

JAERI-M  
89-224

JPDR生体遮蔽コンクリート、イオン  
交換樹脂及び燃料貯蔵プール水中の  
長寿命核種の定量

1990年1月

武石 秀世・鈴木 敏夫・磯 修一・河野 信昭  
星野 昭・米沢伸四郎・畠山 瞳夫・小森 卓二\*

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）  
あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城  
県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department  
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun,  
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1990

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 日立高速印刷株式会社

J P D R 生体遮蔽コンクリート、イオン交換樹脂及び  
燃料貯蔵プール水中の長寿命核種の定量

日本原子力研究所化学部分析センター

武石 秀世・鈴木 敏夫・磯 修一・河野 信昭

星野 昭・米沢仲四郎・畠山 瞳夫<sup>+</sup>・小森 卓二\*

(1989年12月7日受理)

原子炉の解体技術の確立に際して、原子炉構造材料の内蔵放射能を評価することは極めて重要であるとの見地から、評価において特に問題となる<sup>3</sup>H, <sup>14</sup>C, <sup>239</sup>Pu, <sup>60</sup>Co, <sup>134</sup>Cs, <sup>152</sup>Eu, <sup>154</sup>Eu等の長寿命核種の定量法を開発した。さらに、これらの方針をJ P D R の生体遮蔽コンクリート、冷却水精製用イオン交換樹脂及び燃料棒貯蔵用プール水の分析に適用し、その実存量を測定した。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

- 動力試験炉部

\* 放射線照射振興協会

Determination of the Long-lived Nuclides in Biological  
Shielding Concrete, Ion Exchange Resin and Fuel Storage  
Pool Water of JPDR

Hideyo TAKEISHI, Toshio SUZUKI, Shuichi ISO  
Nobuaki KOHNO, Akira HOSHINO, Chushiro YONEZAWA  
Mutuo HATAKEYAMA<sup>+</sup> and Takuji KOMORI<sup>\*</sup>

Department of Chemistry  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received December 7, 1989)

In relation to the planning and implementation of the decommissioning programs of nuclear facilities, field work programs and treatment/disposal programs of the radioactive wastes for the establishment of the reactor decommissioning technology, it is essentially important to obtain the basic data for estimating the radionuclide inventory of nuclear facilities. For the estimation of radionuclide inventory, it is necessary to determine especially the long-lived nuclides, such as  $^{14}\text{C}$ ,  $^3\text{H}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$  and  $^{239}\text{Pu}$ , among the radionuclides generated in the reactor material during reactor operation. Among these nuclides,  $\gamma$ -ray emitting nuclides can be measured by the nondestructive analyses, and on the other hand,  $\alpha$ - and  $\beta$ -ray emitting ones are necessary to be measured by the destructive analyses including individually chemical separation.

At the Decommissioning Waste Managing Division, Department of JPDR, the destructive analyses for  $\gamma$ -ray emitting nuclides have been carried out for the samples taken out from the reactor materials of JPDR, but the analyses for  $\alpha$ - and  $\beta$ -ray emitting nuclides have not been done because the

---

+ Department of JPDR

\* Irradiation Development Association

methods for these nuclides had not yet been developed. Since the measurements of these  $\alpha$ - and  $\beta$ -ray emitting nuclides are indispensable for the comprehensive estimation of radionuclide inventory, the analytical methods for these nuclides were developed at the Analytical Chemistry Laboratory, Department of Chemistry, and the methods were applied to the analysis of the real amount of the long-lived nuclides in the biological shielding concrete, the ion exchange resin for the purification of the cooling water, and the pool water for the storage of nuclear fuel. The procedures and the results are described in the report.

Keywords : JPDR Biological Shielding Concrete, Ion Exchange Resin, Fuel Storage Pool Water, Long-lived Nuclide, Analytical Methods, Decommissioning

## 目 次

1. まえがき .....	1
2. 分析用試料 .....	1
2.1 生体遮蔽コンクリート .....	1
2.2 冷却水精製用イオン交換樹脂 .....	2
2.3 燃料棒貯蔵用プール水 .....	2
3. 生体遮蔽コンクリート中の長寿命核種の定量 .....	2
3.1 $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ の定量 .....	2
3.2 $^{239}\text{Pu}$ の定量 .....	5
3.3 $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{152}\text{Eu}$ 等の定量 .....	8
4. 冷却水精製用イオン交換樹脂中の長寿命核種の定量 .....	10
4.1 $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ の定量 .....	10
4.2 プルトニウムの定量 .....	11
4.3 $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{152}\text{Eu}$ 等の定量 .....	12
5. 燃料棒貯蔵用プール水中の長寿命核種の定量 .....	13
5.1 $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ の定量 .....	13
5.2 プルトニウムの定量 .....	14
6. むすび .....	15
参考文献 .....	16

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Sample .....	1
2.1 Biological shielding concrete .....	1
2.2 Ion exchange resin .....	2
2.3 Spent fuel storage pool water .....	2
3. Determination of the long-lived nuclides in biological shielding concrete .....	2
3.1 $^3\text{H}$ and $^{14}\text{C}$ .....	2
3.2 $^{239}\text{Pu}$ .....	5
3.3 $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{152}\text{Eu}$ , etc. .....	8
4. Determination of the long-lived nuclides in ion exchange resin .....	10
4.1 $^3\text{H}$ and $^{14}\text{C}$ .....	10
4.2 $^{239}\text{Pu}$ .....	11
4.3 $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{152}\text{Eu}$ , etc. .....	12
5. Determination of the long-lived nuclides in spent fuel storage pool water .....	13
5.1 $^3\text{H}$ and $^{14}\text{C}$ .....	13
5.2 $^{239}\text{Pu}$ .....	14
6. Conclusion .....	15
Reference .....	16

## List of Tables

Table 1 Analytical results of $^{14}\text{C}$ in biological shielding concrete samples .....	17
Table 2 Analytical results of $^3\text{H}$ in biological shielding concrete samples .....	17
Table 3 Standard deviation of analytical results of $^3\text{H}$ and $^{14}\text{C}$ in biological shielding concrete sample .....	18
Table 4 Analytical results of $^{239}\text{Pu}$ in biological shielding concrete samples .....	19
Table 5 Energy and emission probability of $\gamma$ -ray, in standard samples ....	18
Table 6 Analytical results (I) of $^{60}\text{Co}$ , $^{134}\text{Cs}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{152}\text{Eu}$ and $^{154}\text{Eu}$ in biological shielding concrete samples .....	20
Table 7 Analytical results (II) of $^{60}\text{Co}$ , $^{134}\text{Cs}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{152}\text{Eu}$ and $^{154}\text{Eu}$ in biological shielding concrete samples .....	21
Table 8 Analytical results of $^3\text{H}$ and $^{14}\text{C}$ in ion exchange resin sample ...	20
Table 9 Analytical results of Pu in ion exchange resin sample .....	22
Table 10 Analytical results of Pu in spent fuel storage pool water sample .....	22

## List of Figures

Fig. 1 Sampling position of biological shielding concrete of JPDR .....	23
Fig. 2 Apparatus for extracting $^3\text{H}$ and $^{14}\text{C}$ in biological shielding concrete sample by the high frequency induction heating method ..	24
Fig. 3 Amount of carbon extracted from a concrete sample by the electric resistance heating method .....	25
Fig. 4 Amount of carbon extracted from a concrete sample by the high frequency induction heating method .....	26
Fig. 5 Apparatus for extracting $^3\text{H}$ and $^{14}\text{C}$ in biological concrete sample by the strong phosphoric acid decomposition method .....	27
Fig. 6 Amount of carbon extracted from a concrete sample by the strong phosphoric acid decomposition method .....	28
Fig. 7 Amount of $\text{H}_2\text{O}/\text{H}_2$ extracted from biological shielding concrete sample .....	29
Fig. 8 Liquid scintillation spectra of non quenching $^3\text{H}$ and $^{14}\text{C}$ .....	30
Fig. 9 Liquid scintillation spectra of extracted gases from biological shielding concrete sample by the strong phosphoric acid decomposition method .....	31
Fig. 10 Liquid Scintillation spectra of extracted gases from biological shielding concrete sample by the high frequency induction heating method .....	32
Fig. 11 Liquid scintillation spectra of extracted $^3\text{H}$ and $^{14}\text{C}$ from biological shielding concrete sample-same quenching level of standard samples to biological shielding concrete sample .....	33
Fig. 12 Procedure for determination of $^{239}\text{Pu}$ in biological shielding concrete sample .....	34
Fig. 13 $\alpha$ -ray spectra of $^{238}\text{Pu}$ spiked biological shielding concrete sample .....	35
Fig. 14 $\alpha$ -ray spectra of unspiked biological shielding concrete sample .....	36
Fig. 15 Relation between detection efficiency and $\gamma$ -ray energy .....	37
Fig. 16 Apparatus for extracting $^3\text{H}$ and $^{14}\text{C}$ in ion exchange resin sample by the combustion method .....	38
Fig. 17 Thermal analysis of ion exchange resin sample .....	39
Fig. 18 Procedure for determination of $^{239}\text{Pu}$ and $^{240}\text{Pu}$ in ion exchange resin sample .....	40
Fig. 19 $\alpha$ -ray spectra of $^{238}\text{Pu}$ spiked ion exchange resin sample .....	41
Fig. 20 $\alpha$ -ray spectra of unspiked ion exchange resin sample .....	42

Fig. 21 Apparatus for purificating spent fuel storage pool water sample .....	43
Fig. 22 Acid decomposition of carbonate ion in water .....	44
Fig. 23 Procedure for determination of $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ in spent fuel storage pool water sample .....	45
Fig. 24 $\alpha$ -ray spectra of spent fuel storage pool water sample .....	46

## 1. まえがき

原子炉解体技術を確立するためには、原子炉施設の解体計画、現場作業計画及び放射性廃棄物処理・処分計画の立案ならびにその実施に当たって、原子炉施設の内蔵放射能量を評価するに必要な基礎データを取得しておく必要がある。内蔵放射能量の評価では、原子炉の運転に伴って、原子炉構造材中に生成する核種のうち特に長寿命核種が重要であり、その核種として<sup>14</sup>C, <sup>3</sup>H, <sup>60</sup>Co, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>152</sup>Eu, <sup>154</sup>Eu 及び<sup>239</sup>Pu 等が考えられている。これらのうち $\gamma$ 線を放出する放射性核種は、非破壊法で定量することが可能であるが、 $\alpha$ 線、 $\beta$ 線放出核種については、破壊法を適用し化学分離後各核種の放射能を測定しなければならない。

動力試験炉部解体廃棄物管理室では、これまでに原子炉構造材等から試料を採取して $\gamma$ 線放出核種の測定を実施したことはあったが、 $\alpha$ 線及び $\beta$ 線放出核種については方法が確立していなかったため、断片的に測定は行われていたものの総合的な測定結果の評価はなかった。しかし、内蔵放射能量の評価には $\alpha$ 線及び $\beta$ 線放出核種の測定を欠かすことができないため、化学部分析センターでは方法の開発と J P D R の生体遮蔽コンクリート、冷却水精製用イオン交換樹脂及び燃料棒貯蔵用プール水中の長寿命核種の実存量を測定した。本報告はこれらの記録である。

## 2. 分析用試料

### 2.1 生体遮蔽コンクリート

D-76：昭和56年度に炉心の中心より上部350mmの位置でコアボーリングし(Fig.1参照)，取り出してあつた80φ×3000mmのコアのライナ面より10mmの所から厚さ20mmの円板を切出した。これを100～200メッシュに粉碎し，40gを採取して分析用試料とした。

D-74：上記コアの42mmの所から厚さ10mmの円板を切出した。これを100～200メッシュに粉碎して40gを採取し，分析用試料とした。

2H-2：昭和62年度に炉心の中心より上部900mmの位置でコアボーリングし(Fig.1参照)，取り出してあつた80φ×3000mmのコアのライナ面より120mmの所から厚さ10mmの円板を切子した。これを100～200メッシュに粉碎し，40gを採取して分析用試料とした。

## 1. まえがき

原子炉解体技術を確立するためには、原子炉施設の解体計画、現場作業計画及び放射性廃棄物処理・処分計画の立案ならびにその実施に当たって、原子炉施設の内蔵放射能量を評価するに必要な基礎データを取得しておく必要がある。内蔵放射能量の評価では、原子炉の運転に伴って、原子炉構造材中に生成する核種のうち特に長寿命核種が重要であり、その核種として<sup>14</sup>C, <sup>3</sup>H, <sup>60</sup>Co, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>152</sup>Eu, <sup>154</sup>Eu 及び<sup>239</sup>Pu 等が考えられている。これらのうち $\gamma$ 線を放出する放射性核種は、非破壊法で定量することが可能であるが、 $\alpha$ 線、 $\beta$ 線放出核種については、破壊法を適用し化学分離後各核種の放射能を測定しなければならない。

動力試験炉部解体廃棄物管理室では、これまでに原子炉構造材等から試料を採取して $\gamma$ 線放出核種の測定を実施したことはあったが、 $\alpha$ 線及び $\beta$ 線放出核種については方法が確立していなかったため、断片的に測定は行われていたものの総合的な測定結果の評価はなかった。しかし、内蔵放射能量の評価には $\alpha$ 線及び $\beta$ 線放出核種の測定を欠かすことができないため、化学部分析センターでは方法の開発と J P D R の生体遮蔽コンクリート、冷却水精製用イオン交換樹脂及び燃料棒貯蔵用プール水中の長寿命核種の実存量を測定した。本報告はこれらの記録である。

## 2. 分析用試料

### 2.1 生体遮蔽コンクリート

D-76：昭和56年度に炉心の中心より上部350mmの位置でコアボーリングし(Fig.1参照)，取り出してあった80φ×3000mmのコアのライナ面より10mmの所から厚さ20mmの円板を切出した。これを100～200メッシュに粉碎し，40gを採取して分析用試料とした。

D-74：上記コアの42mmの所から厚さ10mmの円板を切出した。これを100～200メッシュに粉碎して40gを採取し，分析用試料とした。

2H-2：昭和62年度に炉心の中心より上部900mmの位置でコアボーリングし(Fig.1参照)，取り出してあった80φ×3000mmのコアのライナ面より120mmの所から厚さ10mmの円板を切子した。これを100～200メッシュに粉碎し，40gを採取して分析用試料とした。

## 2.2 冷却水精製用イオン交換樹脂

一次冷却水精製用のイオン交換樹脂で、陰イオン交換樹脂及び陽イオン交換樹脂が2対1から成る。混合樹脂5 kgを採取して分析用試料とした。

## 2.3 燃料棒貯蔵用プール水

燃料棒貯蔵用プール水3 ℥を採取して分析用試料とした。

# 3. 生体遮蔽コンクリート中の長寿命核種の定量

## 3.1 $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ の定量

### 3.1.1 定量方法

#### (1) 方法の概要

試料を酸素気流中で高周波誘導加熱によって約1600°Cに加熱して $^3\text{H}$ を水の形で、また $^{14}\text{C}$ 二酸化炭素の形で抽出し、モノエタノールアミン液に捕集する。この一定量を分取し、エチレングリコール・モノメチルエーテル及び液体シンチレータとしてクリアゾルIを加え、液体シンチレーションカウンターで放射能を測定する。

#### (2) 適用

生体遮蔽コンクリート中の $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ の測定に適用できる。検出限界は、 $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ についてそれぞれおよそ0.5及び0.3 Bqである。ただし、それぞれの核種の検出限界値は、 $^3\text{H}$ あるいは $^{14}\text{C}$ の量に依存する。

#### (3) 主な試薬、器具及び装置

- 1) モノエタノールアミン： $^3\text{H}_2\text{O}$ 及び $^{14}\text{CO}_2$ の吸収剤。
- 2) クリアゾルI液：液体シンチレータ。
- 3) エチレングリコール・モノメチルエーテル：液体シンチレータの可溶化剤。
- 4) 鉄及び銅：高周波加熱用の助燃剤。
- 5) すずカプセル：高周波加熱時に試料の飛散を防ぐための試料封入用。
- 6) 吸収瓶：共栓付メスシリンドー(50ml)。
- 7) バイアル：20ml、放射能測定容器。
- 8) 酸素ガス：キャリヤーガス。
- 9)  $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ 抽出装置 Fig.2 参照。高周波誘導加熱炉(出力1.5kw)
- 10) 液体シンチレーションカウンター：Packard Tri-Carb 2250CA型。

#### (4) 定量操作

- 1) 使用する装置をFig.2に示す。試料約0.2gをすずカプセルに秤り取り、磁器るつぼへ入れる。助燃剤として鉄1.2g及び銅0.6gを加え、これを高周波誘導加熱炉に設置

## 2.2 冷却水精製用イオン交換樹脂

一次冷却水精製用のイオン交換樹脂で、陰イオン交換樹脂及び陽イオン交換樹脂が2対1から成る。混合樹脂5 kgを採取して分析用試料とした。

## 2.3 燃料棒貯蔵用プール水

燃料棒貯蔵用プール水3 ℥を採取して分析用試料とした。

# 3. 生体遮蔽コンクリート中の長寿命核種の定量

## 3.1 $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ の定量

### 3.1.1 定量方法

#### (1) 方法の概要

試料を酸素気流中で高周波誘導加熱によって約1600°Cに加熱して $^3\text{H}$ を水の形で、また $^{14}\text{C}$ 二酸化炭素の形で抽出し、モノエタノールアミン液に捕集する。この一定量を分取し、エチレングリコール・モノメチルエーテル及び液体シンチレータとしてクリアゾルⅠを加え、液体シンチレーションカウンターで放射能を測定する。

#### (2) 適用

生体遮蔽コンクリート中の $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ の測定に適用できる。検出限界は、 $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ についてそれぞれおよそ0.5及び0.3 Bqである。ただし、それぞれの核種の検出限界値は、 $^3\text{H}$ あるいは $^{14}\text{C}$ の量に依存する。

#### (3) 主な試薬、器具及び装置

- 1) モノエタノールアミン： $^3\text{H}_2\text{O}$ 及び $^{14}\text{CO}_2$ の吸収剤。
- 2) クリアゾルⅠ液：液体シンチレータ。
- 3) エチレングリコール・モノメチルエーテル：液体シンチレータの可溶化剤。
- 4) 鉄及び銅：高周波加熱用の助燃剤。
- 5) すずカプセル：高周波加熱時に試料の飛散を防ぐための試料封入用。
- 6) 吸収瓶：共栓付メスシリンドー(50 ml)。
- 7) バイアル：20 ml, 放射能測定容器。
- 8) 酸素ガス：キャリヤーガス。
- 9)  $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ 抽出装置 Fig. 2 参照。高周波誘導加熱炉(出力 1.5 kw)
- 10) 液体シンチレーションカウンター：Packard Tri-Carb 2250CA型。

#### (4) 定量操作

- 1) 使用する装置を Fig. 2 に示す。試料約 0.2 g をすずカプセルに秤り取り、磁器るつぼへ入れる。助燃剤として鉄 1.2 g 及び銅 0.6 g を加え、これを高周波誘導加熱炉に設置

する。

- 2) モノエタノールアミン 10ml を入れた吸収瓶を装置へ取り付け、キャリヤーガスの流量を 300 ml/min に調節する。
- 3) 高周波誘導加熱炉を作動させ、6 分間加熱する。その後 60 分間放置して抽出される  $^{14}\text{C}$  及び  $^3\text{H}$  をモノエタノールアミンへ捕集する。
- 4) 吸収液 2ml をバイアルに分散し、これに、エチレングリコール・モノメチルエーテル 6ml とクリアゾル I 液 7ml を加え、よく混ぜ合せる。
- 5) バアイアルを液体シンチレーションカウンターの試料ホルダーへ設置し、30 分間その放射能を測定する。

### 3. 1.2 実験及び結果

#### (1) 炭素

##### 1) 乾式酸化法による炭素の抽出

酸素雰囲気中、所定の温度に設定した抵抗加熱炉で検討用試料を加熱し、炭素定量装置（クーロマチック C）を用いて抽出されてくる炭素を連続して測定して炭素の抽出状態を調べた。加熱温度 600, 800, 1000°C における炭素抽出曲線を Fig. 3 に示す。600°C では、10 分間以上加熱しても炭素の抽出が続行するが、800°C 以上で加熱すると 6 分間程度で炭素は一定値を示すようになり、抽出が完了したことがわかる。

炭素の抽出状態を調べるために、低温における温度設定が容易な抵抗加熱炉が適しているが、この実験結果から炭素を抽出するには、800°C 以上に加熱する必要があることが分ったので、以後の実験には高周波誘導加熱炉を用いることにした。この炉は、500 ~ 1000°C の範囲で所定の温度を設定することは困難であるが、助燃剤を使用することによりコンクリート試料を容易に 1000°C 以上に加熱できる。高周波誘導加熱炉による炭素抽出曲線を Fig. 4 に示す。加熱時間 3, 6 分間では炭素の抽出に差は認められなかった。また、実試料についても加熱時間は 6 分間で十分であることがわかった。また、炭素だけを抽出するには、抽出時間を 10 分間にすればよいが、水素の抽出時間は 30 分間であるため同時抽出する際の抽出時間は安全を見込んで 60 分間とすることにした。

##### 2) 湿式分解法による炭素の抽出

湿式分解法を適用すると、炭素の存在状態を知ることができるので、熱強りん酸及び熱強りん酸 - よう素酸カリウム分解法によって炭素抽出状態を調べた。装置を Fig. 5 に示す。この方法によると、熱強りん酸では吸着二酸化炭素及び炭酸塩状炭素が、また熱強りん酸 - よう素酸カリウムではこれらの炭素のほかに単体炭素も抽出される。湿式分解法による抽出曲線を Fig. 6 に示すが、両法による差異は認められなかった。この実験結果だけからは、検討用試料中の単体炭素の存在は確認できない。

##### 3) $^{14}\text{C}$ の定量結果

前述の予備検討の結果から、コンクリート試料からの炭素抽出のプロファイルが分ったので、乾式酸化法及び湿式分解法による  $^{14}\text{C}$  の定量を試みた。結果を Table 1 に示す。D-76 を除くと、乾式酸化法、熱強りん酸及び熱強りん酸 - よう素酸カリウム分解の結果はほぼ一致し

ているが、D-76の場合はりん酸分解の値が低値を示している。この結果は、D-76に単体炭素が存在していることを示唆しているが、その確認には更に詳細な検討が必要である。いずれにしても、コンクリート試料に種々の炭素抽出法を適用し、その結果を解析することによってコンクリート中の炭素存在状態に関する情報を得ることができると考える。

## (2) 水 素

### 1) 装置配管内面の水の吸着

乾式酸化法では、水素が水の形で抽出されるので、予め水の抽出時間と用いた装置の配管内面に於ける水の吸着を調べた。すずカプセルに水  $14.30 \mu\ell$  を採り、助燃剤として鉄 1.2g と銅 0.6 g を加え、高周波誘導加熱炉で加熱し、抽出されてくる水を水分定量装置で連続的に測定して水の抽出状態を調べた。結果を Fig. 7 に示す。キャリヤーガス流量  $300 \text{ ml}/\text{min}$  のとき、30分間での水の吸着は無視できることがわかった。

生体遮蔽コンクリート試料 (D-74) からの水の抽出曲線を Fig. 7 にあわせて示す。

### 2) $^3\text{H}$ 吸収用アミン液量

キャリヤーガスを  $300 \text{ ml}/\text{min}$  に調節し、 $^3\text{H}$  吸収用アミンを  $10 \text{ ml}$  入れた吸収瓶 2 本を直列に接続して60分間抽出ガスを吸収させた。1段目吸収瓶の  $^3\text{H}$  の放射能にたいして、2段目のそれは 0.1 % 程度であった。この結果から、実際の測定では吸収瓶を 1 本にすることにした。

### 3) $^3\text{H}$ の測定結果

乾式酸化法及び湿式分解法による水素の定量結果を Table 2 に示す。乾式酸化法と比較して湿式分解法の値が著しく低いことがわかる。湿式分解法で用いる熱強りん酸は、一種の脱水りん酸であるため、コンクリート試料を分解する際、水の形の水素は熱強りん酸と再結合するため水が定量的に抽出されないものと考えられる。従って、 $^3\text{H}$  の測定には湿式分解法が適用できない。

一方、水素はコアーボーリングあるいは試料の粉末化等の際、離脱することが考えられる。従って、試料の採取、保存、前処理法が定量結果に影響することに留意しなければならない。

## (3) 液体シンチレーション計測法による $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ の放射能測定

### 1) 測定方法

$^3\text{H}$  及び  $^{14}\text{C}$  は、それぞれ最大エネルギーが  $18.6$  及び  $156 \text{ keV}$  の  $\beta$  線だけを放出することから、その放射能測定には液体シンチレーション法が最も適している。 $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$  及びこれらの混合試料について、クエチングがない場合の液体シンチレーションスペクトルを Fig. 8 に示す。

$^3\text{H}$  及び  $^{14}\text{C}$  の  $\beta$  線の最大エネルギーは  $18.6$  及び  $156 \text{ keV}$  と離れているため  $12 \text{ keV}$  附近にディスクリミネーターレベルを設定することにより、これら 2 核種の同時測定ができる。ここで使用した装置の場合では、ディスクリミネーターを  $12.0 \text{ keV}$  に設定し、 $0 \sim 12.0$  及び  $12.0 \sim 156 \text{ keV}$  の 2 チャンネル（それぞれ A 及び B チャンネルとする）に分けて  $^3\text{H}$  及び  $^{14}\text{C}$  を同時に効率よく測定できるようになっている<sup>1)</sup>。しかし、A 及び B チャンネルを区切るディスクリミネーターレベル  $12.0 \text{ keV}$  は、 $^3\text{H}$  の最大エネルギー  $18.6 \text{ keV}$  より低いため、 $^3\text{H}$  及び  $^{14}\text{C}$  はそれぞれ両チャンネルで計測されることになる。従って両核種が混在する試料の

場合は、それぞれの核種の検出限界は、共存核種の存在量に依存することになる。

## 2) 液体シンチレーションスペクトル

湿式及び乾式法でモノエタノールアミンに捕集した<sup>3</sup>H 及び<sup>14</sup>C は、日本原子力研究所で放射線管理に使用している方法<sup>2)</sup>で測定試料を調製した。

生体遮蔽コンクリート試料 D-74 の抽出ガスの液体シンチレーションスペクトルを Fig.9, 10 に示す。放射能測定試料中には、<sup>3</sup>H 及び<sup>14</sup>C 吸収用のモノエタノールアミン、可溶化剤としてのエチレングリコール・モノメチルエーテルが存在していたため、クエチングによりスペクトルは低エネルギー側へシフトしている。比較のため、同じクエンチングレベルに調製した<sup>3</sup>H 及び<sup>14</sup>C の標準試料の液体シンチレーションスペクトルを Fig.11 に示す。Fig.10, 11 及び 12 から湿式及び乾式法で得られた測定試料中に<sup>3</sup>H 及び<sup>14</sup>C の両各種が存在することが分る。

## 3) 検出限界

<sup>3</sup>H 及び<sup>14</sup>C の検出限界値は、A 及び B チャンネルのバックグラウンド計数値の標準偏差の 3 倍 (3σ) とした。計数時間を 30 分間にしたときの A 及び B チャンネルのバックグラウンドは、それぞれ 86 及び 608 カウントであった。A チャンネルの<sup>3</sup>H の計数効率及び B チャンネル中の<sup>14</sup>C のそれは、それぞれ 14 及び 70% であることから、<sup>3</sup>H 及び<sup>14</sup>C の検出限界値はそれぞれ 0.1 及び 0.06 Bq となる。さらにこれを放射能測定用試料を調製する際の分取率 2 / 10 で補正すると、分析試料当たり 0.5 及び 0.3 Bq となる。

前述のように、A 及び B それぞれのチャンネルで、<sup>3</sup>H 及び<sup>14</sup>C 両核種の放射能が計測される。従って、それぞれの核種の実際の検出限界値は、共存する核種の放射能に影響されることになる。今回の試料の場合、<sup>3</sup>H と比較して<sup>14</sup>C は少なく、検出限界値に近いもののが多かった。このため、<sup>14</sup>C の場合には、各測定試料の B チャンネルの計数値の標準偏差を 3 倍 (3σ) した値を<sup>14</sup>C の計数効率で割った値を検出限界値とした。実試料について、測定値が検出限界値を上回った時はその値を、また限界値以下の場合には限界値を以って測定値とした。

## 4) 測定誤差

生体遮蔽コンクリート試料 D-74 について、測定用試料を 2 試料つくり、それぞれ 3 回ずつ計 6 回測定して標準偏差を求めた。結果を Table 3 に示す。<sup>3</sup>H は計数値が大きいので誤差も小さいが、<sup>14</sup>C の場合には、共存する<sup>3</sup>H が多く、さらに<sup>14</sup>C が検出限界値に近いため、その相対標準偏差は 25% と高い。

## 3.2 <sup>239</sup>Pu の定量

生体遮蔽コンクリート中のプルトニウムは、コンクリートの原料（砂、砂利、セメント等）中に存在する極微量の天然ウランが、中性子照射による<sup>238</sup>U(n, r)<sup>239</sup>U 反応で生成した<sup>239</sup>U がさらに β崩壊して生ずる<sup>239</sup>Pu である。従って他のプルトニウム同位体の存在は無視できる。

### 3.2.1 定量方法

#### (1) 方法の概略

トレーサーとして<sup>238</sup>Puを加えた試料を硝酸-フッ化水素酸で溶解し、原子価を調整したあと陰イオン交換樹脂を用いてプルトニウムを分離し、 $\alpha$ 線スペクトロメトリーによって測定する。

#### (2) 適用

生体遮蔽コンクリート中の<sup>239</sup>Puの測定に適用できる。検出下限は、 $0.005 \text{ Bq} (1 \times 10^{-7} \mu \text{Ci})$ である。

#### (3) 主な試薬、器具及び装置

- 1) 陰イオン交換樹脂：塩基性陰イオン交換樹脂ダイアイオン S A # 100, 100 ~ 200 メッシュ。4 M 硝酸及び6 M 塩酸を用いてコンデショニングを行う。
- 2) イオン交換カラム：硬質ガラス製，4φ × 80mm，ベット容量 1.0 ml。
- 3) タンタル円盤：放射能測定用，純度99%，24φ × 0.1 mm。
- 4) 検出器：シリコン表面障壁型検出器，ORTEC，13-100-100。
- 5) 波高分析器：4000 チャンネル波高分析器，ORTEC-7030。

#### (4) 定量操作

定量操作を Fig.12 にフローシートで示す。

### 3.2.2 実験及び結果

#### (1) 溶解法の比較

<sup>238</sup>Puを添加した模擬コンクリート試料1gを次の混酸を用いてホットプレート上、30分間沸騰状態で溶解した。

- I) 14M 硝酸 6ml - フッ化水素酸 6ml
- II) 12M 塩酸 6ml - フッ化水素酸 6ml
- III) 12M 塩酸 9ml - 14M 硝酸 3ml (王水)

混酸 I) ~ III) の溶解で残った固体物を遠心分離し、その乾燥重量を測った結果はそれぞれ 72, 175 及び 254 mg であった。

混酸 I) で溶解したときの不溶性固体物は、さらに14M硝酸6ml-フッ化水素酸6mlを加えて30分間加熱、次いで12M塩酸5mlを添加して15分間加熱するとほぼ完全に溶解できる。このときの溶液は、単に黒色微粒が浮遊しているだけであった。遠心分離(2500rpm)した黒色微粒物の乾燥重量は1.2mgであり、これをタンタル板に焼きつけてその $\alpha$ 放射能を測定した結果、黒色微粒物中の<sup>238</sup>Puは添加量の3%以下であることが分った。

混酸 II) の不溶性固体物は硝酸の添加で溶解できるが、必要な酸の量が多くなり溶解時間も長くなる。III)の場合には、フッ化水素酸の添加によって不溶性固体物を溶解できるが、けい素を揮散させる効果を考慮すると、はじめからフッ化水素酸を用いる方がよい。このほか、硝酸-フッ化水素酸-塩酸の混酸にほう酸(0.5g)を添加<sup>3)</sup>すると溶解が早くなることが知られているが、この方法を適用しても黒色微粒物は残留した。また、この溶液から陰イオン交換分離して得られるプルトニウムフラクションの蒸発残渣に約2mgのほう素が残留し、それが $\alpha$ スペクトルの分解能を低下させる。

一方、アルカリ融解法によつてもコンクリートを溶解でき、次の2法を検討した。

I) 炭酸ナトリウム 8 g<sup>4)</sup>

II) 炭酸ナトリウム 6 g - ほう酸<sup>5)</sup>

融剤 I) の場合には 950°C で融解できた、融成物は 6 M 塩酸 100 ml に溶解する。溶液中には珪酸成分と考えられる固体物が存在するが、他の異物には認められなかつた。II) の場合には 850°C で融解でき、融成物は 2 M 硝酸 200 ml に溶解するが、溶液中に珪酸成分がゲル状で存在した。いずれの場合にもその後の化学分離操作のためには、固体物の分離とともに蒸発濃縮が必要となる。このため、融解法は、酸溶解法と比較して操作時間が長くなる。

以上の検討結果から、コンクリートの溶解には、はじめ硝酸 - フッ化水素酸を用い、次いで塩酸を添加する酸溶解法が最も適していることがわかつた。

#### (2) プルトニウムの回収率

模擬コンクリート 1 g を Fig.12 に示した定量操作に従つて処理した結果、プルトニウムの回収率は 95 ± 7 % であった。定量操作の中で用いてゐる原子価調整法は、使用済燃料中のプルトニウムの分離で常用している方法であるが、コンクリート試料のように多量のアルミニウム、カルシウム、鉄等が存在する試料中の極微量プルトニウムに対しても適用できることがわかつた。

#### (3) 検出限界

試料量 1 g, 測定時間 200 ksec, 計数効率 5 %, 化学収率 95 %, <sup>238</sup>Pu トレーサー添加量 0.1 Bq 及びバックグラウンドを含む試薬プランクの <sup>239</sup>Pu 領域の計数値 20 カウントの条件で、<sup>239</sup>Pu の検出限界濃度は 0.005 Bq/g であった。

#### (4) 定量結果

生体遮蔽コンクリート試料 1 g に <sup>238</sup>Pu トレーサー 0.1 Bq を添加したスパイク試料及び非スパイク試料 0.5 g の 2 試料を定量操作に従つて分析した。得られた  $\alpha$  線スペクトルの一例を Fig.13, 14 に示す。非スパイク試料の場合には、<sup>239</sup>Pu 領域にのみピークがある。一方、<sup>238</sup>Pu 領域の計数値はバックグラウンドに等しく <sup>238</sup>Pu の存在は認められなかつた。この結果から、生体遮蔽コンクリート中のプルトニウムは、コンクリートに含まれている天然ウランの中性子照射で生成する <sup>239</sup>Pu だけであることがわかる。

このように、<sup>238</sup>Pu が存在しない試料の場合、添加した <sup>238</sup>Pu は単純に収率トレーサーとして挙動することになるので、<sup>239</sup>Pu 濃度はスパイク試料だけの測定値から、次式によって求めることができる。

$$C = S \cdot N_{m9} / N_{m8} / G$$

ただし、C : 生体遮蔽コンクリート中の <sup>239</sup>Pu 濃度 (Bq/g)

S : <sup>238</sup>Pu 添加量 (Bq)

$N_{m9}$  : スパイク試料の  $\alpha$  線スペクトルにおける <sup>239</sup>Pu 領域の計数値 (カウント)

$N_{m8}$  : スパイク試料の  $\alpha$  線スペクトルにおける <sup>238</sup>Pu 領域の計数値 (カウント)

G : 試料採取量 (g)

生体遮蔽コンクリート 3 種類の定量結果を Table 4 に示す。これらの結果は、動力試験炉部

解体廃棄物管理室の推定値  $0.18 \text{ Bq/cm}^3$  (試料密度を  $2.3 \text{ g/cm}^3$  とすると  $0.08 \text{ Bq/g}$ ) とほぼ一致している。

### 3.3 $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{152}\text{Eu}$ 等の定量

#### 3.3.1 測定方法

##### (1) 方法の概略

ポリエチレン袋に入れた粉末又は粒状試料について、 $^{152}\text{Eu}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  を基準線源とし、 $\gamma$  線スペクトロメトリーで定量する。

##### (2) 適用

生体遮蔽コンクリート試料中の  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$  などの  $\gamma$  線放出核種の測定に適用できる。

##### (3) 主な装置

- 1) Ge(Li) 検出器: ORTEC 製, 検出効率 約 18%, 横型
- 2) 波高分析器: SEIKO EG & G 製 7800 型, 4096 チャンネル
- 3) 低バックグラウンド遮蔽体: 東京遮蔽器製, 横型

##### (4) 測定操作

- 1) 粉末状コンクリート試料  $0.3 \sim 0.7 \text{ g}$  をはかりとり、ポリエチレン袋 ( $15 \times 30 \text{ mm}$ ) に封入する。その試料面積は、およそ  $4.5 \text{ cm}^2$  である。
- 2)  $\gamma$  線の自己吸収を小さくするため、測定試料はできるだけ平坦にして粘着テープで  $2 \text{ mm}$  のアクリル樹脂板に固定する。試料の中心と検出器との距離は  $100 \text{ mm}$  とする。
- 3)  $\beta$  線吸収体として、試料と検出器の間に  $3 \text{ mm}$  のアクリル樹脂板を置く。
- 4) 計数時間は 1 試料あたり  $70,000 \sim 80,000$  秒とする。

#### 3.3.2 実験及び結果

##### (1) 標準線源の測定

標準線源として、薄いプラスティックフィルムに核種を封入してあるフランス L M R I 製の  $^{152}\text{Eu}$   $3.7 \times 10^4 \text{ Bq}$  ( $1 \mu\text{Ci}$ ) 及び  $^{137}\text{Cs}$   $3.7 \times 10^3$  ( $0.1 \mu\text{Ci}$ ) を用いた。標準線源の固定法及び線源と検出器との距離を試料測定の場合と同様にして測定した。 $^{152}\text{Eu}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  の主な  $\gamma$  線エネルギーならびに  $\gamma$  線放出率<sup>6)</sup> を Table 5 に示す。

通常、検出効率を求めるための  $^{152}\text{Eu}$  の測定時間は、用いる多重波高分析器の記憶容量 (今回の場合は  $10^6 - 1$ ) を最大ピークが越えない範囲内で最大に設定する。今回の場合は、 $20,000$  秒に設定した。また、 $^{137}\text{Cs}$  の場合は、 $10,000$  秒とした。

##### (2) $\gamma$ 線スペクトルのピーク面積の計算

7800 型 4096 チャンネル波高分析器の解析ソフトによる N E T 値 (バックグラウンドの減算補正值) を用いて、ピーク面積 (カウント数) とした。しかし、カウント数が小さい場合には、対象ピークの相当チャンネル範囲における全カウント数から、前後数チャンネルのバックグラウンドのカウント数から計算したピーク相当チャンネル範囲内のバックグラウンドのカウント数を

差し引いた値とした。

### (3) $\gamma$ 線検出効率曲線

今回の測定に使用した  $\gamma$  線検出効率曲線を Fig.15 に示す。  $\gamma$  線エネルギー(i)の検出効率(E<sub>i</sub>)は、次式で与えられる。

$$E_i = N_i / A_j \cdot P_{rij}$$

ただし、

$N_i$  : バックグラウンドを補正した  $\gamma$  線(i)のカウント数 (cps)

$A_j$  : 標準線源核種(j)の測定時における放射能 (Bq)

$P_{rij}$  : 核種(j)の  $\gamma$  線(i)の 1 崩壊当りの放出数

### (4) 測定値に影響する因子

試料と検出器との距離のばらつき、試料の  $\gamma$  線自己吸収が測定値に影響を与える。試料と検出器との距離 10 cm に対して 0.5 mm 以内にすることができるので、距離の 2 乗に比例する試料と検出器との距離のばらつきによる誤差は、1 %以下と考えられる。また、試料重量が 1 g 以下で測定試料面積が 4.5 cm<sup>2</sup> の場合は、コンクリート試料の単位面積当たりの重量は 0.2 g/cm<sup>2</sup> 以下となり、ここで用いた 600 keV 以上の  $\gamma$  線の自己吸収は、1 %以下となる。

### (5) 定量結果

生体遮蔽コンクリート試料の定量結果を Table 6 に示す。ここに示した誤差は、測定したカウント数の統計誤差 (1 σ) と標準線源の保証値の誤差 (uncertainty) の合計である。

今回分析した生体遮蔽コンクリート 3 試料のうち、D-76 は数年まえに燃焼率測定室で測定した試料<sup>2)</sup>と同じバッチのものであり、また、D-74 は前回測定はしなかったが同一バッチの試料が残されていた。今回、測定対象の試料になっていないが、前回測定した D-73 も保存してあった。

前回の定量結果を再吟味するため、今回の測定対象となった試料 D-76 及び D-74 の測定番号をそれぞれ N D76 及び N D74 とし、また前回測定した試料 D-76, D-74 及び D-73 の測定番号をそれぞれ D76, D74 及び D73 とし、これら 5 試料について測定した。

前回の定量結果及びその半減期補正值と共に今回の定量結果を Table 7 に示す。いずれの試料についても結果はよく一致している。このことは、試料の粉末化処理における均一化についても、また測定上にも問題はなかったことを示している。

## 4. 冷却水精製用イオン交換樹脂中の長寿命核種の定量

### 4.1 $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ の定量

#### 4.1.1 定量方法

##### (1) 方法の概略

試料を酸素気流中で抵抗加熱炉を用いて燃焼させ、 $^3\text{H}$ を水の形で、また $^{14}\text{C}$ を二酸化炭素の形で抽出し、モノエタノールアミン液に捕集する。この一定量を分取し、これにエチレングリコール・モノメチルエーテル及び液体シンチレータとしてクリアゾルⅠを加え、液体シンチレーションカウンターで放射能を測定する。

##### (2) 適用

一次冷却水精製用イオン交換樹脂中の $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ の測定に適用できる。検出限界は、 $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ についてそれぞれおよそ 0.5 及び 0.3 Bq である。ただし、それぞれの核種の検出限界は、 $^3\text{H}$ あるいは $^{14}\text{C}$ の量に依存する。

##### (3) 主な試薬、器具及び装置

- 1) 燃焼ポート：9×12×70mm の磁器ポート。
- 2) 抵抗加熱炉：燃焼管内の試料を 1000°C 以上に加熱できるもの。
- 3) 抽出ガス捕集装置：Fig.16 参照

その他、吸収液、放射能測定装置は、3.1.2(3)と同じものを用いる。

##### (4) 定量操作

使用する装置を Fig.16 に示す。

- 1) すずカプセルに試料 0.1 g をはかりとり、磁器ポートに入れ、石英管中央に挿入する。石英管の両端をシリコンゴム管で装置の配管と接続し、酸素流量を 300 ml/min に調節する。
- 2) 予め 950°C に加熱してある抵抗加熱炉が石英管の中央へ来るよう横方向に移動させ、試料を 60 分間加熱する。
- 3) 試料の燃焼の結果、生成した二酸化炭素及び水をモノエタノールアミン 10 ml に吸収させ、3.1.(4)に準じて放射能を測定する。

### 4.1.2 実験結果

#### (1) 冷却水精製用イオン交換樹脂の熱分析

樹脂の燃焼条件を決めるため、空気雰囲気中で熱重量分析(TGA)及び示差熱分析(DTA)を行った。結果を Fig.17 に示す。TGA で見られる ~100°C の減量は、水の離脱によるものである。440°C に見られる発熱を伴った減量は、試料の "carbonization" による第 1 次分解によるもの、また 550~700°C の発熱を伴った減量は、第 1 次分解生成物の燃焼によるものと考えられた。730°C 以上では重量変化は認められなかった。この結果から、730°C 以上

に加熱することにより、樹脂を燃焼できることがわかった。

### (2) 燃焼雰囲気

抵抗加熱炉を用いて、空気流量 100～300 ml/min, 加熱温度 950°C で試料 0.1 g を燃焼させると、石英管の出口にダストトラップとして充填してある石英ウールにタール状生成物が付着することが分った。このため、キャリヤーガスを酸素に代えることにより、試料の不完全燃焼を防いだ。

(3) 定量結果を Table 8 に示す。

## 4.2 プルトニウムの定量

一次冷却水精製用イオン交換樹脂のプルトニウムは、使用済燃料要素に起因するものと考えられる。従って、<sup>239</sup>Pu 以外のプルトニウムの同位体及び中性子捕獲反応で生成するアメリシウム、キュリウムなどの  $\alpha$  放射性核種が存在することを考慮しなければならない。

### 4.2.1 定量方法

#### (1) 方法の概略

試料に<sup>238</sup>Pu をスペイクとして加えたのち灰化する。これを硝酸及び塩酸で溶解し、陰イオン交換樹脂を用いてプルトニウムを分離して  $\alpha$  線スペクトロメトリーによって測定する。

#### (2) 適用

一次冷却水精製用イオン交換樹脂のプルトニウムの測定に適用できる。検出限界は、0.005 Bq ( $1 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}$ ) である。

#### (3) 主な装置及び試薬

3.2.1 (3)に準ずる。

#### (4) 定量操作

定量操作を Fig.18 にフローシートで示す。

### 4.2.2 実験及び結果

#### (1) イオン交換樹脂の灰化

石英ビーカーにイオン交換樹脂 2 g 採り、ブンゼンバーナーで加熱すると温度上昇に伴って樹脂が飛散る。従って、この方法は灰化の初期処理として不適当であった。次に電気炉を使用する方法を検討した。100°C に設定した電気炉へ試料を入れ、1 時間かけて 300°C まで昇温し樹脂の脱水を図った。この過程で樹脂は発煙してタールを生じたが、樹脂粒が飛散ることはなかった。このように処理した樹脂を、ブンゼンバーナーで発煙しなくなるまで加熱すると樹脂粒は暗褐色に変った。再び電気炉で 800°C, 1 時間加熱したところ、やや減容したものの大きな状態の変化はなかった。この樹脂を白金るつぼに移し、酸素バーナーで約 1000°C に灼熱すると、樹脂は発煙しながら融解し、放冷後の固形物は 14 M 硝酸 5 ml を加えてホットプレート上で加熱することによりほぼ完全に溶解できた。

## (2) 定量結果

樹脂試料 2 g にスパイクとして<sup>238</sup>Pu 0.025<sub>s</sub> Bqを加えた試料と非スパイク試料 4 g を定量操作に従って分析した。得られ  $\alpha$  線スペクトルを Fig.19, 20 に示す。生体遮蔽コンクリートの場合と異なり、非スパイク試料のスペクトルに<sup>238</sup>Pu のピークが認められる。従って、冷却水精製用イオン交換樹脂中に存在するプルトニウムの起源は燃料と考えられる。このことは、<sup>239</sup>Pu の  $\alpha$  線エネルギー (5.157, 5.144, 5.106 MeV) とほぼ等しい  $\alpha$  線エネルギー (5.168, 5.124 MeV) の<sup>240</sup>Pu が共存していることを示唆している。

試料中に<sup>238</sup>Pu が存在する場合には、添加する<sup>238</sup>Pu は同位体希釈- $\alpha$  線スペクトロメトリー<sup>8)</sup>におけるスパイクである。すなわち、冷却水精製用イオン交換樹脂の分析では、スパイク及び非スパイク両試料の測定が必要となる。一方、スパイクとして使用する<sup>238</sup>Pu の<sup>239</sup>Pu +<sup>240</sup>Pu の  $\alpha$  線放射能は、無視できるので、プルトニウム濃度の算出は比較的単純となり、次式で求めることができる。なお、分析結果は Table 9 に示す。

$$C_1 = S \cdot N_{m9} / \{N_{m8} - (N_{m9} \cdot N_{n8} / N_{n9})\} / G$$

$$C_2 = C_1 \cdot N_{n8} / N_{n9}$$

ただし、 $C_1$  : 試料中の<sup>239</sup>Pu +<sup>240</sup>Pu (Bq/g)

$C_2$  : 試料中の<sup>238</sup>Pu (Bq/g)

S : <sup>238</sup>Pu の添加量 (Bq)

G : スパイク試料の採取量 (g)

$N_{m8}$  : スパイク試料の  $\alpha$  線スペクトルの<sup>238</sup>Pu 領域の計数値 (カウント)

$N_{m9}$  : スパイク試料の  $\alpha$  線スペクトルの<sup>239</sup>Pu 領域の計数値 (カウント)

$N_{n8}$  : 非スパイク試料の  $\alpha$  線スペクトルの<sup>238</sup>Pu 領域の計数値 (カウント)

$N_{n9}$  : 非スパイク試料の  $\alpha$  線スペクトルの<sup>239</sup>Pu 領域の計数値 (カウント)

4.3 <sup>60</sup>Co, <sup>137</sup>Cs, <sup>152</sup>Eu 等の定量

## 4.3.1 定量方法

## (1) 方法の概略

3.3.1(1)に準ずる。

## (2) 適用

一次冷却水精製用イオン交換樹脂の<sup>60</sup>Co, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>152</sup>Eu, <sup>154</sup>Eu などの  $\gamma$  線放出核種の測定に適用できる。

## (3) 主な装置

3.3.1(3)に準ずる。

## (4) 測定操作

3.3.1(4)に準ずる。

#### 4.3.2 実験及び結果

一次冷却水精製用イオン交換樹脂の<sup>60</sup>Co, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>152</sup>Eu, <sup>154</sup>Eu の測定結果を Table 5, 6 に示す。その他については、3.3.2(1)~(6)参照。

### 5. 燃料棒貯蔵用プール水中の長寿命核種の定量

#### 5.1 <sup>3</sup>H 及び <sup>14</sup>C の定量

##### 5.1.1 定量方法

###### (1) 方法の概略

水中の炭酸イオンを硫酸で分解して炭素を二酸化炭素として抽出し、モノエタノールアミンに捕集し、その<sup>14</sup>C の放射能を液体シンチレーションカウンターで測定する。また、蒸留によって精製した水中の<sup>3</sup>H の放射能を液体シンチレーションカウンターで測定する。

###### (2) 適用

燃料棒貯蔵用プール水中の<sup>3</sup>H 及び <sup>14</sup>C の測定に適用できる。検出限界は、<sup>3</sup>H 及び <sup>14</sup>C についてそれぞれおよそ 0.5 及び 0.3 Bq である。ただし、それぞれの核種の検出限界は<sup>3</sup>H あるいは<sup>14</sup>C の量に依存する。

###### (3) 主な試薬、器具及び装置

1) <sup>14</sup>C の定量には Fig.5 の装置の酸化銅管及びヒーターを取り外して使用する。また、<sup>3</sup>H の定量には Fig.21 の装置を用いる。

2) 炭酸イオンの分解に 6 N 硫酸 10ml を用いる。

3) その他、吸収液、放射能測定装置は 3.1.2(3)と同じものを用いる。

###### (4) 定量操作

###### (<sup>14</sup>C の場合)

1) プール水 20ml を試料分解容器に採取する。また Fig.5 の強りん酸の代りに 6 N 硫酸 10ml を加える。

2) 酸素を 100 ml/min で流しながら、硫酸を分解容器に滴加し、発生した二酸化炭素をモノエタノールアミンに 30 分間捕集し、液体シンチレーションカウンターでその放射能を測定する。

###### (<sup>3</sup>H の場合)

1) Fig.21 の装置に試料水約 40ml を蒸留容器に採り、沸騰するまで加熱し、メスリンドーピーに蒸留液が 10ml 捕集されるまで蒸留を続ける。

2) 捕集液 1ml をバイアルに採取し、これにクレアゾル I 液 14ml を加え、よく振り混ぜたのち液体シンチレーションカウンターで放射能を測定する。

#### 4.3.2 実験及び結果

一次冷却水精製用イオン交換樹脂の<sup>60</sup>Co, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>152</sup>Eu, <sup>154</sup>Eu の測定結果を Table 5, 6 に示す。その他については、3.3.2(1)~(6)参照。

### 5. 燃料棒貯蔵用プール水中の長寿命核種の定量

#### 5.1 <sup>3</sup>H 及び <sup>14</sup>C の定量

##### 5.1.1 定量方法

###### (1) 方法の概略

水中の炭酸イオンを硫酸で分解して炭素を二酸化炭素として抽出し、モノエタノールアミンに捕集し、その<sup>14</sup>C の放射能を液体シンチレーションカウンターで測定する。また、蒸留によって精製した水中の<sup>3</sup>H の放射能を液体シンチレーションカウンターで測定する。

###### (2) 適用

燃料棒貯蔵用プール水中の<sup>3</sup>H 及び <sup>14</sup>C の測定に適用できる。検出限界は、<sup>3</sup>H 及び <sup>14</sup>C についてそれぞれおよそ 0.5 及び 0.3 Bq である。ただし、それぞれの核種の検出限界は<sup>3</sup>H あるいは<sup>14</sup>C の量に依存する。

###### (3) 主な試薬、器具及び装置

1) <sup>14</sup>C の定量には Fig.5 の装置の酸化銅管及びヒーターを取り外して使用する。また、<sup>3</sup>H の定量には Fig.21 の装置を用いる。

2) 炭酸イオンの分解に 6 N 硫酸 10 ml を用いる。

3) その他、吸収液、放射能測定装置は 3.1.2(3)と同じものを用いる。

###### (4) 定量操作

###### (<sup>14</sup>C の場合)

1) プール水 20 ml を試料分解容器に採取する。また Fig.5 の強りん酸の代りに 6 N 硫酸 10 ml を加える。

2) 酸素を 100 ml/min で流しながら、硫酸を分解容器に滴加し、発生した二酸化炭素をモノエタノールアミンに 30 分間捕集し、液体シンチレーションカウンターでその放射能を測定する。

###### (<sup>3</sup>H の場合)

1) Fig.21 の装置に試料水約 40 ml を蒸留容器に採り、沸騰するまで加熱し、メスリンドーピーに蒸留液が 10 ml 捕集されるまで蒸留を続ける。

2) 捕集液 1 ml をバイアルに採取し、これにクレアゾル I 液 14 ml を加え、よく振り混ぜたのち液体シンチレーションカウンターで放射能を測定する。

### 5.1.2 実験及び結果

#### (1) 炭酸塩の分解及び炭素の回収

水中の炭酸イオンが分解して二酸化炭素として抽出される時間及びその回収率を調べた。結果をFig.22に示す。炭酸ナトリウム12mg(炭素として1.4mg)を水10mlに溶解後分解容器に入れ、6N硫酸10mlを滴加して発生してくる二酸化炭素を炭素定量装置で連続的に測定した。この結果、キャリヤガス流量100mlのとき30分間で炭素の抽出が完了し、その時の回収率は99.8%であることが分った。実試料の場合には、安全を見込んで抽出時間を60分間とした。

#### (2) 定量結果

燃料棒貯蔵用プール水中の<sup>3</sup>H及び<sup>14</sup>Cを測定した結果、いずれも検出限界以下であった。

## 5.2 プルトニウムの定量

燃料棒貯蔵用プール水中のプルトニウムは、使用済燃料要素に起因するものと考えられる。従って、<sup>239</sup>Pu以外のプルトニウム同位体及び中性子捕獲反応で生成するアメリシウム、キュリウムなどの $\alpha$ 放射性核種が存在することを考慮しなければならない。

### 5.2.1 定量方法

#### (1) 方法の概略

試料水70mlに14M硝酸3mlを加えて加熱濃縮し、 $\alpha$ 線スペクトロメトリーにより測定する。

#### (2) 通用

燃料棒貯蔵用プール水中のプルトニウムの測定に適用できる。検出限界は、0.005 Bq ( $1 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}$ )である。

#### (3) 装置及び試薬

3.2.1 (3)に準ずる。

#### (4) 測定操作

定量操作をFig.23にフローシートで示す。

### 5.2.2 実験及び結果

#### (1) 定量結果

燃料棒貯蔵用プール水を定量操作に従って分析した。得られた $\alpha$ 線スペクトルをFig.24に示す。冷却水精製用イオン交換樹脂の場合と同様に<sup>238</sup>Pu領域にピークが見られ、この $\alpha$ 放射能は使用済燃料に起因すると考えられる。定量操作では、化学分離を行っていないので<sup>238</sup>Pu領域には<sup>238</sup>Puの $\alpha$ 線エネルギー(5.499, 5.457 MeV)とほぼ同じ $\alpha$ 線エネルギー(5.486, 5.443 MeV)の<sup>241</sup>Amが存在していると考えなければならない。従って、測定した $\alpha$ 線放射能は、<sup>239</sup>Pu + <sup>240</sup>Pu及び<sup>238</sup>Pu + <sup>241</sup>Amであり、それぞれ次式により求めることができる。

$$C_1 = N_9 / (T \cdot V \cdot E)$$

$$C_2 = N_8 / (T \cdot V \cdot E)$$

ただし、 $C_1$ ：試料水中の $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$  (Bq/ml)

$C_2$ ：試料水中の $^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}$  (Bq/ml)

$N_8$ ： $^{238}\text{Pu}$ 領域の計数値（カウント）

$N_9$ ： $^{239}\text{Pu}$ 領域の計数値（カウント）

T：測定時間 (sec)

V：試料水採取量 (ml)

E：計数効率

定量結果をTable 10に示す。なお、蒸発乾固した試料について、イオン交換樹脂の場合と同様にスパイク及び非スパイク試料を調製し、同位体希釈- $\alpha$ 線スペクトロメトリーを行えば、 $^{238}\text{Pu}$ だけを定量できる。

## 6. む す び

生体遮蔽コンクリート、冷却水精製用イオン交換樹脂及び燃料棒貯蔵用プール水中の長寿命核種である $^{14}\text{C}$ ,  $^3\text{H}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ 及びPuの定量法を開発し、それぞれの核種の実存量を測定した。

原子炉の解体で生ずる低レベル廃棄物の処理・処分では、今後無拘束限界値近傍の放射性核種の分析が必要となろうが、その対応は非常に難しく、高度な化学分離技術をさらに開発しそれを駆使しなければならない。今回確立した方法を今後さらに改良することも必要となり、原子炉解体が進につれてこの分野の分析は、ますます重要度を増すであろう。

なお今回の実験では、試料分解法の検討を武石秀世及び河野信昭が、 $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ の定量を磯修一と米沢仲四郎が、Puの定量を河野信昭が、また $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ 及び $^{154}\text{Eu}$ の測定を鈴木敏夫が担当し、総括は武石秀世、星野昭が行った。

$$C_1 = N_9 / (T \cdot V \cdot E)$$

$$C_2 = N_8 / (T \cdot V \cdot E)$$

ただし、 $C_1$ ：試料水中の $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$  (Bq/ml)

$C_2$ ：試料水中の $^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}$  (Bq/ml)

$N_8$ ： $^{238}\text{Pu}$ 領域の計数値（カウント）

$N_9$ ： $^{239}\text{Pu}$ 領域の計数値（カウント）

T：測定時間 (sec)

V：試料水採取量 (ml)

E：計数効率

定量結果をTable 10に示す。なお、蒸発乾固した試料について、イオン交換樹脂の場合と同様にスパイク及び非スパイク試料を調製し、同位体希釈- $\alpha$ 線スペクトロメトリーを行えば、 $^{238}\text{Pu}$ だけを定量できる。

## 6. む す び

生体遮蔽コンクリート、冷却水精製用イオン交換樹脂及び燃料棒貯蔵用プール水中の長寿命核種である $^{14}\text{C}$ 、 $^3\text{H}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{152}\text{Eu}$ 、 $^{154}\text{Eu}$ 及びPuの定量法を開発し、それぞれの核種の実存量を測定した。

原子炉の解体で生ずる低レベル廃棄物の処理・処分では、今後無拘束限界値近傍の放射性核種の分析が必要となろうが、その対応は非常に難しく、高度な化学分離技術をさらに開発しそれを駆使しなければならない。今回確立した方法を今後さらに改良することも必要となり、原子炉解体が進につれてこの分野の分析は、ますます重要度を増すであろう。

なお今回の実験では、試料分解法の検討を武石秀世及び河野信昭が、 $^3\text{H}$ 及び $^{14}\text{C}$ の定量を磯修一と米沢仲四郎が、Puの定量を河野信昭が、また $^{60}\text{Co}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{152}\text{Eu}$ 及び $^{154}\text{Eu}$ の測定を鈴木敏夫が担当し、総括は武石秀世、星野昭が行った。

## 参 考 文 献

- 1) Packard Tri-Canb 2250 CA型液体シンチレーションカウンター取扱説明書及び "Liquid Scintillation Analysis, Science and Technology" Packard Instrument Co., Inc. (1987)
- 2) 黒沢義昭, 伊藤 精, 原田康典 : 日本保健物理学会第22回研究発表会要旨集, p.29(1987)
- 3) ASTM C1001-83
- 4) JIS R2212
- 5) JIS R6123
- 6) Y. Yoshizawa, T. Horiguchi, M. Yamada : Chart of the Nuclides, JAERI
- 7) JAERI-M 85-213, p.296 (1986)
- 8) N.Shinohara, et al : Nucl. Instr. and Meth. A270, P.239 (1988)

Table 1 Analytical results of  $^{14}\text{C}$  in biological  
shielding concrete samples

試 料	乾式酸化 <sup>1)</sup>	湿式分解 - 1 <sup>2)</sup>	(Bq/g) 湿式分解 - 2 <sup>3)</sup>
D - 74	8.0	6.0	7.6
		6.7	
D - 76	6.5	3.2	6.1
		3.3	
2 H - 2	< 2.0	1.1	1.5
		1.1	

試料 : 1 g

- 1) 高周波誘導加熱により酸素気流中で 1600 ℃に 6 分間加熱, 1 時間捕集。  
助燃剤 : Fe 1.2 g + Cu 0.6 g  
2) 強りん酸 20ml, 抵抗加熱により酸素気流中で 200 ℃に 1 時間加熱, 捕集。  
3) 強りん酸 20ml+よう素酸カリウム 0.3 g. 抵抗加熱により酸素気流中で 200 ℃  
に 1 時間加熱, 捕集。

Table 2 Analytical results of  $^{3}\text{H}$  in biological  
shielding concrete samples

試 料	乾式酸化 <sup>1)</sup>	湿式分解 - 1 <sup>2)</sup>	(Bq/g) 湿式分解 - 2 <sup>3)</sup>
D - 74	8772	300	25.6
		240	
D - 76	8392	100	46.5
		40	
2 H - 2	4160	12	44.9
		110	

試料 : 1 g

- 1) 高周波誘導加熱炉により酸素気流中で 1600 ℃に 6 分間加熱, 1 時間捕集。  
助燃剤 : Fe 1.2 g + Cu 0.6 g  
2) 強りん酸 20ml, 抵抗加熱炉により酸素気流中で 200 ℃に 1 時間加熱, 捕集。  
3) 強りん酸 20ml+よう素酸カリウム 0.3 g. 抵抗加熱炉により酸素気流中で 200 ℃  
に 1 時間加熱, 捕集。

Table 3 Standard deviation of analytical results of  $^3\text{H}$  and  $^{14}\text{C}$  in biological shielding concrete sample

方 法	$^3\text{H}$	$^{14}\text{C}$ (Bq/g)
乾式酸化法	$8771 \pm 76$ <sup>1)</sup> (0.87%) <sup>2)</sup>	$8.0 \pm 2.0$ (25%)
湿式分解法	$26.3 \pm 1.1$ (4.2%)	$7.85 \pm 1.9$ (1.9%)

n = 6

<sup>1)</sup>: 標準偏差, <sup>2)</sup>: 相対標準偏差

Table 5 Energy and emission probability of  $\gamma$ -ray in standard samples

核 種	$\gamma$ 線エネルギー (keV)	$\gamma$ 線放出率 (1崩壊当たりの数)
$^{152}\text{Eu}$	121.78	0.287
$^{152}\text{Eu}$	244.70	0.0748
$^{152}\text{Eu}$	344.28	0.2672
$^{152}\text{Eu}$	443.99	0.0314
$^{152}\text{Eu}$	778.93	0.1298
$^{152}\text{Eu}$	964.03	0.1464
$^{152}\text{Eu}$	1112.12	0.1372
$^{152}\text{Eu}$	1408.01	0.2088
$^{137}\text{Cs}$	661.66	0.851

Table 4 Analytical results of  $^{239}\text{Pu}$  in biological shielding concrete samples

測定試料名	試料採取量 g	$^{238}\text{Pu}$ 添加量 Bq	測定時間 sec	計数値 $^{238}\text{Pu}$ 領域 count	$^{239}\text{Pu}$ 濃度 Bq/g	別法 <sup>a)</sup> による $^{239}\text{Pu}$ 濃度, Bq/g
D-74 スパイク試料	1.007	0.102	235, 637	378	717	0.053 $\pm$ 0.004
	0.503	0	331, 699	782	<20	0.07 <sub>3</sub> $\pm$ 0.02
D-76 スパイク試料	1.003	0.102	234, 833	768	1,282	0.061 $\pm$ 0.005
	0.501	0	331, 235	766	<20	0.07 <sub>1</sub> $\pm$ 0.02
2H-2 スパイク試料	1.002	0.102	872, 217	1,655	5,292	0.032 $\pm$ 0.005
	0.500	0	252, 875	321	<20	0.03 <sub>9</sub> $\pm$ 0.01

<sup>a)</sup>回収率を95%とみなし、予め計数効率を標準線源でもとめたα線スペクトロメーターによって絶対測定した。

<sup>b)</sup>測定値の誤差は、計数誤差(2~6%)、テリソング補正誤差(1~5%)、計数効率の違い(線源面積のバラツキ)による誤差(10%)、化学吸率の誤差(7%)をもとに評価した。

Table 6 Analytical results (I) of  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  and  $^{154}\text{Eu}$  in biological shielding concrete samples

試料名	試料番号	試重量(g)	放射能(Bq/g, 平成1年2月1日現在)			
			$^{60}\text{Co}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{152}\text{Eu}$
コソクリ-ト D-76	N D 76	0.4032	209 ± 6.0	3.5 ± 0.6	LLD	1147 ± 31
コソクリ-ト D-76	N D 74	0.3118	263 ± 7.4	5.3 ± 0.8	LLD	1499 ± 40
コソクリ-ト 2H-2	N 2H 2	0.4115	67 ± 2.5	0.4 ± 0.3	LLD	418 ± 15
イオン交換樹脂 RESIN	RESIN	0.6655	190 ± 4.8	LLD	41.5 ± 1.5	LLD

注: LLDは検出限界値以下を示す。

Table 8 Analytical results of  $^3\text{H}$  and  $^{14}\text{C}$  in ion exchange resin sample

	$^3\text{H}$	$^{14}\text{C}$
試料採取量: 0.1 g	182, 39	< 9, < 9

Table 7 Analytical results (II) of  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  and  $^{154}\text{Eu}$  in biological shielding concrete samples

試料名	試料番号 (ID No.)	試料重量 (g)	放射能 (Bq/g $\pm$ S.T.D. D.E.V. ( $1\sigma$ ) %, 1989年2月1日現在)			
			$^{60}\text{Co}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{152}\text{Eu}$
コンクリート D-76	N D 76 *1	0.4032	209 $\pm$ 1.3 %	3.5 $\pm$ 18 %	L L D	1147 $\pm$ 1.2 %
	D 76 *2	0.2876	215 $\pm$ 1.6 %	5.1 $\pm$ 16 %	L L D	1150 $\pm$ 1.5 %
	D 76 ( 19801231 ) *3		624 $\pm$ 3.7 %	94 $\pm$ 6.0 %	L L D	1730 $\pm$ 3.8 %
	D 76 ( 19890201 ) *4		216 $\pm$ 3.7 %	6.2 $\pm$ 6.0 %	L L D	1142 $\pm$ 3.8 %
コンクリート D-74	N D 74 *1	0.3118	263 $\pm$ 1.3 %	5.3 $\pm$ 15 %	L L D	1499 $\pm$ 1.2 %
	D 74 *2	0.2888	264 $\pm$ 1.3 %	6.6 $\pm$ 15 %	L L D	1546 $\pm$ 1.2 %
コンクリート D-73	D 73 *2	0.4008	249 $\pm$ 1.5 %	3.1 $\pm$ 25 %	L L D	1331 $\pm$ 1.0 %
	D 73 ( 19801231 ) *3		730 $\pm$ 1.5 %	66 $\pm$ 4.6 %	L L D	2030 $\pm$ 1.2 %
	D 73 ( 19890201 ) *4		252 $\pm$ 1.5 %	4.4 $\pm$ 4.6 %	L L D	1340 $\pm$ 1.2 %
コンクリート 2H-2	N 2 H 2 *1	0.4115	67 $\pm$ 2.2 %	0.4 $\pm$ 70 %	L L D	418 $\pm$ 2.0 %
イオン交換樹脂	RESIN *1	0.6655	190 $\pm$ 1.0 %	L L D	42 $\pm$ 2.0 %	L L D

注: L L Dは検出限界値以下を示す。

\*1: 今回の試料の測定値 \*2: 前回の試料から採取した試料の測定値

\*3: 前回の測定値(1980年12月31日)

\*4: 前回の測定値を今回の測定日時(1989年2月1日)に半減期補正したもの。

Table 9 Analytical results of Pu in ion exchange resin sample

測定試料名	試料採取料 g	$^{238}\text{Pu}$ 添加量 $\text{Bq}$	測定時間 sec	計 $^{239}\text{Pu}$ 領域 count	数 値 $^{238}\text{Pu}$ count	濃 度 $^{238}\text{Pu}$ $\text{Bq}/\text{g}$	別法 <sup>a)</sup> による濃度, $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ $\text{Bq}/\text{g}$
スパイク試料	2.00	0.025 <sub>5</sub>	236,057	391	404	$0.016 \pm 0.003$	$0.0034 \pm 0.0007$
非スパイク試料	4.00	0	103,149	275	60	$0.011 \pm 0.002$	$0.0024 \pm 0.0007$
非化学分離試料	0.070	0	610,722	α 放射能濃度( $\text{Bq}/\text{g}$ )	$^{234}\text{U} + ^{235}\text{U} + ^{238}\text{U}$ ; $0.02 \pm 0.02$ , $^{238}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}$ ; $0.02 \pm 0.02$		

a) 非スパイク試料について、回収率を95%とみなし、予め計数効率を標準線源でもとめた $\alpha$ 線スペクトロメーターによって絶対測定した。  
 b) 測定値の誤差は、計数誤差(5~13%)、テニシング補正誤差(1~5%)、計数効率の違い(線源面積のバラツキ)による誤差(10%)、化学收率の誤差(7%)とともに評価した。

Table 10 Analytical results of Pu in spent fuel storage pool water sample

試料採取料 ml	測定時間 sec	計 数 効 率 %	計 $^{239}\text{Pu}$ 領域 count	数 値 $^{238}\text{Pu}$ count	濃 度 $^{238}\text{Pu}$ $\text{Bq}/\text{ml}$	指 定 濃 度 <sup>a)</sup> $^{241}\text{Am}$ $\text{Bq}/\text{ml}$
70.0	427,327	4.0	135	85	$(1.1 \pm 0.2)^{\text{b)}$ $\times 10^{-4}$	$(7.1 \pm 1) \times 10^{-5}$

a) 試料中のプルトニウム組成がイオソン交換樹脂試料と同じであると仮定し、放射能比 $^{238}\text{Pu}/(^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}) = 0.22$ を用いて計算した。  
 b) 測定値の誤差は、計数誤差(~11%)、テニシング補正誤差(1~5%)、計数効率の違い(線源面積のバラツキ)(7%)をもとに評価した。

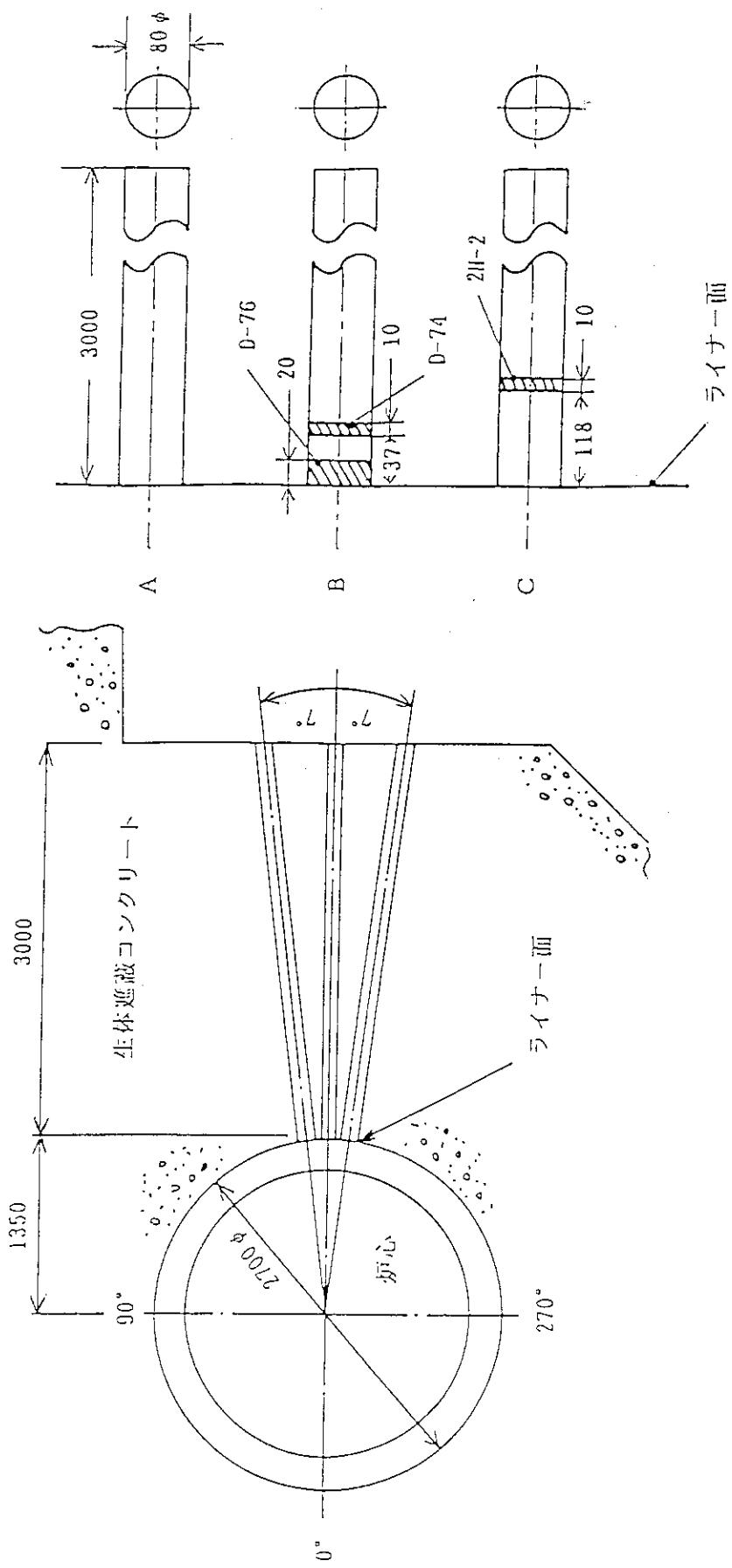
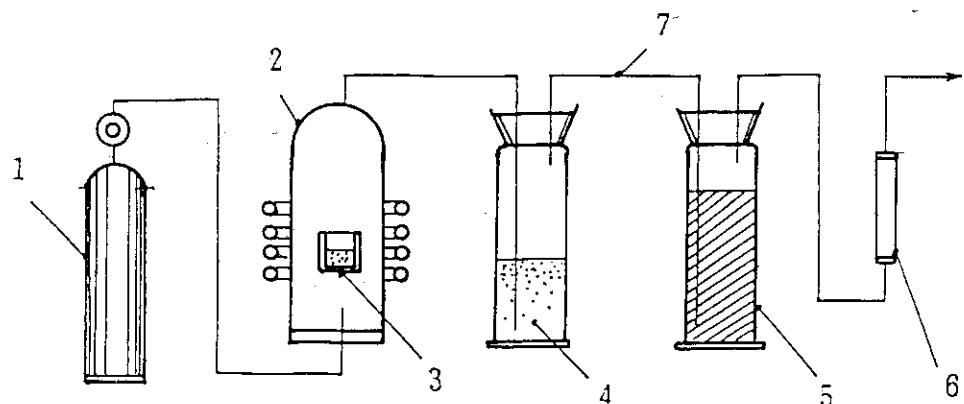
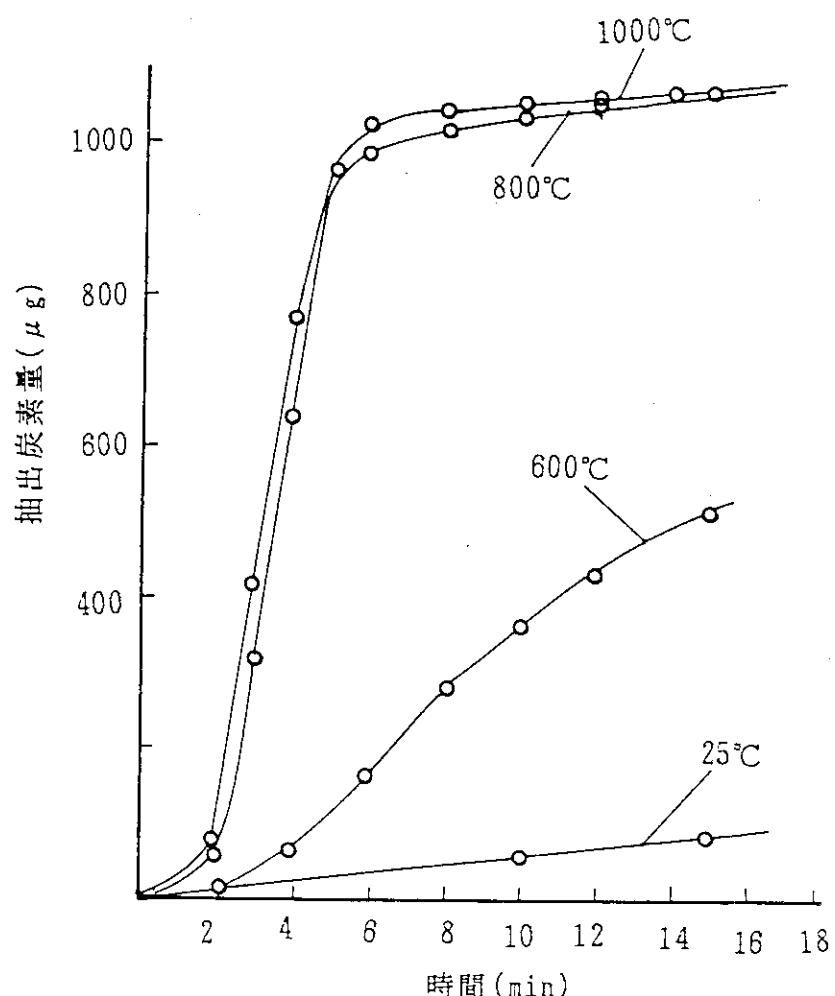


Fig. 1 Sampling position of biological shielding concrete of JPDR



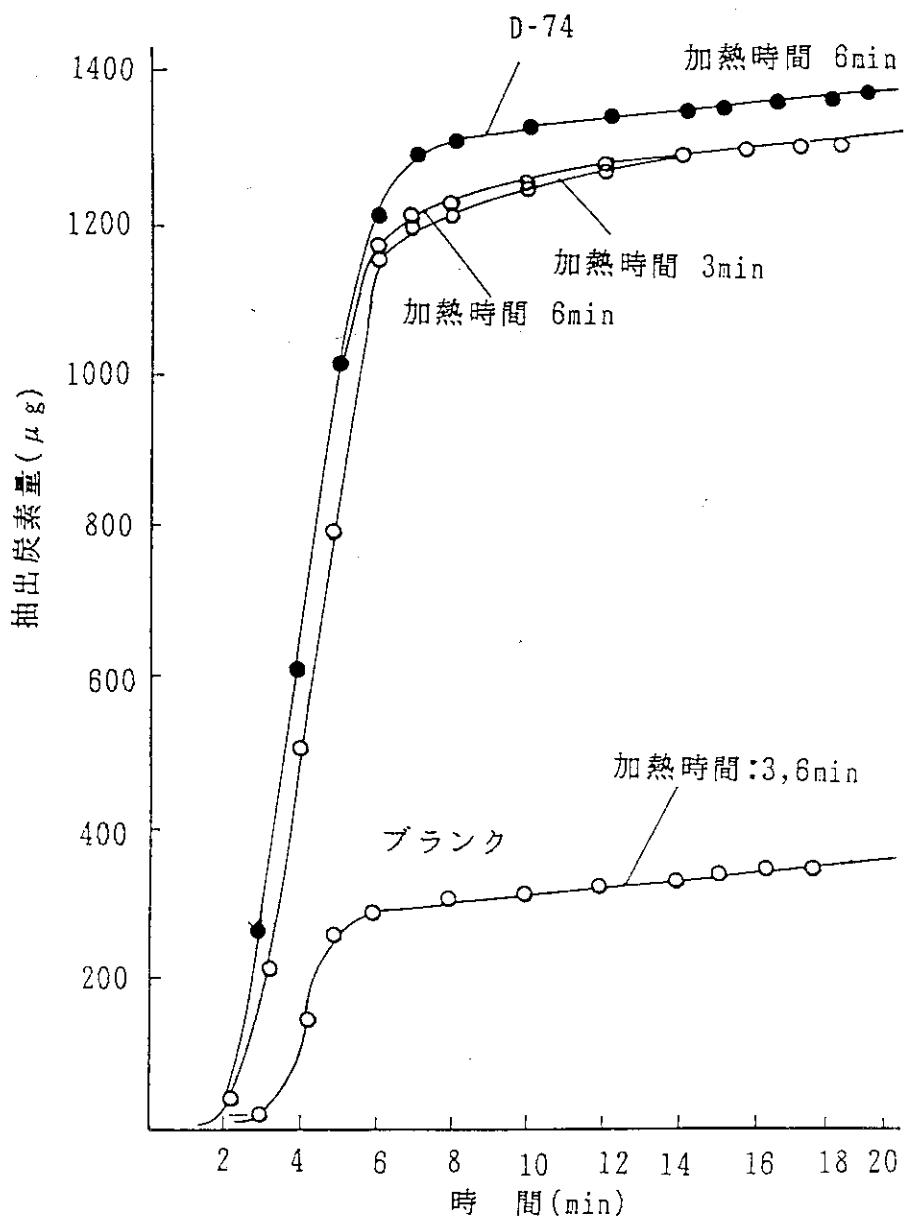
1 : 酸素容器 2 : 高周波誘導加熱炉 3 : 試料加熱用るつぼ  
4 :  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$  吸収瓶 (モノエタノールアミン) 5 : シリカゲル  
6 : 流量計 7 : 配管 (テフロンチューブ)

Fig. 2 Apparatus for extracting  $^3\text{H}$  and  $^{14}\text{C}$  in biological shielding concrete sample by the high frequency induction heating method



試料 : 200mg 酸素 : 100ml/min

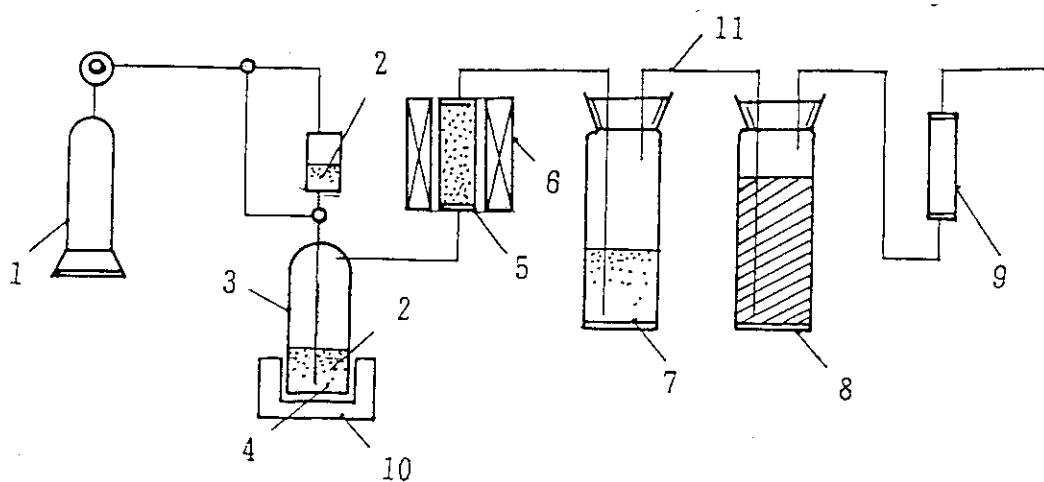
Fig. 3 Amount of carbon extracted from a concrete sample by the electric resistance heating method



試料 : 200 mg, 加熱温度 : 1600 °C

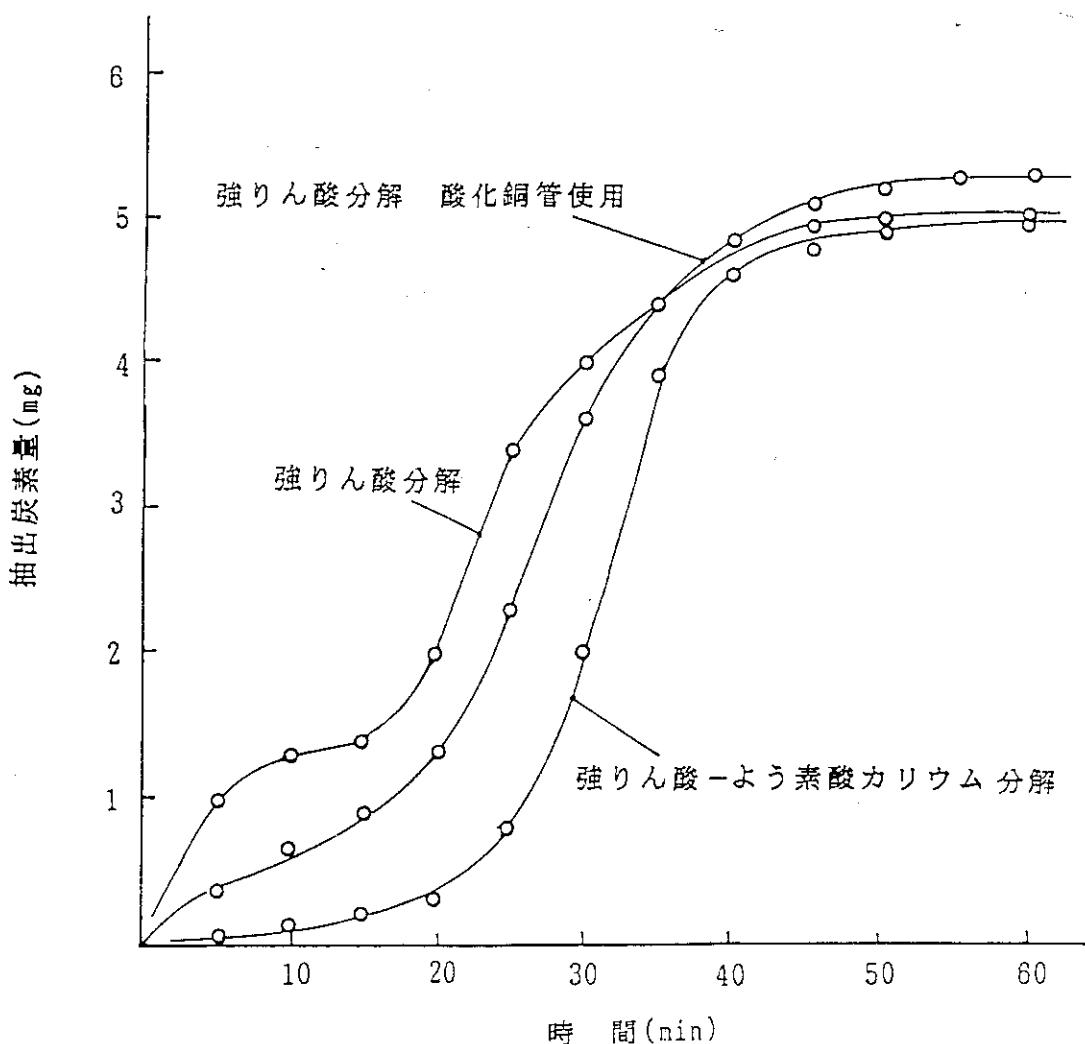
助燃剤 : Fe 1.2 g Cu 0.6 g 酸素 : 100 ml/min

Fig. 4 Amount of carbon extracted from a concrete sample by the high frequency induction heating method



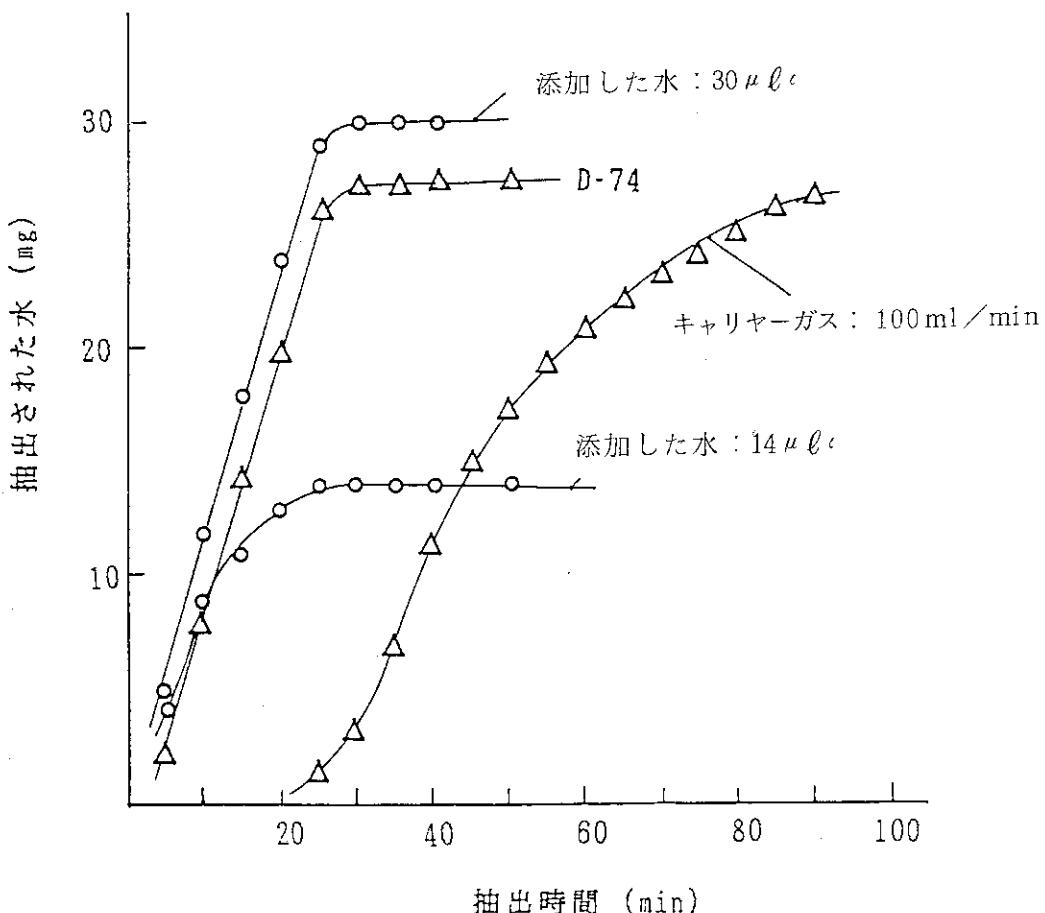
1 : 酸素容器 2 : 強りん酸 3 : 試料分解容器 4 : 試料  
 5 : 酸化銅管 6 : ヒーター 7 :  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$  吸収瓶(モノエタノールアミン)  
 8 : シリカゲル 9 : 流量計 10 : ヒーター 11 : 配管(テフロンチューブ)

Fig. 5 Apparatus for extracting  $^3\text{H}$  and  $^{14}\text{C}$  in biological concrete sample by the strong phosphoric acid decomposition method



試料：1 g 強りん酸：20ml よう素酸カリウム：0.3 g  
酸素：100 ml/min 溫度：40分まで 100°Cで加熱，その後 200°Cに昇温

Fig. 6 Amount of carbon extracted from a concrete sample by the strong phosphoric acid decomposition method



加熱方法：高周波誘導加熱，助燃剤：Fe 1.2g Cu 0.6g，  
加熱時間：6分間，キャリヤーガス： $300 \text{ ml/min}$

Fig. 7 Amount of  $\text{H}_2\text{O}/\text{H}_2$  extracted from biological shielding concrete sample

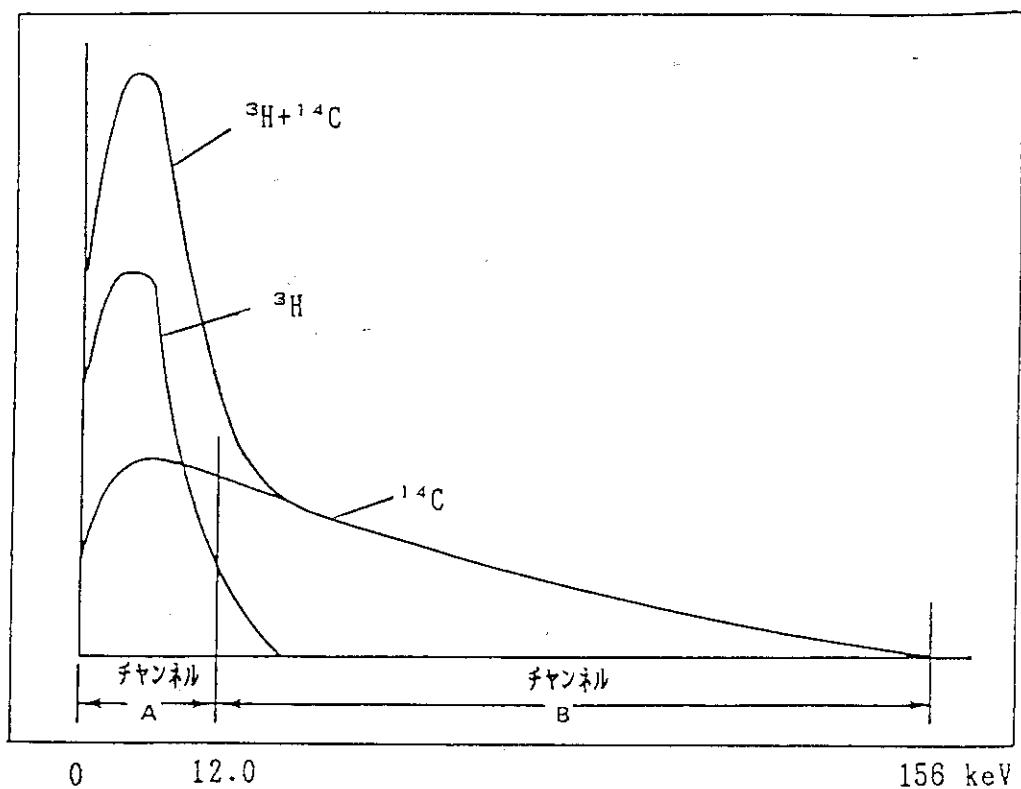
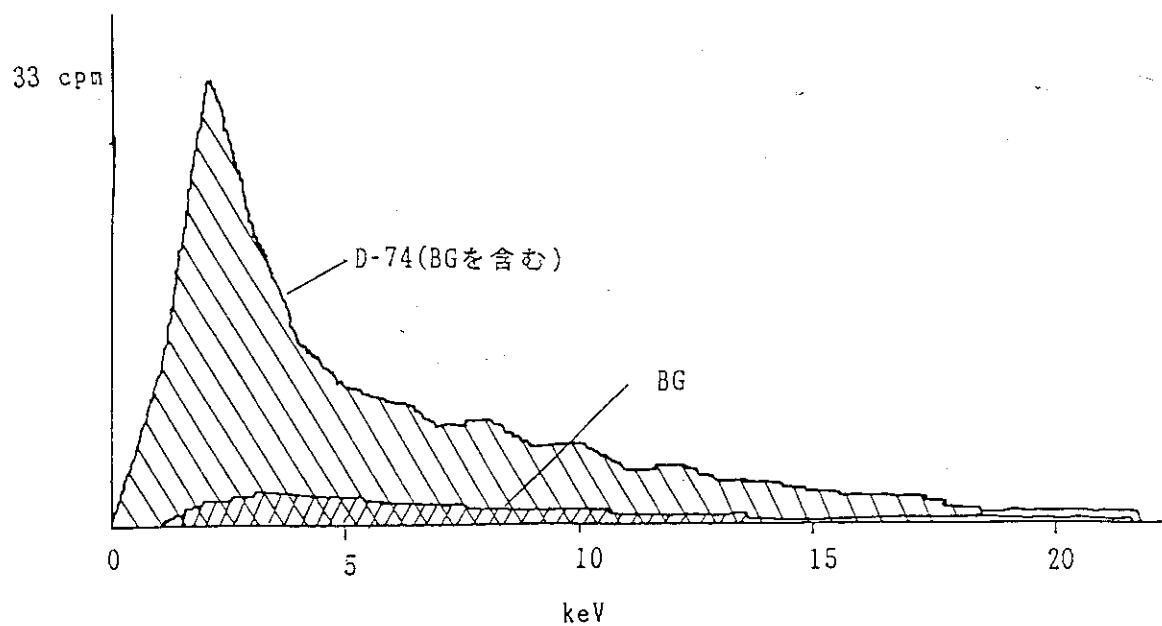
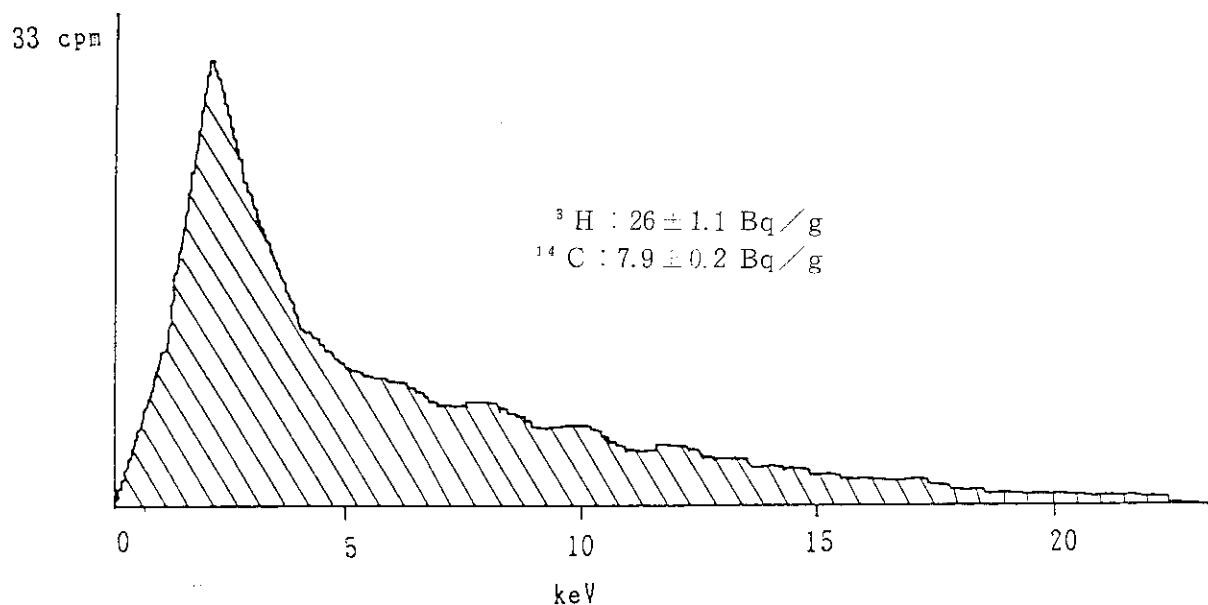


Fig. 8 Liquid scintillation spectra of non quenching  ${}^3\text{H}$  and  ${}^{14}\text{C}$



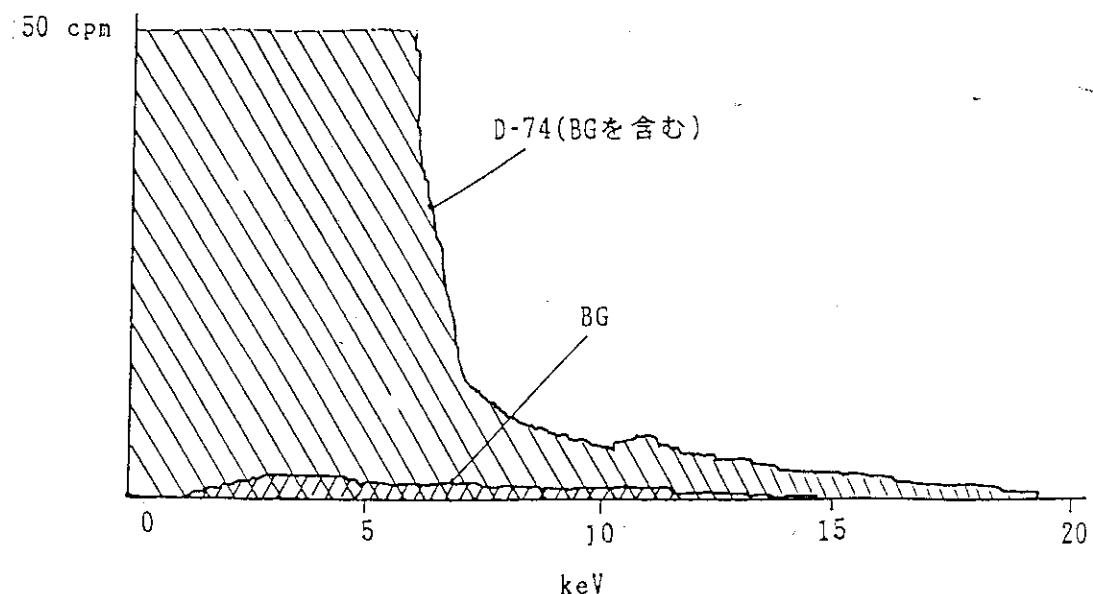
(1) バックグラウンドを含んだスペクトル



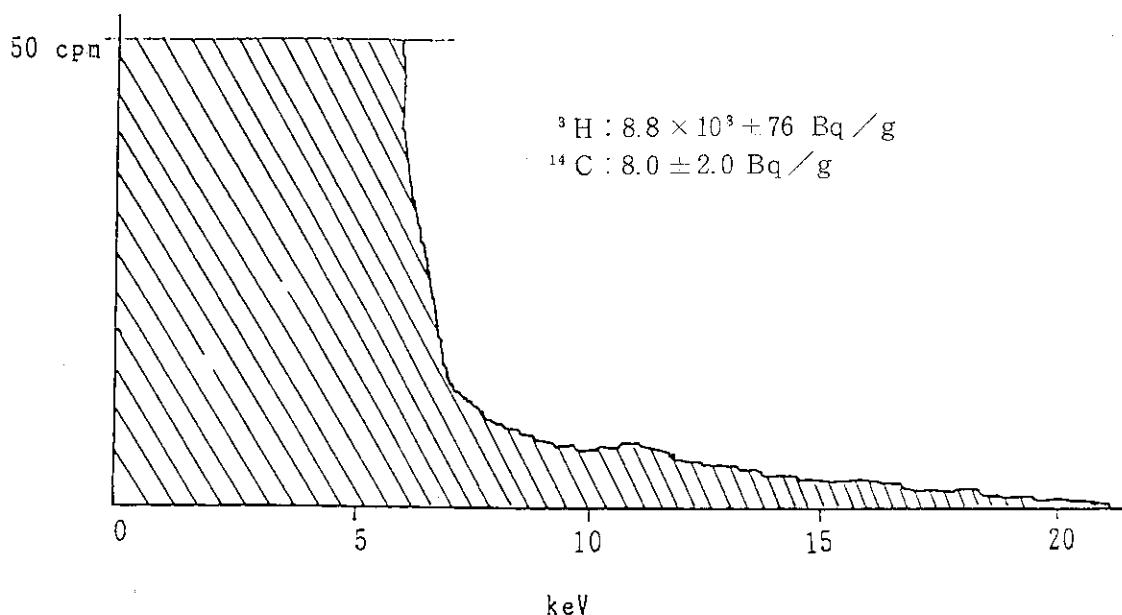
(2) バックグラウンドを差引いたスペクトル

試料 : D - 74 (0.9 g), 計数時間 : 30分間,  
クエンチングレベル : 113 (tSIE)

Fig. 9 Liquid scintillation spectra of extracted gases from biological shielding concrete sample by the strong phosphoric acid decomposition method



(1) バックグラウンドを含んだスペクトル



(2) バックグラウンドを差引いたスペクトル

試料：D-74(0.9g), 計数時間：30分間,  
クエンチングレベル：112(t SIE)

Fig. 10 Liquid Scintillation spectra of extracted gases from  
biological shielding concrete sample by the high  
frequency induction heating method

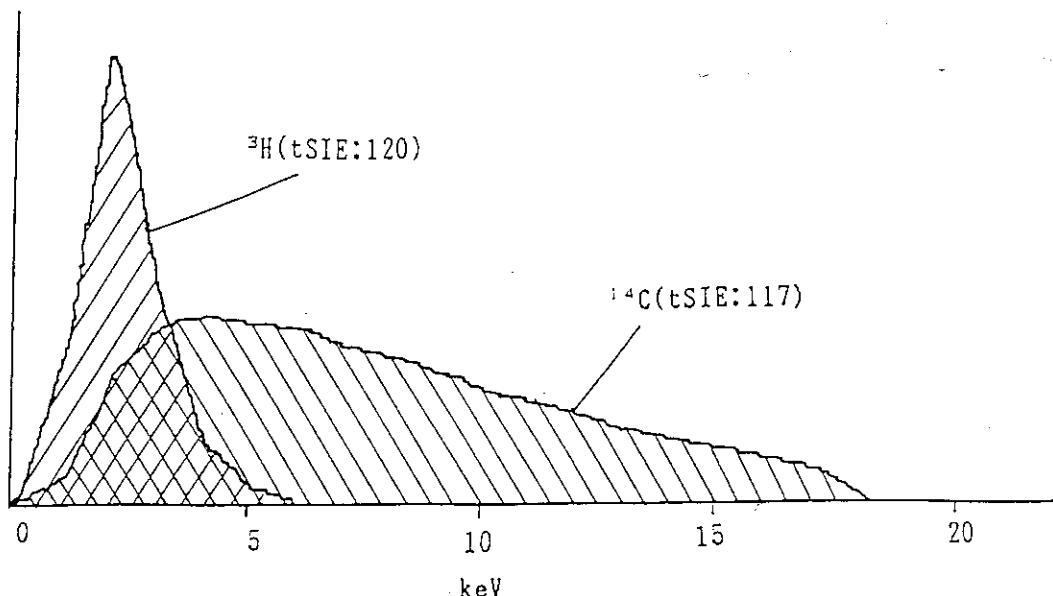
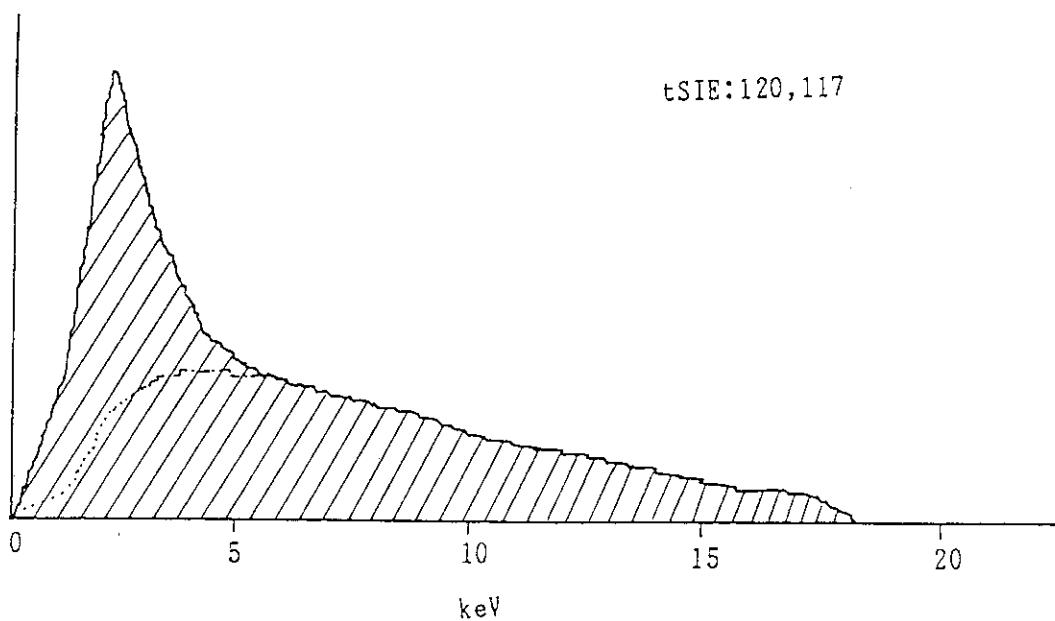
(1)  ${}^3\text{H}$ 及び ${}^{14}\text{C}$ のスペクトル(2)  ${}^3\text{H}$ 及び ${}^{14}\text{C}$ の合成スペクトル

Fig. 11 Liquid scintillation spectra of extracted  ${}^3\text{H}$  and  ${}^{14}\text{C}$  from biological shielding concrete sample-same quenching level of standard samples to biological shielding concrete sample

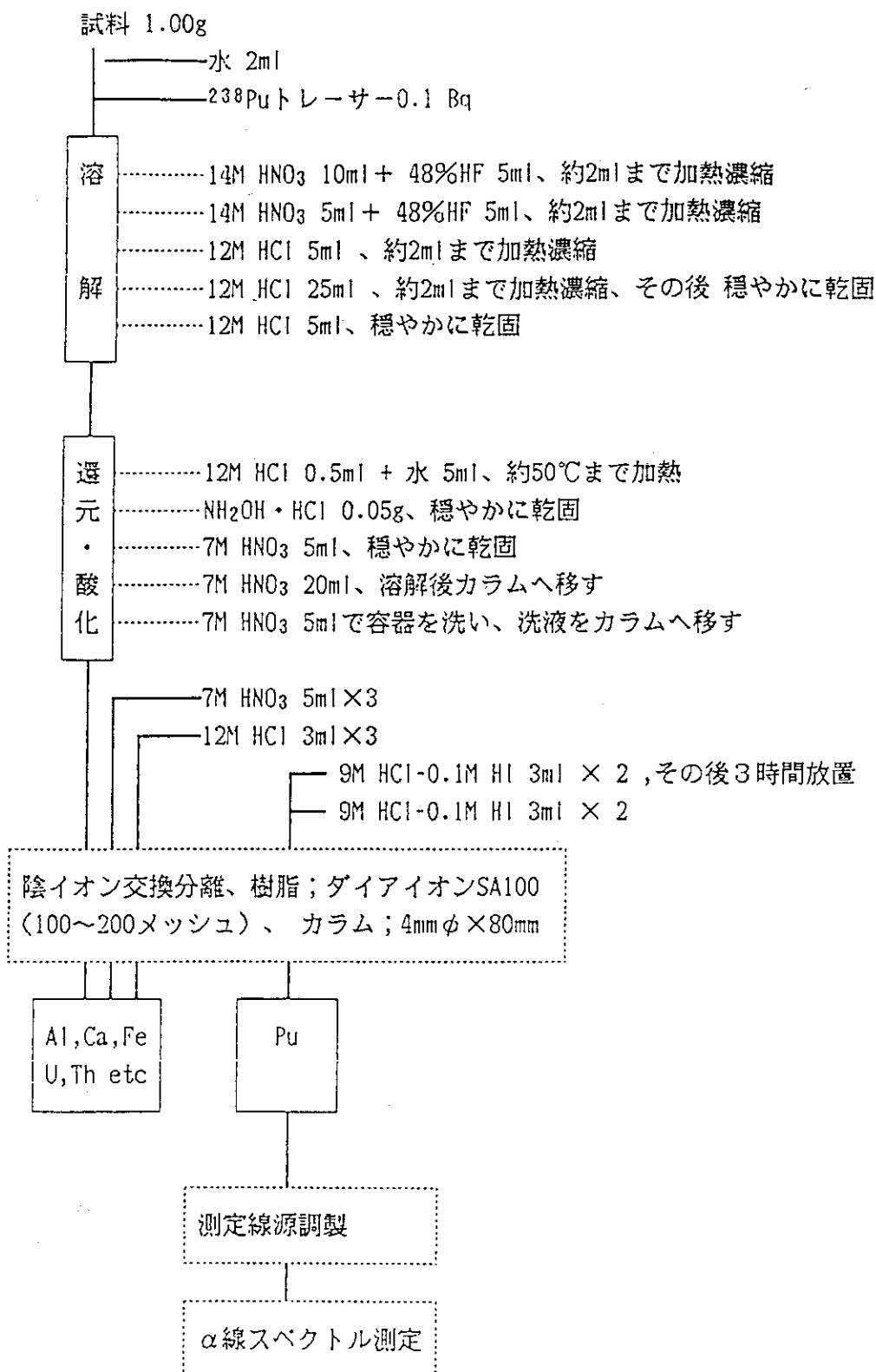
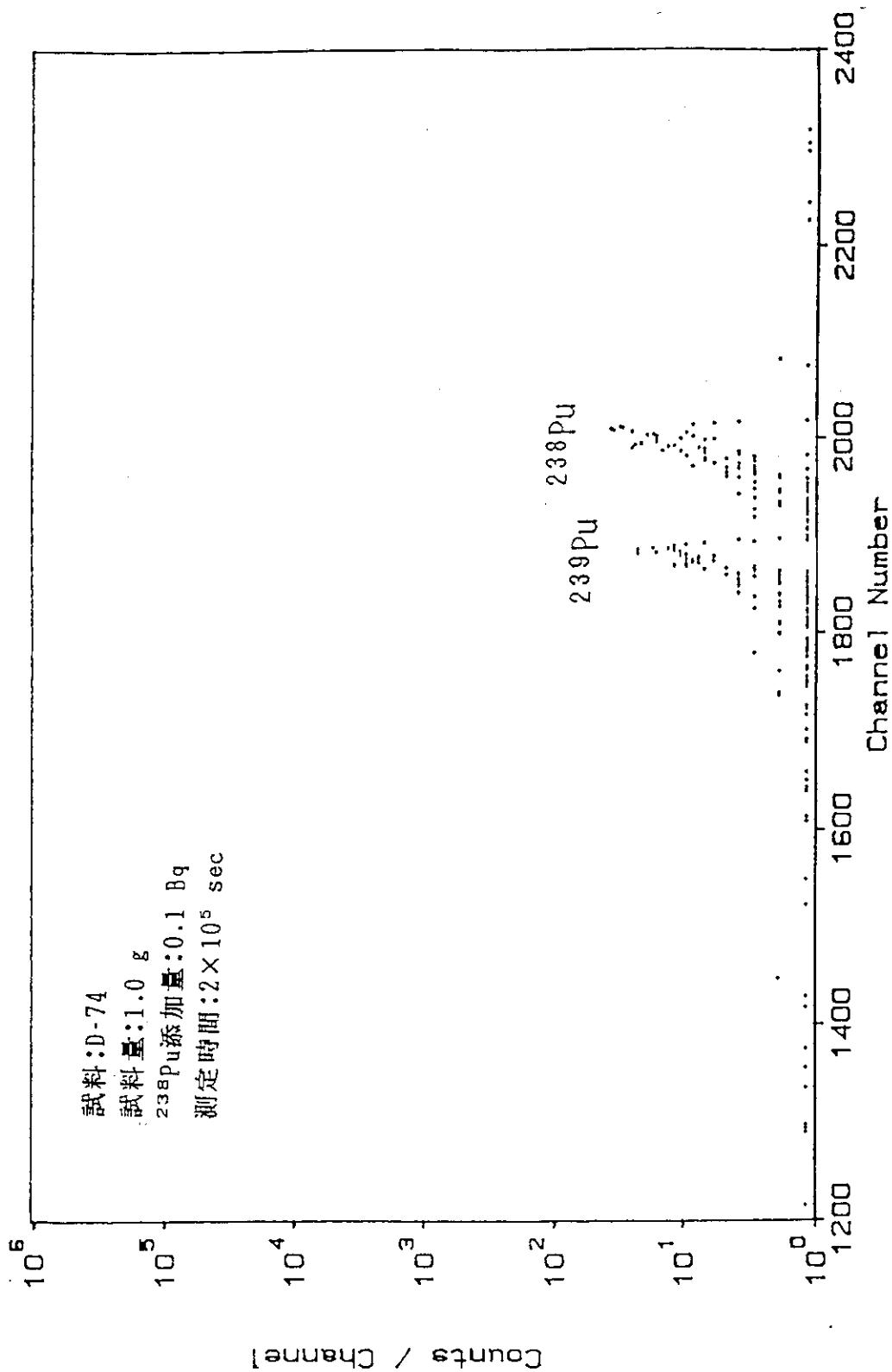


Fig. 12 Procedure for determination of  $^{239}\text{Pu}$  in biological shielding concrete sample

Fig. 13  $\alpha$ -ray spectrum of  $^{238}\text{Pu}$  spiked biological shielding concrete sample

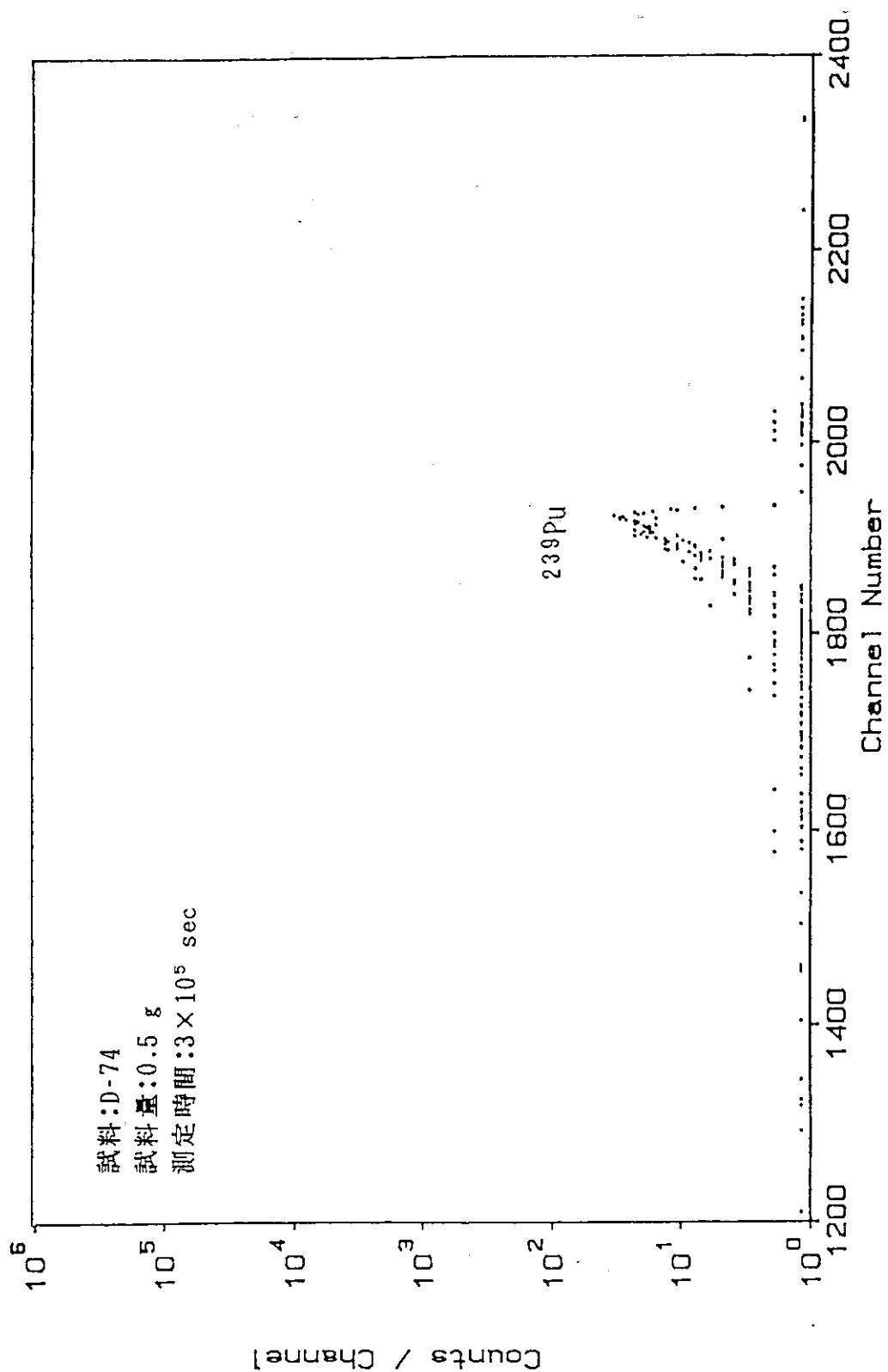
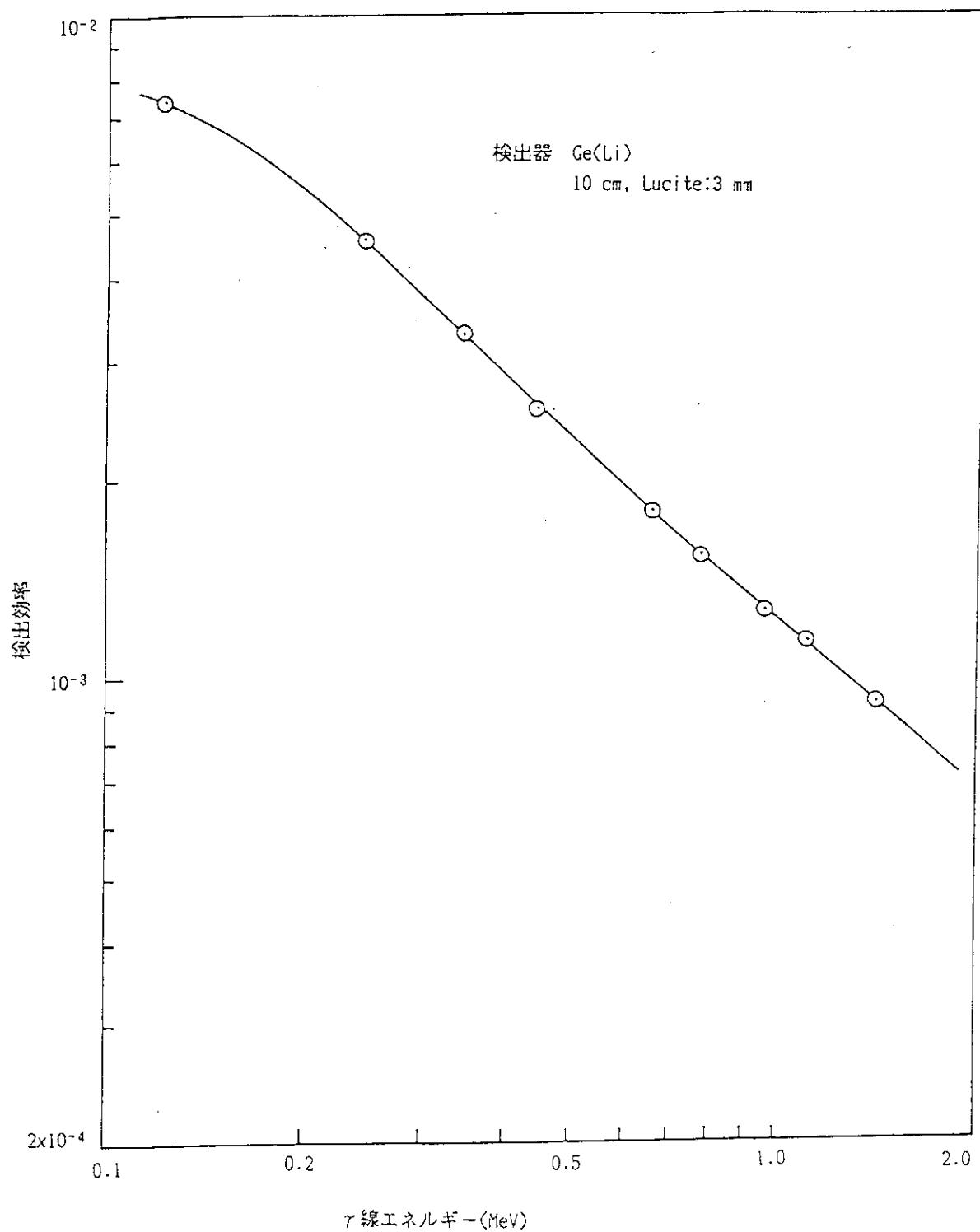
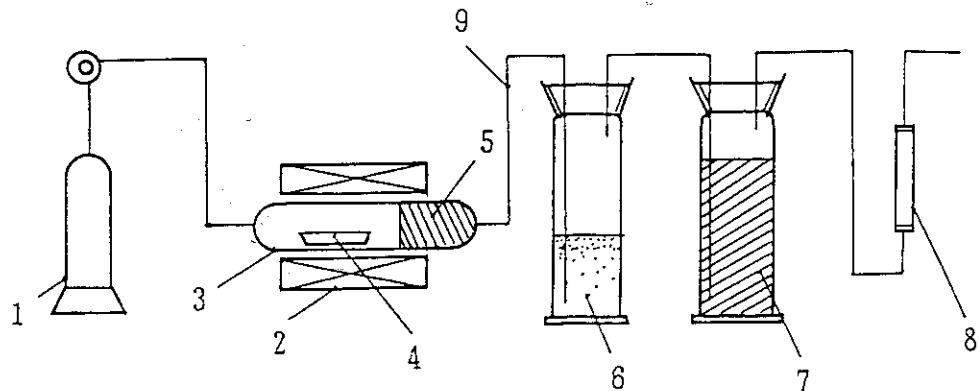


Fig. 14  $\alpha$ -ray spectrum of unspiked biological shielding concrete sample

Fig. 15 Relation between detection efficiency and  $\gamma$ -ray energy



1 : 酸素容器 2 : 抵抗加熱炉 3 : 燃焼管 4 : 試料用ボート  
5 : 石英ウール 6 :  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$  捕集瓶(モノエタノーアミン)  
7 : シリカゲル 8 : 流量計 9 : 配管 (テフロンチューブ)

Fig. 16 Apparatus for extracting  $^3\text{H}$  and  $^{14}\text{C}$  in ion exchange resin sample by the combustion method

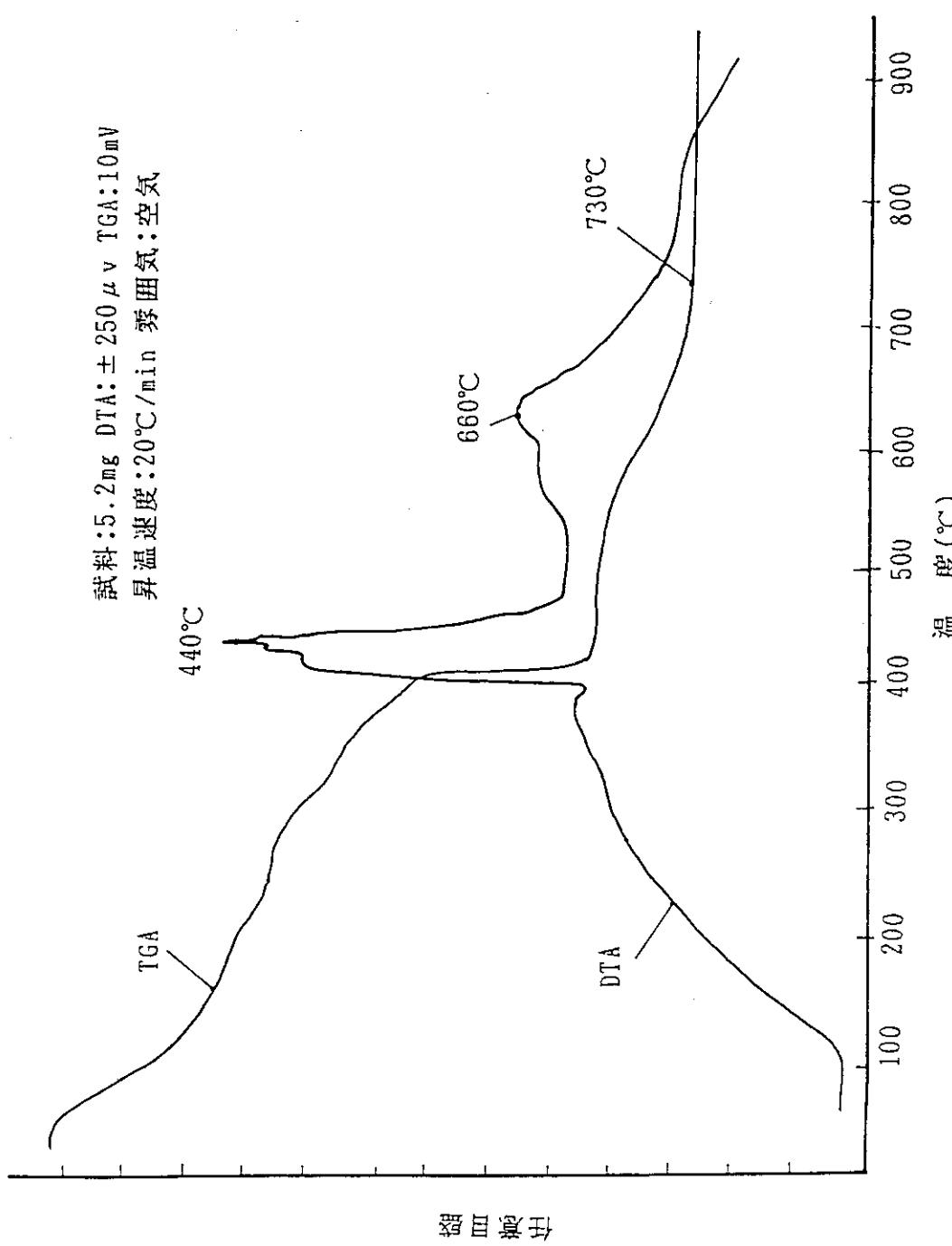


Fig. 17 Thermal analysis of ion exchange resin sample

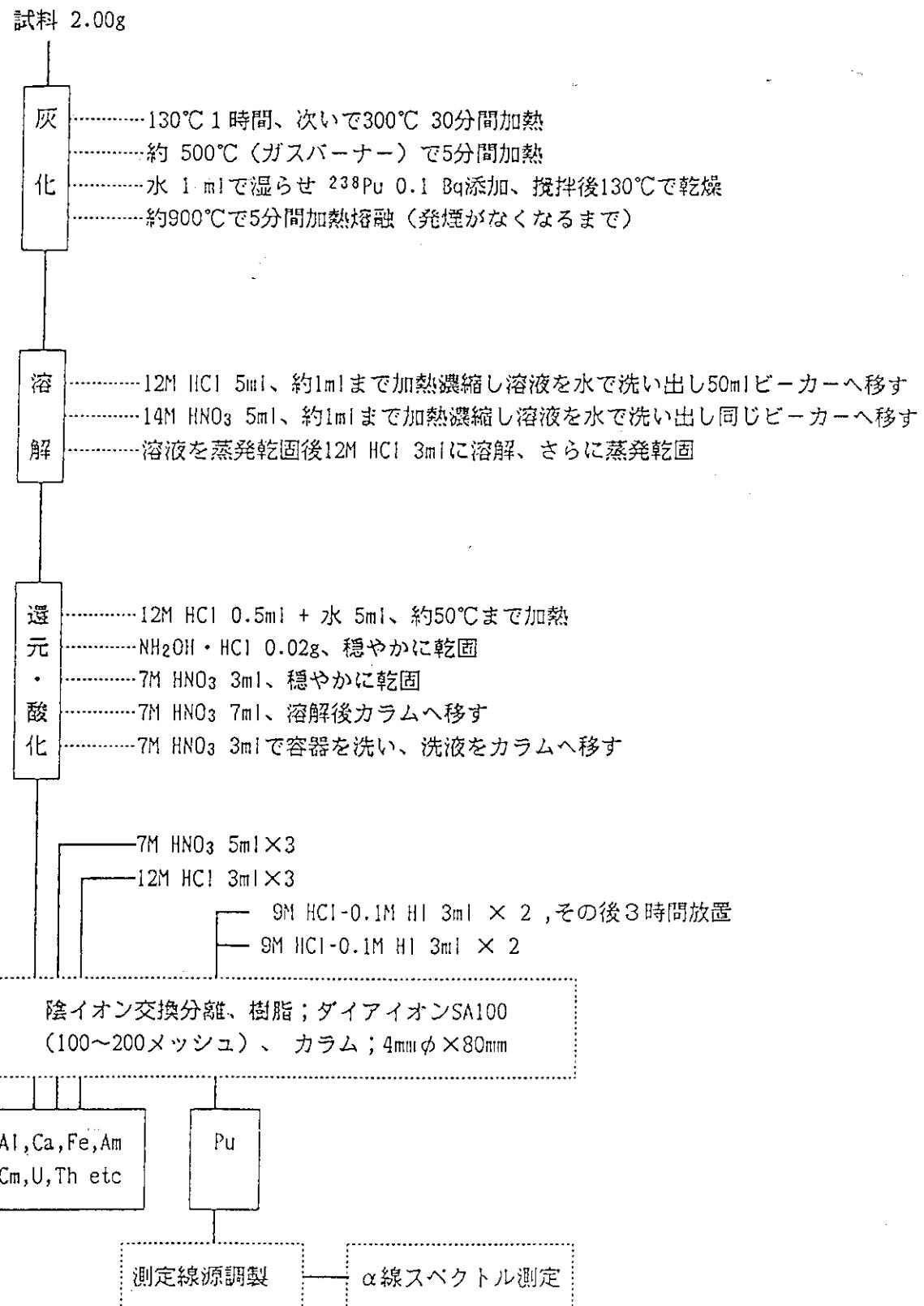
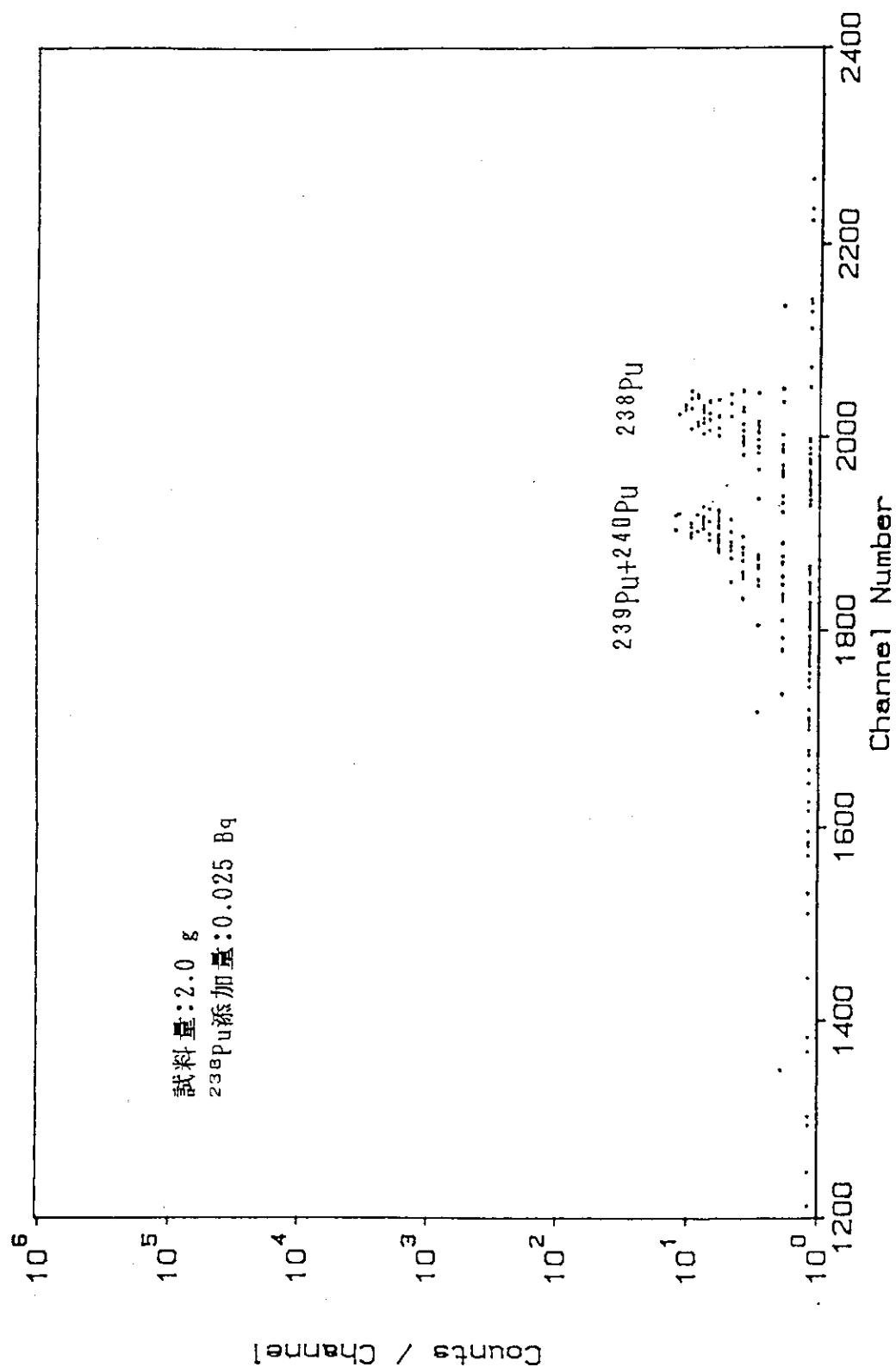
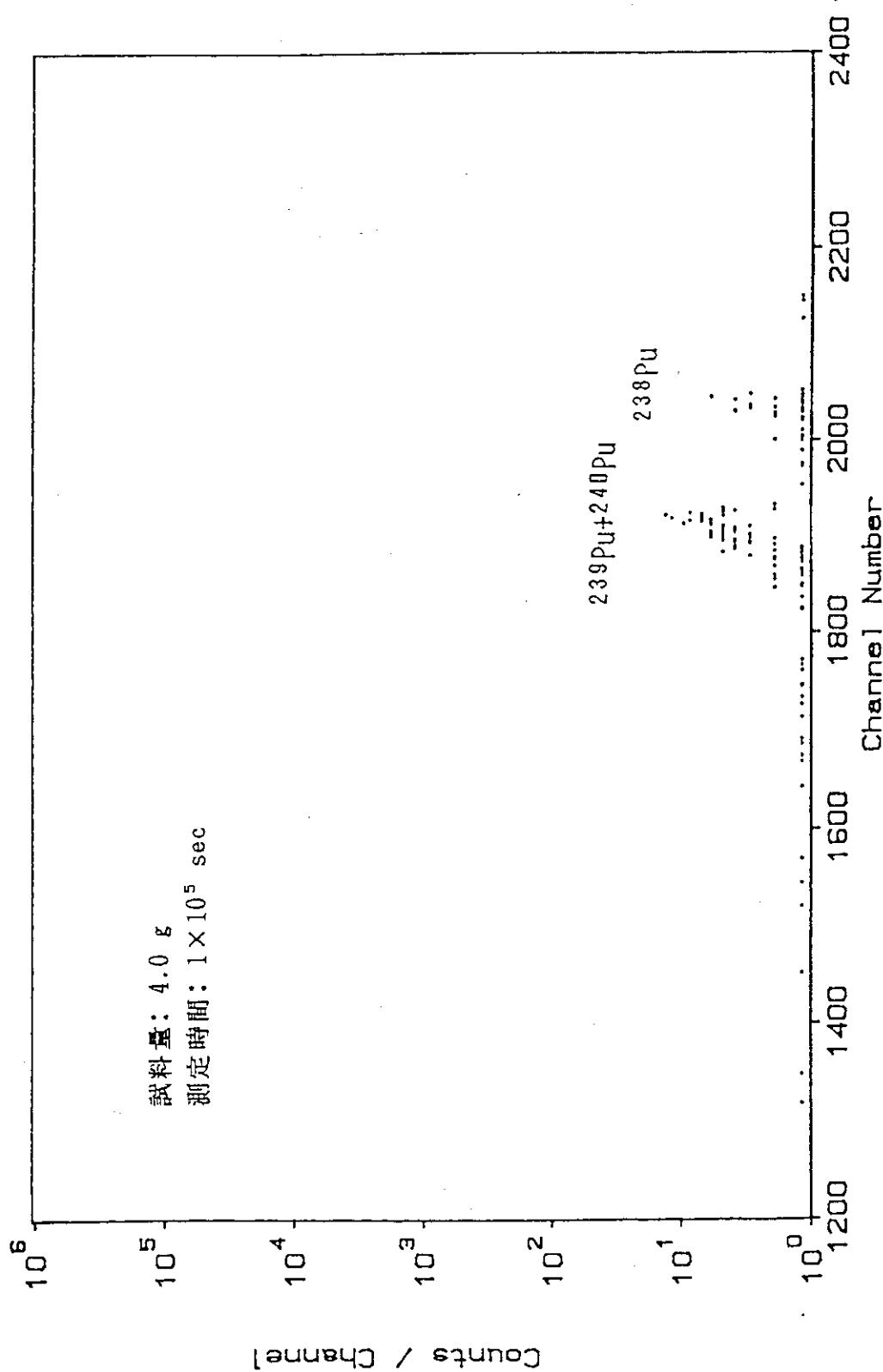
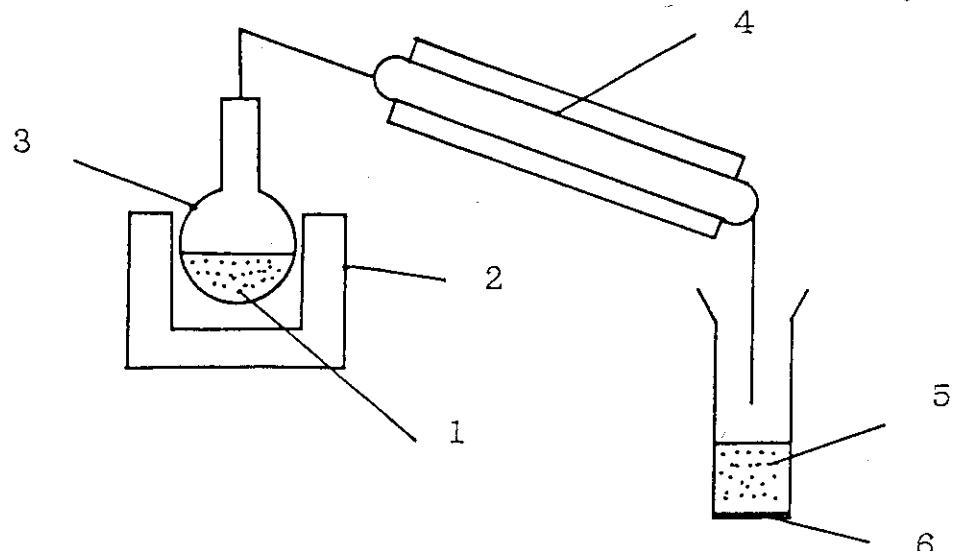


Fig. 18 Procedure for determination of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{240}\text{Pu}$  in ion exchange resin sample

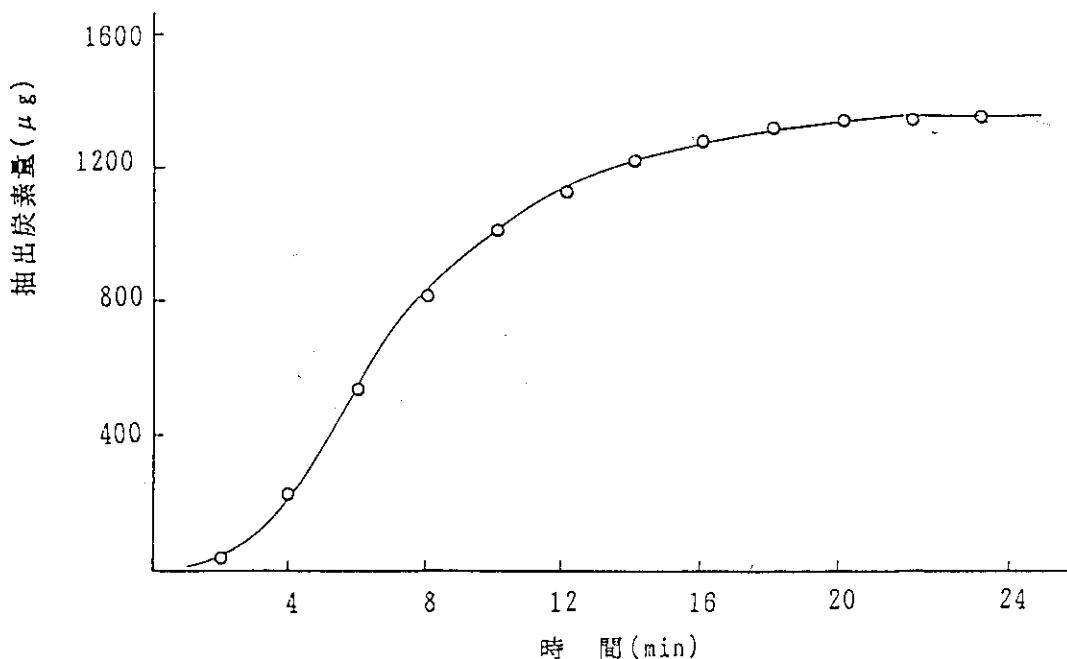
Fig. 19  $\alpha$ -ray spectrum of  $^{238}\text{Pu}$  spiked ion exchange resin sample

Fig. 20  $\alpha$ -ray spectrum of unspiked ion exchange resin sample



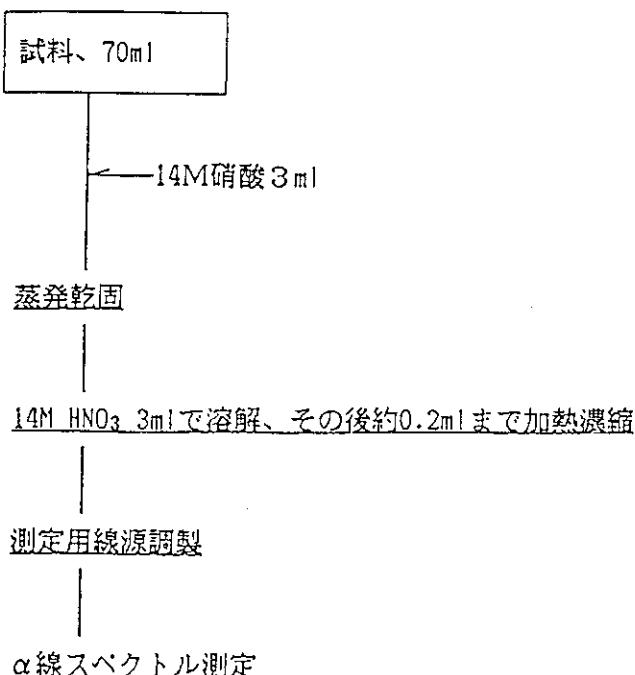
1 : 試料 ; 2 : ヒーター ; 3 : フラスコ ;  
4 : 冷却器 ; 5 : 精製プール水 ; 6 : 捕集瓶

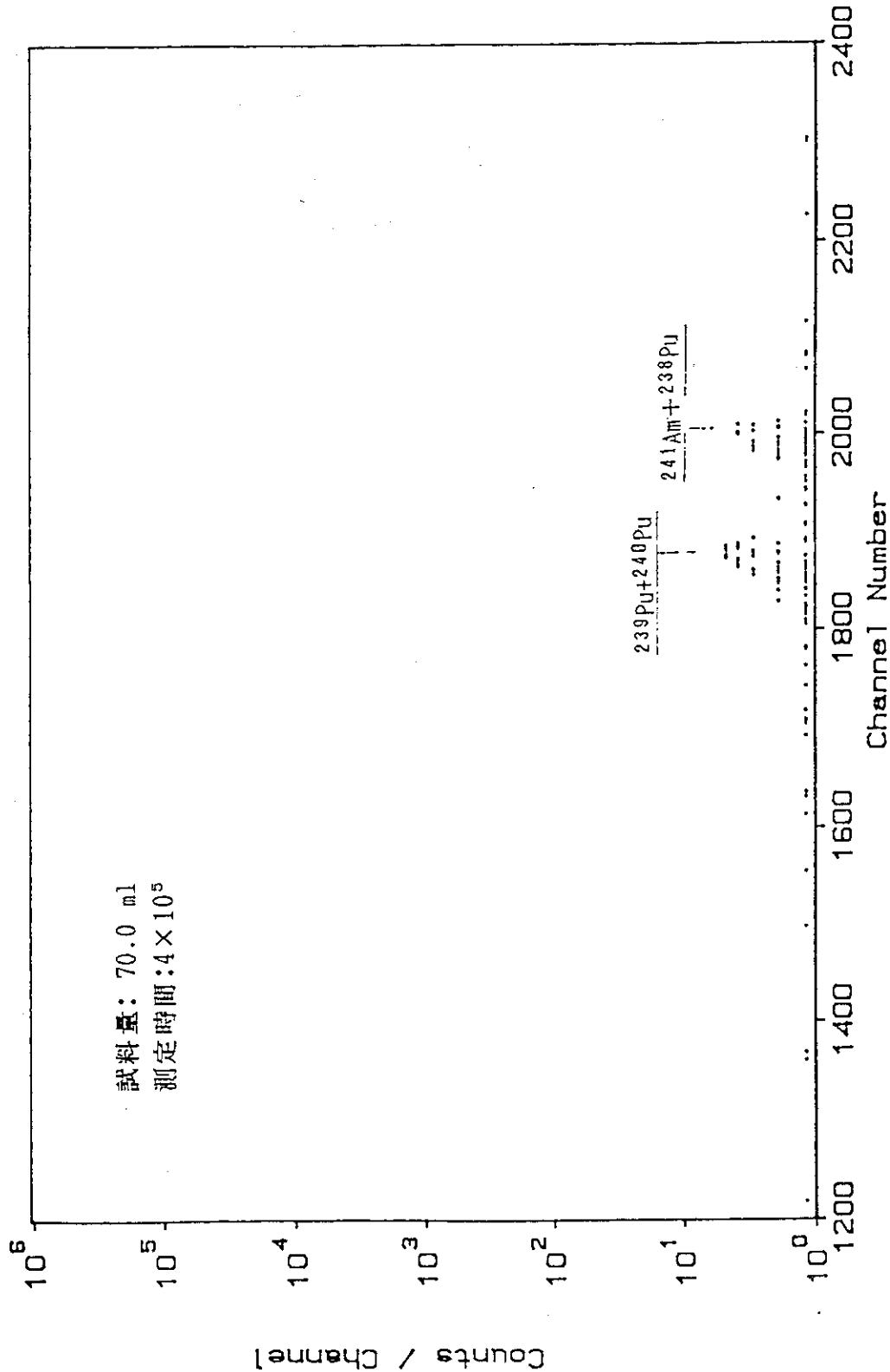
Fig. 21 Apparatus for purifying spent fuel storage pool water sample



炭酸ナトリウム : 12 mg / 10 ml    硫酸 : 6 N, 10 ml  
酸素 : 100 ml / min

Fig. 22 Acid decomposition of carbonate ion in water

Fig. 23 Procedure for determination of  $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$  in spent fuel storage pool water sample

Fig. 24  $\alpha$ -ray spectrum of spent fuel storage pool water sample