ZN2c3	1.1060	1.8072E+16	1.634E+16
2F1ZN3c2	1.1069	1.6251E+16	1.468E+16
2F1ZN3c3	1.1071	1.4782E+16	1.335E+16
2F1ZN3a9	1.1068	2.1288E+16	1.923E+16

※1 : 表 B-5 参照

※2 : 表 B-9 参照

*1.3843×10¹⁶ を示す。

This is a blank page.

国際単位系 (SI)

表1. SI基本単位

基本量	SI基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質の量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立法メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の)	1
比透磁率 ^(b)	(数字の)	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI組立単位		
	名称	記号	他のSI単位による表し方
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(e)	1 ^(b)
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s
電荷, 電気量	クーロン	C	s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C	K
光照射量	ルーメン	lm	cd sr ^(e)
放射線核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq	s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg
酸素活性化	カタール	kat	s ⁻¹ mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
 (b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。
 (c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
 (d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
 (e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
 (f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
 (g) 単位シーベルト (PV.2002,70,205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI組立単位	
	名称	記号
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s
表面張力	ニュートンメートル	N m
角加速度	ニュートン毎メートル	N/m
角加減速	ラジアン毎秒	rad/s
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m ³
電荷密度	ジュール毎立方メートル	J/m ³
電表面電位	ジュール毎立方メートル	J/m ³
電束密度, 電気変位	ジュール毎立方メートル	J/m ³
誘電率	ジュール毎立方メートル	J/m ³
透磁率	ジュール毎立方メートル	J/m ³
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎キログラム	J/kg
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s
放射線強度	ワット毎ステラジアン	W/sr
放射線輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m ³

表5. SI接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ²⁴	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1 L=11=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1 MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322 Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1 nm=100 pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852 m
バイン	b	1 b=100 fm ² =(10 ¹² cm) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600) m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的関係は、 対数量の定義に依存。
ベール	B	
デジベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI単位で表される数値
エル	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1 Pa s
ストークス	St	1 St=1 cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1 cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フオト	ph	1 ph=1 cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1 cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1 Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(c)	Oe	1 Oe _e =(10 ³ /4π) A m ⁻¹

(c) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「△」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1 cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1 メートル系カラット=200 mg=2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858 J (「15°C」カロリ), 4.1868 J (「IT」カロリ), 4.184 J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1 μm=10 ⁻⁶ m

