

JAERI-Review

95-007



原子炉研修所における放射化学実験

1995年6月

吾勝永子

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

本レポートは、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。

入手の間合わせは、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、お申しこみください。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。

This 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, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1995

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 ニッセイエプロ株式会社

原子炉研修所における放射化学実験

日本原子力研究所原子力総合研修センター

吾勝 永子

(1995年4月3日受理)

1976年から1994年までの間に原子炉研修部門で実施された研修生実習のうち化学関連の実験について報告する。実験には溶媒抽出、 ^{60}Co のイオン交換のように一般課程の研修生全員に対して実施したもののほか、一般課程および原子炉工学専門課程で選択実験として実施した海水中 ^{137}Cs の捕集、 ^{87}Rb の半減期測定があり、それぞれ実習の開発、実施状況と結果について述べた。また一般課程の燃焼率測定実習では、改善と実施状況について述べた。

Educational Experiments of Radiochemistry
in the Nuclear Engineering School

Eiko AKATSU

Nuclear Education Center
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received April 3, 1995)

Educational experiments of radiochemistry are described. They were an improvement of educational experiment of burn-up measurement as well as experiments on a solvent extraction, a cation exchange behavior of ^{60}Co , liquid scintillation spectrometry and half-life determination of ^{87}Rb , and determination of ^{137}Cs in sea water. Two or one of the experiments were ordinarily studied, depending the occasional situation, by the students of the general course or of the nuclear engineering course in the Nuclear Engineering School, Nuclear Education Center, JAERI from 1976 to 1994.

Keywords : Educational Experiment, Radiochemistry

目 次

| | |
|--|----|
| 1. まえがき | 1 |
| 2. 原子炉研修部門における放射化学実験 | 2 |
| 2.1 溶媒抽出 | 2 |
| 2.1.1 溶媒抽出実験器具、薬品類 | 2 |
| 2.1.2 実験マニュアル(放射化学実験—溶媒抽出) | 2 |
| 2.2 イオン交換 | 13 |
| 2.2.1 イオン交換実験器具、薬品類 | 13 |
| 2.2.2 実験マニュアル(放射化学実験—イオン交換) | 13 |
| 2.3 海水中の ¹³⁷ Csの測定 | 33 |
| 2.3.1 海水中 ¹³⁷ Csの測定における化学分離実験器具、薬品類 | 33 |
| 2.3.2 実験マニュアル(海水中の ¹³⁷ Csの測定) | 33 |
| 2.4 ⁸⁷ Rbの半減期の測定 | 36 |
| 2.4.1 ⁸⁷ Rbの半減期測定における実験器具、薬品類 | 36 |
| 2.4.2 ⁸⁷ Rbの半減期測定実習 | 36 |
| 2.5 燃焼率測定実験の改良 | 37 |
| 2.5.1 燃焼率測定実験試料作成法 | 37 |
| 2.5.2 実験マニュアル(燃焼率測定実験) | 37 |
| 3. 研修生実験の実施状況と結果および考察 | 42 |
| 3.1 溶媒抽出の実習 | 42 |
| 3.1.1 溶媒抽出の実習の歴史 | 42 |
| 3.1.2 溶媒抽出実習の状況と実験結果および考察 | 47 |
| 3.2 イオン交換の実習 | 51 |
| 3.2.1 研修生実習としてのイオン交換実験の開発 | 51 |
| 3.2.2 研修生実習の状況と実験結果および考察 | 52 |
| 3.3 海水中の ¹³⁷ Csの測定実習 | 57 |
| 3.3.1 実習の目的 | 57 |
| 3.3.2 化学分離実験の状況 | 58 |
| 3.3.3 放射線計測の状況 | 59 |
| 3.3.4 研修生実習の実験結果と考察 | 59 |
| 3.4 ⁸⁷ Rbの半減期の測定実習 | 64 |
| 3.4.1 シンチレーションカクテルを用いた ⁸⁷ Rbの半減期の測定と研修生実験 | 64 |
| 3.4.2 研修生実習の状況と実験結果および考察 | 64 |
| 3.5 燃焼率測定実験の改良 | 67 |
| 3.5.1 燃焼率測定実習のための試料について | 67 |

| | |
|----------------------------|----|
| 3.5.2 研修生実習の状況と実験結果および考察 | 68 |
| 4. 原子炉研修部門における放射化学関連実習のあり方 | 76 |
| 謝 辞 | 79 |
| 引用文献 | 80 |

Contents

| | |
|---|----|
| 1. Foreword..... | 1 |
| 2. Radiochemical Experiments in the Nuclear Engineering School | 2 |
| 2.1 Solvent Extraction..... | 2 |
| 2.1.1 Experimental | 2 |
| 2.1.2 Manual(Experiment of Radiochemistry-solvent Extraction)..... | 2 |
| 2.2 Ion Exchange..... | 13 |
| 2.2.1 Experimental | 13 |
| 2.2.2 Manual(Experiment of Radiochemistry-ion Exchange)..... | 13 |
| 2.3 Determination of ^{137}Cs in Sea Water)..... | 33 |
| 2.3.1 Experimental | 33 |
| 2.3.2 Manual(Determination of ^{137}Cs in Sea Water)..... | 33 |
| 2.4 Half-life Measurement of ^{87}Rb | 36 |
| 2.4.1 Experimental | 36 |
| 2.4.2 Educational Experiment of ^{87}Rb Half-life Measurement | 36 |
| 2.5 Improvement of the Educational Experiment on Burn-up Determination.... | 37 |
| 2.5.1 Preparation of the Samples on Burn-up Determination..... | 37 |
| 2.5.2 Manual(Burn-up Determination)..... | 37 |
| 3. Results and Discussion on the Educational Experiments | 42 |
| 3.1 Educational Experiment of the Solvent Extraction..... | 42 |
| 3.1.1 History..... | 42 |
| 3.1.2 Results and Discussion | 47 |
| 3.2 Educational Experiment of the Ion Exchange..... | 51 |
| 3.2.1 Development of the Experiment..... | 51 |
| 3.2.2 Results and Discussion | 52 |
| 3.3 Educational Experiment on the Determination of ^{137}Cs in Sea Water | 57 |
| 3.3.1 Purpose of the Experiment..... | 57 |
| 3.3.2 Chemical Separation of ^{137}Cs in Sea Water..... | 58 |
| 3.3.3 Measurement of the ^{137}Cs Radioactivity | 59 |
| 3.3.4 Results and Discussion | 59 |
| 3.4 Educational Experiment of ^{87}Rb Half-life Measurement..... | 64 |
| 3.4.1 Determination of ^{87}Rb Half-life by a Scintillation Cocktail and the Educational Experiment | 64 |
| 3.4.2 Results and Discussion | 64 |
| 3.5 Improvement of the Educational Experiment on Burn-up Determination.... | 67 |

| | |
|--|----|
| 3.5.1 Preparation of the Samples on Burn-up Determination..... | 67 |
| 3.5.2 Results and Discussion | 68 |
| 4. Discussion on the Radiochemical Experiments in the Nuclear Engineering School..... | 76 |
| Acknowledgement | 79 |
| Reference | 80 |

1. まえがき

1976年著者が原子炉研修部門に着任して以来、20年の間に開発、実施した化学系の研修生実験について述べる。一般課程を中心に、一部原子炉工学専門課程で実施した実習である。一般課程の研修生全員に対する必須課目として溶媒抽出実験、つづいて ^{60}Co の陽イオン交換実験を、また一般課程選択実験のひとつとして海水中 ^{137}Cs の捕集を実施した。イオン交換実験を一般課程で本格的に実施する以前には、研修生実験としての開発のために一般課程と原子炉工学専門課程で、また ^{87}Rb の半減期測定実験をおもに原子炉工学専門課程で、選択実験として実施した。また溶媒抽出実験を原子炉工学専門課程で選択課目のひとつとして実施したこともある。燃焼率の測定実験は、測定試料の作成法を改良し、一般課程で必須課目として実施された。

2 原子炉研修部門における放射化学実験

2.1 溶媒抽出

溶媒抽出実験は、1965年頃に始まったようである。1976年以降1985年までは、著者が原子炉研修部門の担当講師として改良を加えながら、一般課程で実施した。

2.1.1 溶媒抽出実験器具、薬品類

1981年から1985年に実施した溶媒抽出実験について述べる。

りん酸トリブチル (TBP) : 市販のTBPを1M NaOHで数回洗浄 (不純物除去のため)、ひきつづき1M HCl、蒸留水でそれぞれ数回、2リットルの分液ロート、攪はん器等を使用して洗浄したもの。約10 [ml] × 8班。

硝酸、臭素酸カリウム : 市販の特級品をそのまま使用

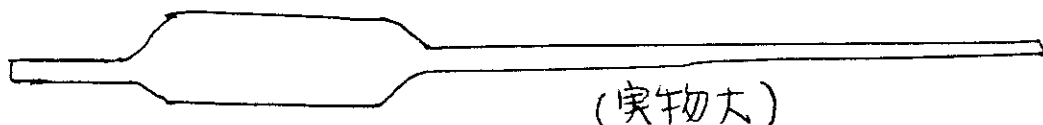
上皿天秤 : メトラー社製、P1210

5 [ml] ガラス製共栓つきメスシリンダー : 1 [ml] ごとおよび0.1 [ml] ごとに目盛りつき。実験終了後洗浄して再使用、のちに使い捨て。分離実験用2本 × 8班。

10 [ml] ガラス製共栓つきメスシリンダー : 1 [ml] ごとおよび0.1 [ml] ごとに目盛りつき。実験終了後洗浄して再使用、のちに使い捨て。TBP前処理用1本 × 8班。

注射筒 : 10 [ml] のガラス製注射筒に長さ約1.5 [cm] の細いゴム管をつけたもの2本 (フードと教官の数から、1回に2班ずつ実験したため)。

ガラスピペット : 使い捨て。約3 [ml] が入るもの (下図)。当初手作り、のち外注。数本 × 8班。



(実物大)

ガラス製棒状びん (ポリエチレン棒状びん) : 1 [ml] の目盛りつき、共栓つき。実習終了後洗浄して再使用。のちポリエチレン棒状びんに変更。1本 × 8班。

ステンレス製皿 : 直径1インチ。1個 × 8班。

5種A濾紙 : 1枚 × 8班 (ステンレス皿に合わせて切るためのはさみが必要)

井戸型シンチレーションカウンター : 3 in. × 3 in. NaI (Tl) 使用

GMカウンター : ALOKA製スケーラータイマー使用

2.1.2 実験マニュアル (放射化学実験 - 溶媒抽出)

1981年に作成、1985年まで使用した実験マニュアルを以下に示す。

(図、表および参考文献にはアンダーラインをつけ、本文と区別した)

実験マニュアル 1. 溶媒抽出

使用済み燃料の再処理では、りん酸トリブチル (TBP) - 硝酸系による溶媒抽出が行われる。溶媒抽出とは、“ある溶媒の中にとけている物質をその溶媒と溶け合わない別な溶媒を加え

て、その中に抽出すること”と定義され、その特徴はつぎのようである。

特徴① 分離しようとする物質の濃度範囲をトレース量からマクロ量まで幅ひろくとることができる。

特徴② 通例速く平衡に達するので操作が単純なこともあり迅速分離に使える。

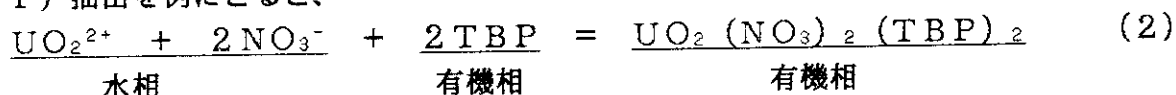
特徴③ 沈澱法にみられる共沈に相当する現象はほとんど知られていない。

特徴④ 液体を扱うので、連続的な操作が可能である。

溶媒抽出において二相に分配する物質の挙動は相律や分配の法則によって支配され、分配の様子は同じ化学種の各相における濃度比、分配係数であらわされる。しかし無機化合物の場合二相中の化学種がおなじである例はほとんどない。このため抽出挙動を知るための“めやす”として実用的な分配比 (K_d) や抽出百分率 (E) がよく用いられる。ある物質の分配比はつぎの式であらわされる。ある物質をAであらわすと、

$$K_d = \frac{\text{(第二の溶媒中のAの濃度)}}{\text{(第一の溶媒中のAの濃度)}} = \frac{E}{100-E} \cdot \frac{V_1}{V_2} \quad (1)$$

V_1 と V_2 は第一および第二の溶媒の容積である。第一、第二の溶媒は通例水溶液と有機溶媒であり、物質Aは水溶液中ではイオンや塩の形で、有機溶媒中では有機溶媒にとけやすい形すなわち有機化合物と錯化合物を生成して存在することが多い。硝酸ウラニルのりん酸トリブチル (TBP) 抽出を例にとると、



のようになる。

実験マニュアル 2. 核分裂生成物のTBP-HNO₃系における抽出

核分裂生成物中の放射性核種それぞれの量は時間とともに変化する。その様子を図1 (参考文献1) に示す。この図で7年経過した核分裂生成物を調べてみよう。多い方から

^{147}Pm , $^{90}\text{Sr}-\text{Y}$, $^{137}\text{Cs}-\text{Ba}$, ^{151}Sm , $^{144}\text{Ce}-\text{Pr}$, ^{85}Kr となる。この核分裂生成物の9M硝酸溶液とりん酸トリブチルをふりまぜて溶媒抽出を行った場合を考える。 ^{85}Kr は気体であるから除外する。また ^{147}Pm , ^{151}Sm , $^{144}\text{Ce}-\text{Pr}$ はランタノイドに属するので $^{144}\text{Ce}-\text{Pr}$ で代表させる。このときそれぞれの分配比は図2のようである (参考文献2)。

ここで計算をしてみよう。

問1. ある溶媒抽出系で有機相と水相の容積が等しく、分配比 K_d の物質を抽出して平衡になっているとする。この物質は有機相に何パーセント抽出されているか計算しなさい。

ヒント: 式(1)を用いる。

つぎに問1で得られた式を使って抽出分離の計算をしてみよう。

問2. 図2からCe(4), Ce(3), Pr, Cs, Ba, Sr, Yの9MHNO₃における分配比をよみとりなさい。そして、 $V_1 = V_2$ のとき、一回の抽出で、それぞれ何パーセントが有機相に抽出されるか計算しなさい。さらに得られた有機相と等容の9MHNO₃とをふりまぜる(スクラビング)と、有機相に何パーセントが残るか。ただし、Ce(4)は酸化剤が共存しないと不安定で、存在し得ないから、臭素酸カリウムKBrO₃のような酸化剤が共存するものとする。

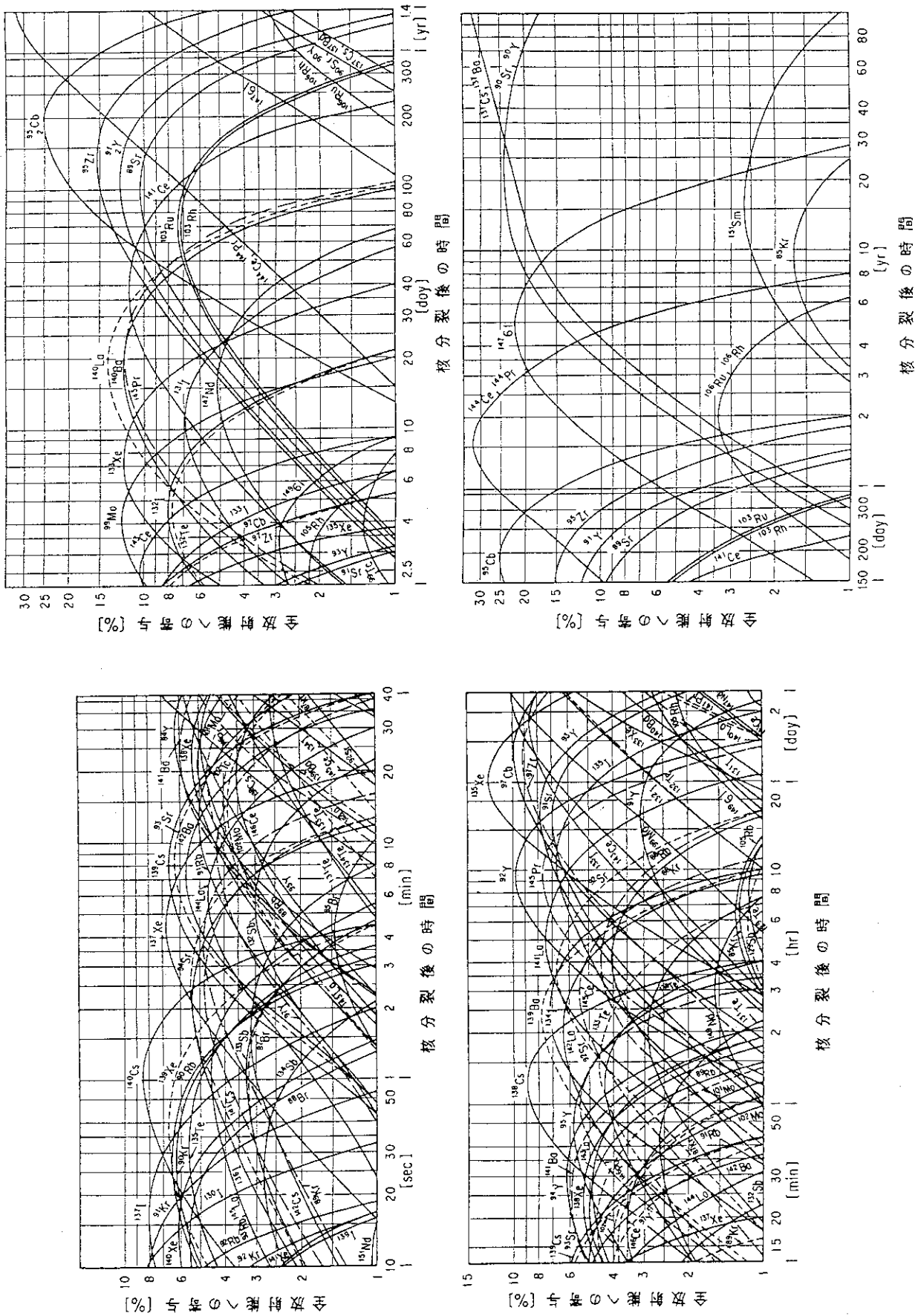


図1 核分裂生成物における放射能の相対強度の時間変化

ところでりん酸トリブチルはそれ自身硝酸を抽出する。このため新しいTBPと硝酸をふりまぜると硝酸の一部がTBP相にうつりその結果水相中の硝酸濃度が減少する。図2からも分かるように分配比は硝酸濃度によって変わるから、計画した抽出をそのとおりに行うにはこのような減少は望ましくない。そこでTBPを硝酸で、前処理して、充分硝酸を飽和させておく前処理(preequilibration)を行う。図3(参考文献3)に硝酸のTBP抽出における分配比を示す。この図から分かるように硝酸の分配もその濃度とともに変化する。

一度有機相に抽出した物質を水相にもどすことを逆抽出(back-extraction)という。分配比は図2に示すように硝酸濃度やpHのような水相の組成、およびTBP濃度や希釈剤の種類のような有機相の組成のほかセリウムの4価と3価のような分配する物質の状態によって変化する。したがって溶媒抽出では目的とする物質の分配比にとらみ合わせてできるだけ収率よくきれいに分離できる条件、すなわち抽出と逆抽出の条件をきめる。使用済み燃料の再処理ではウラン(6)とプルトニウム(4)を30%TBPに抽出してスクラビングしたのちプルトニウムを+3価にして水相に逆抽出、その後ウラン(6)を薄い硝酸で水相に逆抽出する。図2の分配比からこのプロセスが理解されるであろう。TBPの希釈剤には脂肪族炭化水素が用いられる。

実験マニュアル 3. 実験(第1日目)

(a) 100%TBP-HNO₃系を用い、¹⁴⁴Ceと¹⁴⁴Prの分離を行う。¹⁴⁴Prを含む水相の放射能を測定し、半減期をしらべる。

試料 ¹⁴⁴Ce-¹⁴⁴Prの9MHNO₃溶液

準備 (I) 9MHNO₃-0.1MKBrO₃溶液を10mlつくる。何グラムのKBrO₃が必要か計算し、コールド実習室ではかりとり、ホット実習室へ持ち込み、溶かす。

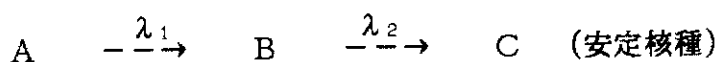
(II) 実験(2)も含めてTBPの必要量を取り9MHNO₃-0.1MKBrO₃溶液で前処理する。(ホット実習室で作業)

実験 手順を図4に示す。

(b) ¹⁴⁴Ce-¹⁴⁴Prのβ線のAl板による吸収の測定を行う。片対数グラフに測定値~Al吸収板厚さをプロットし、厚さゼロの時の計数値の10⁻⁴に相当するところのAl板厚さを求める。β線エネルギー~Al吸収板厚さの図(図5~7)(参考文献4,5)から、¹⁴⁴Ceと¹⁴⁴Prの最大飛程を求める。また、第2日目に¹⁴⁴Ceのβ線をカットして¹⁴⁴Prのβ線を測定する場合に使うAl吸収板を決める。なお、5種A濾紙2枚は約20[mg/cm²]のAl板に相当する。

実験マニュアル 4. 放射平衡とミルキング

放射性核種が壊変して生じる核種が放射性核種であって壊変系列をつくる場合放射平衡とよばれる現象がみられることがある。たとえばつぎの場合を考える。



A, Bは放射性核種、 λ_1, λ_2 はその壊変定数である。A, Bの時間 $t=0$ における原子数を N_1^0, N_2^0 , $t=t$ における原子数を N_1, N_2 とすると

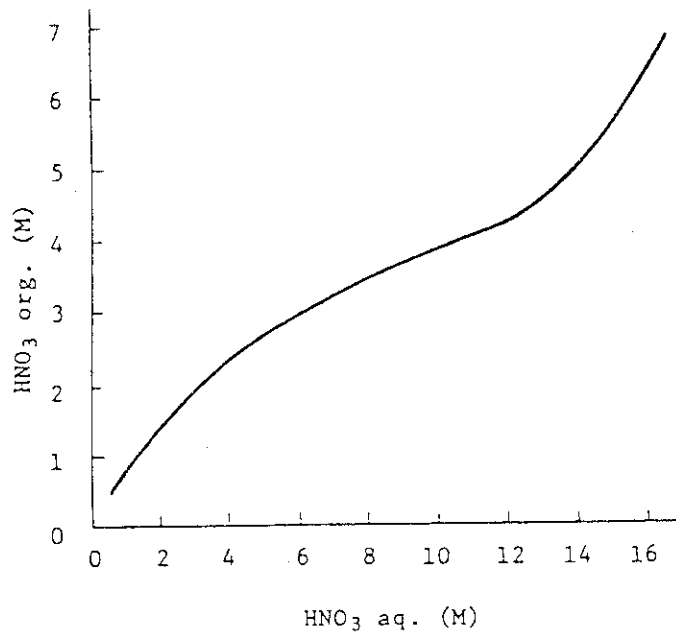


図3 HNO₃のTBP抽出 (22°C)

試料溶液 ¹⁴⁴Ce-Pr 9MHNO₃ soln. (2~3ml)

臭素酸カリウム少量加える

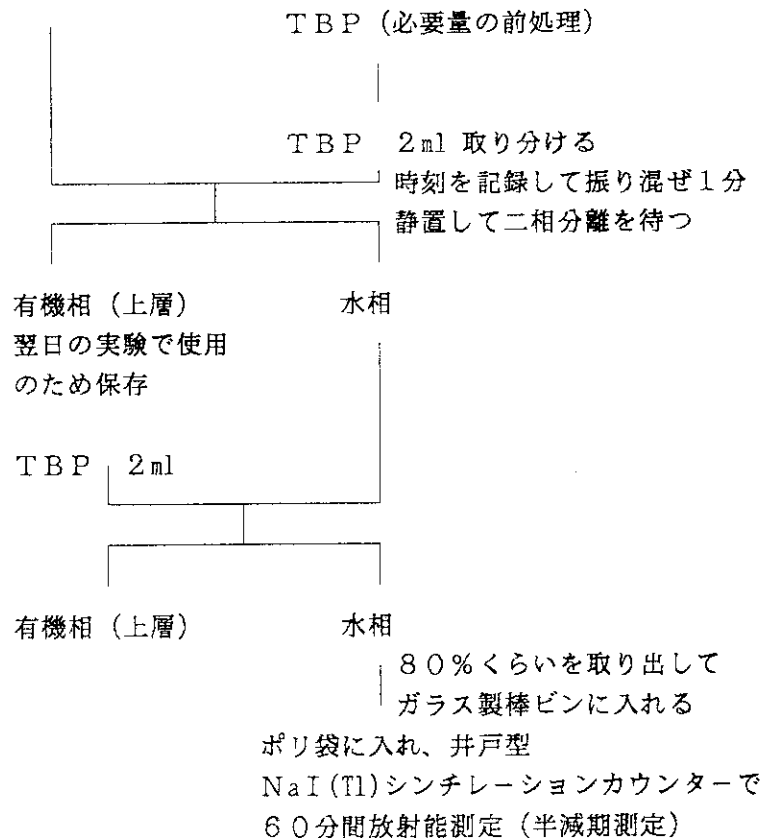


図4 実験(1)

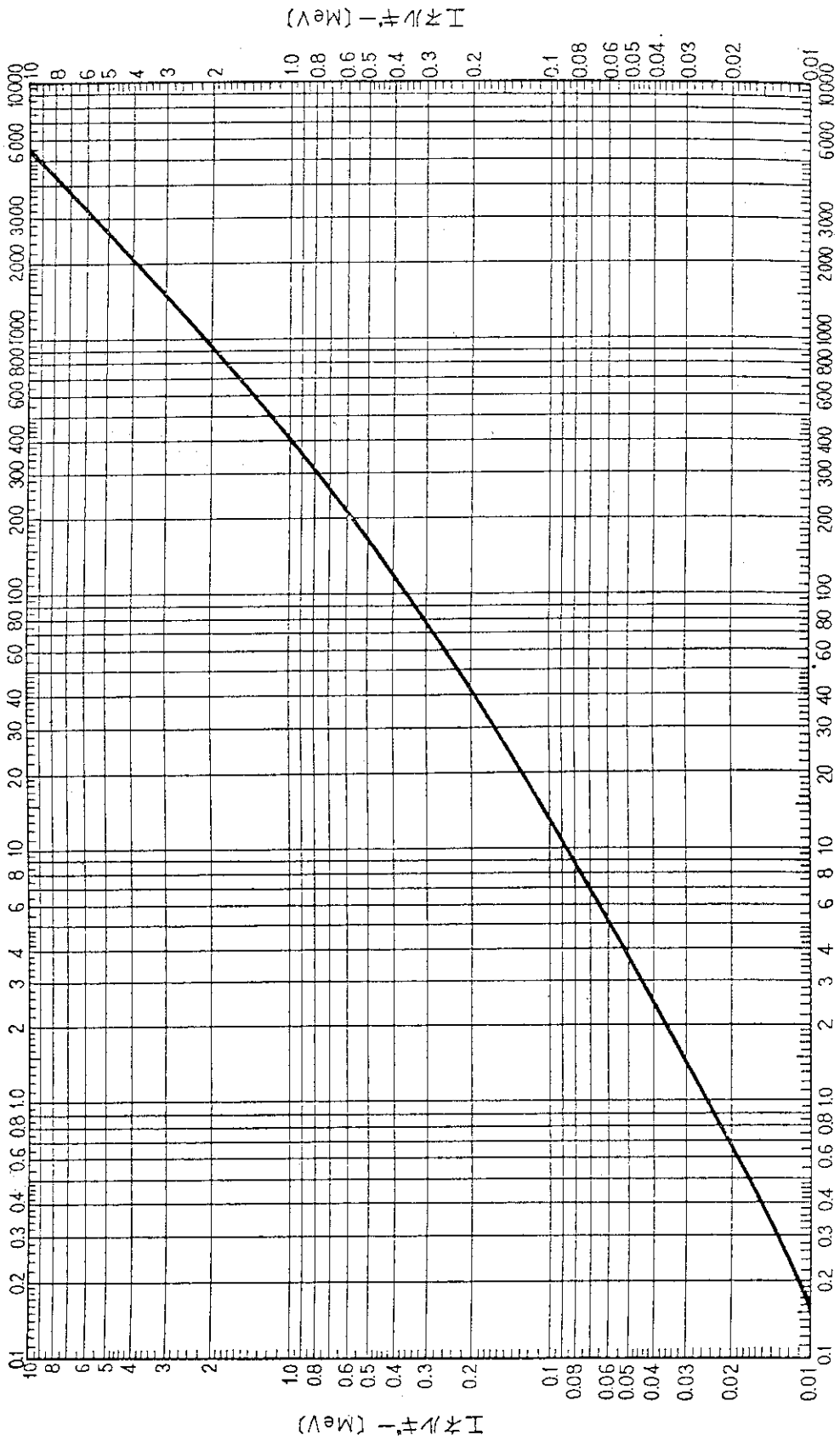


図5 β線のA₀中の飛程 (mg/cm²)

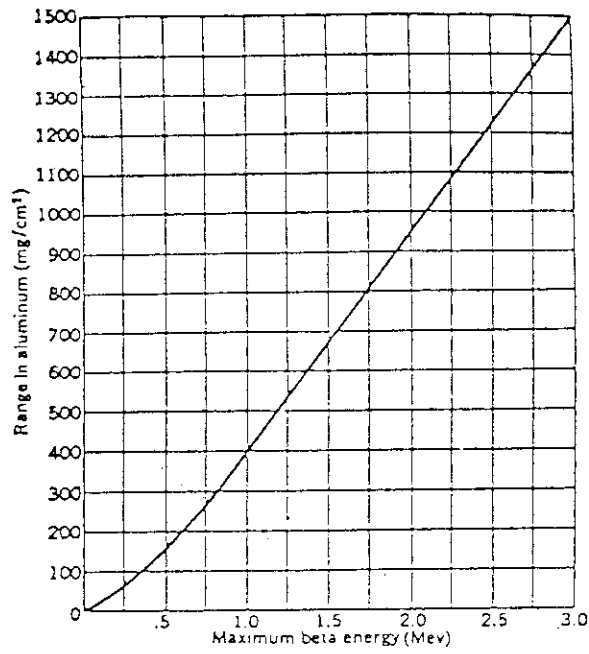


図6 β 線エネルギーとAl板中飛程

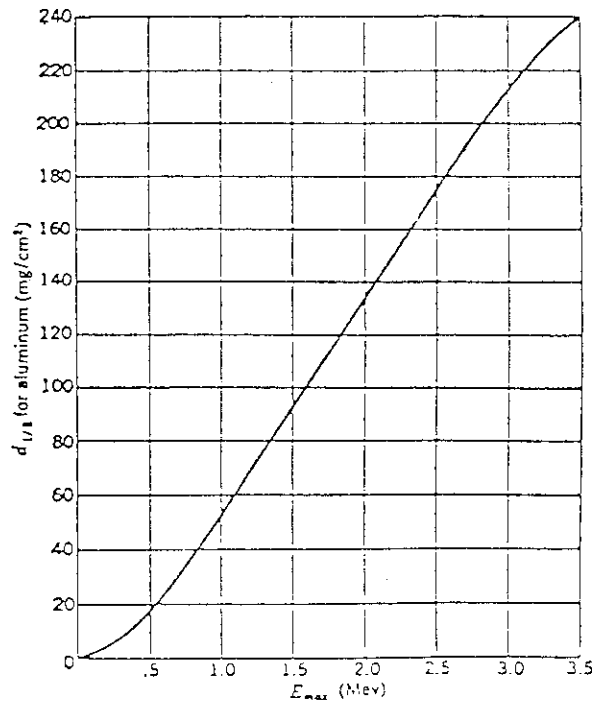


図7 Al吸収半価層と β 線エネルギー

$$N_1 = N_1^0 e^{-\lambda_1 t} \quad (3)$$

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_2^0 e^{-\lambda_2 t} \quad (4)$$

が成立する。

$\lambda_1 < \lambda_2$ の場合には t が充分大きいとき

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (5)$$

が成立し A, B の原子数は、いずれも A の半減期にしたがって減少する。この状態を過渡平衡という。例を図 8 に示す。

$\lambda_1 \ll \lambda_2$ の場合には t が充分大きいとき λ_1 を λ_2 に対して無視することができ

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \quad \text{または} \quad N_1 \lambda_1 = N_2 \lambda_2 \quad (6)$$

が成立する。この状態を永続平衡という。放射平衡にある B 核種を化学分離したのちふたたび放射平衡になるのを待つて B 核種を分離すればくりかえし B 核種を得ることができる。この操作をミルクィング (milking)、A を親核種 (parent nuclide) B を娘核種 (daughter nuclide) という。

ここで計算を試みよう。

問 3 ミルクィングにおいて、娘核種の放射能零から極大を示すまでの時間 (t_{\max}) を表す式を求めなさい。

ヒント：式 (4) で、 $N_2^0 = 0$ とし (ミルクィングであるから) N_2 を t について微分して 0 とおく。

問 4 問 3 で求めた式をつかい、つぎの場合の t_{\max} がいくらになるか、計算しなさい。

(1) ^{144}Ce (284.8 日) - ^{144}Pr (17.3 分)

(2) ^{137}Cs (30.1 年) - $^{137\text{m}}\text{Ba}$ (2.55 分)

(3) ^{90}Sr (28.1 年) - ^{90}Y (64.1 時間)

問 5 $^{144}\text{Ce} - \text{Pr}$ の場合、 ^{144}Pr のミルクィング後 1 時間における ^{144}Pr の量はどうか。

実験マニュアル 5. 実験 (第 2 日目)

実験プロセスを図 9 に示す。分離した有機相には ^{144}Ce が含まれ、 ^{144}Pr はほとんど含まれないはずである。Al 板で ^{144}Ce の β 線をカットして、 ^{144}Pr の β 線だけを測定すれば、 ^{144}Pr の放射能の成長曲線が得られる。

なお、計算値と比較しなさい。 $^{137}\text{Cs} - \text{Ba}$ の $^{137\text{m}}\text{Ba}$ の成長曲線も計算し、比較しなさい。

実験マニュアル 6. 参考文献

(1) H.F. Hunter, N.E. Ballou, *Nucleonics*, 9, No. 11, C-2 (1951)

(2) T. Ishimori, E. Nakamura, JAERI 1047 (1963)

(3) Peppard et al., *Nucl. Chem.*, 3, 215 (1956)

(4) 木村健二郎編, “放射線データブック”, p. 139 (1958), 地人書館, 東京

(5) G.R. Choppin, “Experimental Nuclear Chemistry”, p. 66 (1961), Prentice-Hall, Inc., Englewood Cliffs.

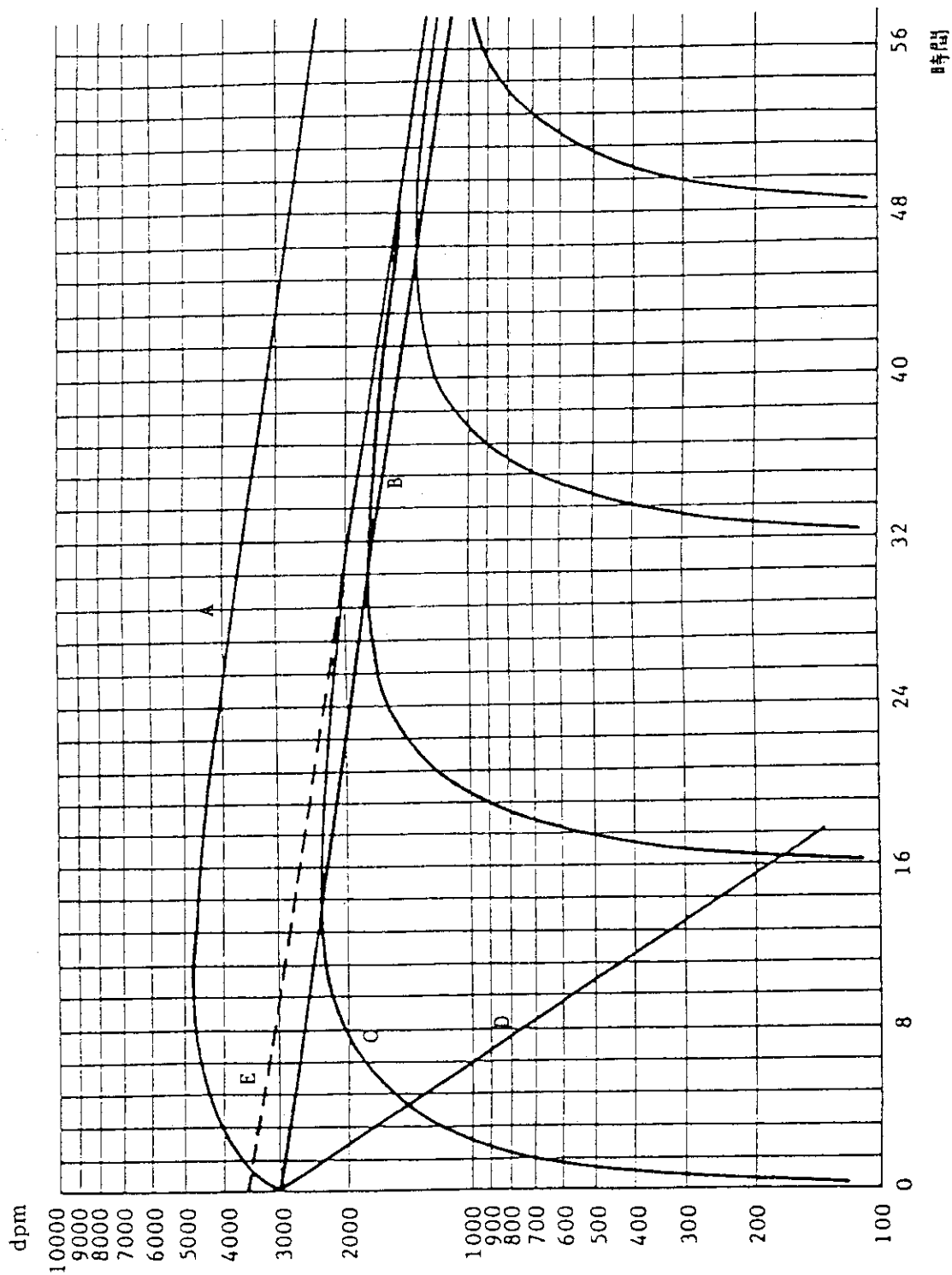
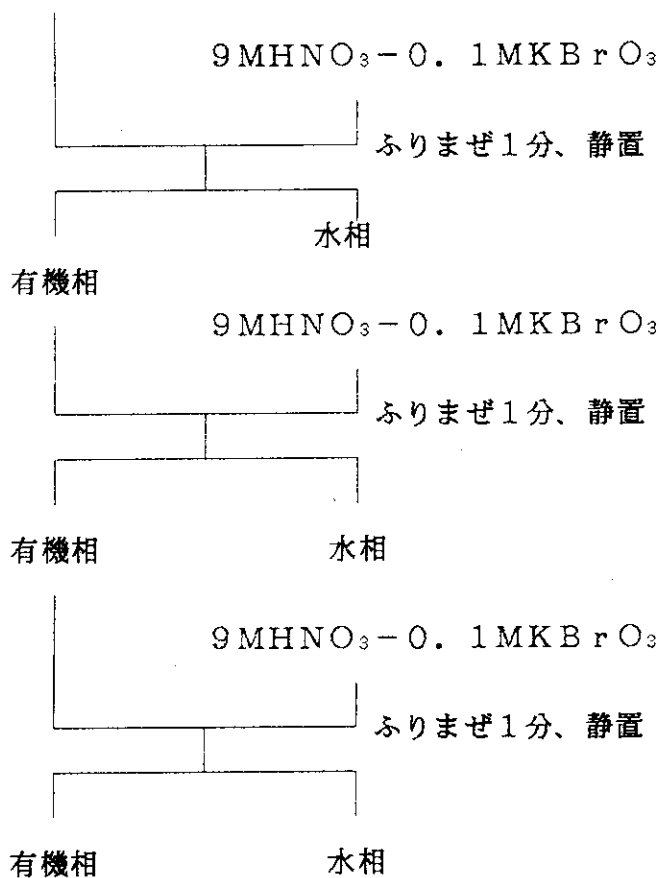


図8 過渡平衡の例

有機相 (実験1より)



ステンレス皿に5種A濾紙を2枚敷いたものを用意しておき、濾紙が湿る程度に、有機相を滴下する。前日決めておいたA1板をいれたGMカウンターで放射能測定

図9 実験(2)

2. 2 イオン交換

一般課程および原子炉工学専門課程の選択実験として内容を検討したのち、溶媒抽出実験に続いて1986年から1994年まで一般課程で実施した実験である。

2. 2. 1 イオン交換実験器具、薬品類

イオン交換樹脂：ダイヤイオンSK-1B、H形

コンデショニング、風乾ののち使用

イオナイトC：新日本金属製りん酸ジルコニウム無機イオン交換体

^{60}Co 硝酸溶液：硝酸濃度0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 1.0M

電気、機械系研修生のために、±2%に濃度調整する。

NaOH飽和溶液を希釈、しゅう酸で標定した0.1M NaOH標準溶液を用いる。

^{60}Co は通常塩化物水溶液なので、硝酸塩にかえたのち、上記硝酸に加える。 ^{60}Co 濃度は、分配比測定に好都合なところに調整する。すなわち、硝酸濃度の低い方では、約10万 [cpm/ml]、高い方では、約7万 [cpm/ml] とした。

各実験班毎に、各硝酸濃度について約6 [ml] ずつ使う。

^{137}Cs -0.1M硝酸溶液：約10万 [cpm/ml] に調整する。各実験班ごとに、1 [ml] または2 [ml] を使う。

ポリエチレン棒状びん：16 [mm] Φ × 86.5 [mm] , フタ付き。

各実験班毎に、最低16本 (測定試料を入れるために11本、実験用に5本)

ガラス棒状びん：1 [ml] または2 [ml] の目盛りつき、共通すりあわせ共栓つき。

^{137}mBa 分離実験用。 ^{137}Cs -0.1M硝酸溶液を入れて、研修生に渡す。

ポリエチレン小袋：130 × 35 × 0.05 [mm]

井戸型NaI (T1) シンチレーションカウンターで放射能測定をするときに、ポリエチレン棒状びんを入れる。汚染防止用。実験に失敗しなければ、各実験班毎に11枚。

測定試料の数だけ入用。

攪はん器：大洋マイクロミキサーMT、試験管立てつき

棒状びんを立てた状態で振とうするため、ネオプレンゴム2枚に棒状びんとほとんど

どおなじ径の穴をあけたものを工作して下の方に接着する。穴に棒状びんの下端を差入れて振とうする。1台 (2実験班の試料を同時に振とうする)

タイマー：60分用。料理用でよい。時間がくるとスイッチが切れるもの。1個

試料スタンド：放射能測定のために棒状びんを立てておくためのもので、試験管立てなどから、

適当なものを選んで購入した。プラスチック製。2個 (各実験班に1個)

井戸型NaI (T1) シンチレーションカウンター：3" × 3" 2式 (各実験班に1式)

計測システム：高圧電源、アンプ、スケラタイマー、ビン電源など

天秤：メトラ社製、P1210およびPJ400

なお、天秤は、少なくとも2年に1回、専門の技術者による点検整備を要する。

2. 2. 2 実験マニュアル (放射化学実験-イオン交換)

(図、表および参考文献にはアンダーラインをつけ、本文と区別した)

実験マニュアル 1. はじめに

原子炉では、ウランを核燃料として使用する。このウランを鉱石からとりだして精錬、加工し、原子炉燃料につくる。これを原子炉で使用したのちに再処理を行い、核燃料として再び使用できるウランやプルトニウムを不用の核分裂生成物やアクチノイドと分離する。このような核燃料サイクルの中でもちいられる化学分離法や精製法として、また原子炉冷却水の浄化、廃水処理など、原子力分野ではイオン交換が利用される場合が多い（参考文献1）。本実験では、このイオン交換をとりあげ、簡単な実験を試みる。

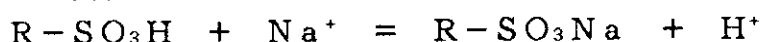
実験マニュアル 2. イオン交換樹脂

イオン交換樹脂（参考文献2, 3）は、小さな球の形をしており、一見魚の卵のような外観をもっている。その直径は粉末状といえるきわめてこまかいものから約2mmまで、種類や用途によって、さまざまであるが、直径1mm前後のものが最もよくもちいられる。膜状のイオン交換膜もある。色は、陽イオン交換樹脂の場合褐色から濃褐色、陰イオン交換樹脂の場合白色から淡黄色である。

化学物質としてのイオン交換樹脂は、一種の合成樹脂で、その中にイオン交換反応を起こし得る原子団をもっている。合成樹脂の種類としては、スチレン系が多く、一部メタクリル系が用いられる。スチレン系の合成樹脂は、絶縁材料、家庭用品など、またメタクリル樹脂は、有機ガラス、建築材料、日用雑貨などにもちいられる。イオン交換樹脂は、スチレン樹脂（ポリスチレン）だけでできているのではなく、ポリスチレンとポリスチレンの鎖を相互につなぐかたちでジビニルベンゼンが混ざっている。これをスチレンとジビニルベンゼンの共重合体という。その様子をつぎの図に示す。ジビニルベンゼンの含有量（重量パーセント）を架橋度といい、スチレンの鎖相互がどの程度密につながっているかを示す。この共重合体がイオン交換樹脂の骨格となり、これにイオン交換を行わせるためのスルホ基 $-SO_3H$ をいれると陽イオン交換樹脂、4級アンモニウム基 $-CH_2N(CH_3)_3Cl$ をいれると陰イオン交換樹脂となる。スルホ基は、強酸性イオン交換樹脂のイオン交換基であるが、弱酸性陽イオン交換樹脂では、カルボキシル酸基 $-COOH$ が入っている。弱塩基性陰イオン交換樹脂では、3級アミノ基が多くもちいられる。

実験マニュアル 3 イオン交換反応とイオン交換樹脂の性質

イオン交換基の交換可能な部分の入れ換えをイオン交換反応という。イオン交換樹脂の骨格部分をRで表すと、陽イオン交換反応は、

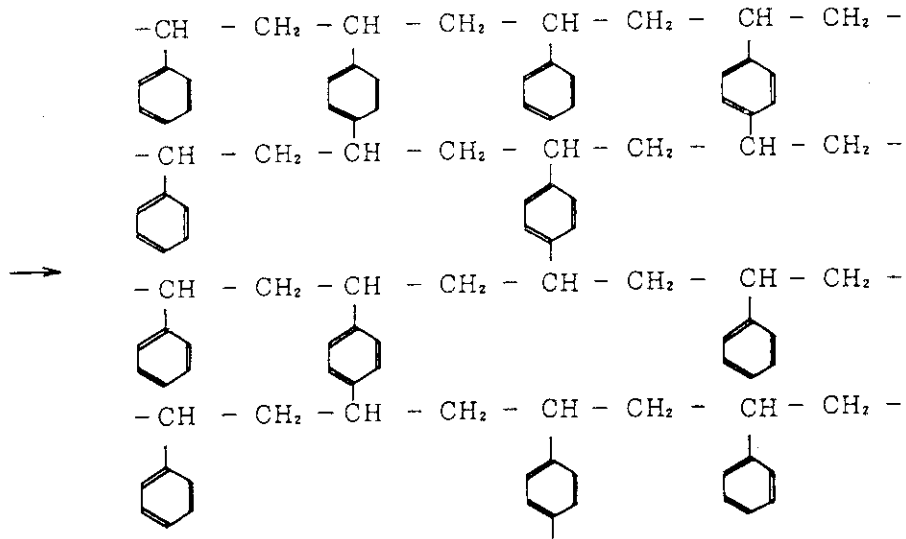
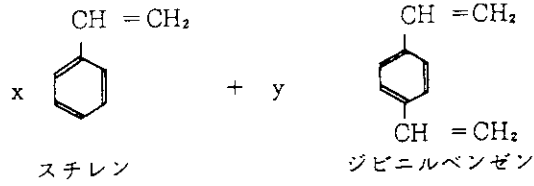
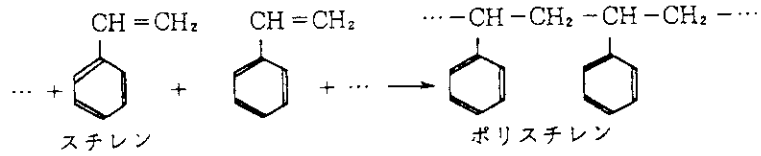


のようにあらわされる。それぞれの化学反応式について平衡定数をk、モル濃度を〔 〕であらわすと、質量作用の法則により、

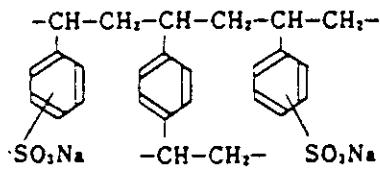
$$k = \frac{[R-SO_3Na][H^+]}{[R-SO_3H][Na^+]} \quad (\text{温度一定})$$

$$k = \frac{[(R-SO_3)_2Co][Na^+]^2}{[R-SO_3Na]^2[Co^{2+}]} \quad (\text{温度一定})$$

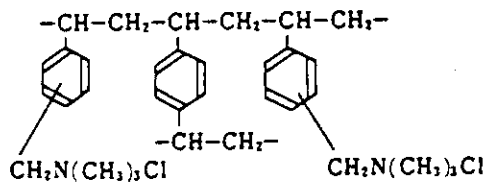
となる。



スチレンとジビニルベンゼンの共重合体
(イオン交換樹脂の骨格となる部分)



強酸性陽イオン交換樹脂の例 (Na形)



強塩基性陰イオン交換樹脂の例 (Cl形)

イオン交換基に入っているイオンが、あるバッチで1種類であるとき、そのイオンの名をとって、……形という。前の図の例では、陽イオン交換樹脂がNa形、陰イオン交換樹脂がCl形である。Na形の陽イオン交換樹脂を大量の1M HClで処理して、Na⁺イオンとH⁺イオンを入れかえると、H形陽イオン交換樹脂となる。Cl形陰イオン交換樹脂を、同様に、大量の1M NaOHで処理するとOH形陰イオン交換樹脂が得られる。Na形陽イオン交換樹脂、Cl形陰イオン交換樹脂はH形やOH形にくらべて安定なので、市販品は通常Na形とCl形である。



上に示した反応の逆反応は、弱酸性または弱塩基性のイオン交換樹脂の場合、起こりにくい。前出の平衡定数の式は、つぎのようにかきかえることができる。

$$k = \frac{[R-SO_3Na]}{[Na^+]} \cdot \frac{[H^+]}{[R-SO_3H]}$$

上式の左半分は、H形の、ある陽イオン交換樹脂に対するナトリウムイオンの分配比とよばれ、ナトリウムイオンがどの程度イオン交換樹脂に吸着されるか、いいかえると、どの程度水相からイオン交換樹脂相に入りやすいかを示す目安となる。同様の式は、他の陽イオンに対しても同様に成立する。分配比をKdであらわすと、

$$Kd = \frac{[\text{イオン交換樹脂相中Aイオン濃度}]}{[\text{水相中Aイオン濃度}]}$$

であり、上の式は、

$$k = Kd \frac{[H^+]}{[R-SO_3H]}$$

とかきなおすことができる。一般には、



の反応において (Mⁿ⁺をn+価の陽イオンとする)

$$k = \frac{[(R-SO_3)_nM]}{[M^{n+}]} \cdot \frac{[H^+]^n}{[R-SO_3H]^n}$$

とあらわせる。この式から分かるように、温度一定でkが一定であるから、分配比Kdは水相の酸濃度または水素イオン濃度 [H⁺] によって変化する。とくに、イオン交換を行うイオンの濃度が低い場合には、[R-SO₃H] の変化が小さくほとんど一定とみなせるので、[H⁺] によるKdの変化が明かとなる。

イオン交換樹脂相におけるイオンの濃度のあらわし方は、はかりやすさからいって、乾燥樹脂1gあたりにとることが多い。まれに、膨潤樹脂1mlあたりにとることがある。したがって、Aイオン濃度を、a mmol·g⁻¹ または a⁻ mmol·ml⁻¹ 水相中 Aイオン濃度を c mmol·ml⁻¹ とすると、分配比 Kdは

$$a/c \text{ ml} \cdot \text{g}^{-1} \quad \text{または} \quad a^-/c \text{ ml} \cdot \text{ml}^{-1}$$

となる。

分配比が大きい、ということは、そのイオンがイオン交換樹脂によく吸着される、ということを示す。図1～4（参考文献4～7）に、分配比の測定例を示す。いずれも $\text{ml}\cdot\text{g}^{-1}$ であらわした値である。いずれもトレース量のイオンを用いた測定値で、前述のように、酸濃度による分配比の変化が見られる。

イオン交換を行うイオンの濃度が大きくなると、当然、前出の式の $[\text{R}-\text{SO}_3\text{H}]$ に相当する値が、イオン交換を起こした分だけ小さくなる。このような場合は、等温吸着曲線に相当するデータを用いる。さらに前出の例でいえば、 Na^+ イオンの分配比と H^+ イオンの分配比の比を分離係数という。前出の式では、

$$\frac{\text{Na}^+\text{のKd}}{\text{H}^+\text{のKd}} = K_{\text{H}^{\text{Na}}}$$

となる。一般に $K_{\text{H}^{\text{Na}}}$ のような形であらわす。A, Bはそれぞれイオン名である。また、膨潤樹脂とは、乾燥樹脂を水に浸して十分に吸水させたもので、架橋度の低いものほどよく膨潤し、体積が増加する。

ある特定のイオン交換樹脂で、イオン交換基がどの程度含まれているか、いいかえると、たとえば Na^+ イオンを飽和させたとき、いかほどまで樹脂中に入り得るか、という値を示すのに、交換容量が用いられる。この場合も乾燥イオン交換樹脂1〔g〕あたり、または、膨潤イオン交換樹脂1〔ml〕あたりに含まれるイオン交換基の mmol数が用いられる。

実験マニュアル 4 原子力分野におけるイオン交換

原子力分野の中でイオン交換が利用されている例をつぎにのべる。

実験マニュアル 4.1 ウラン鉱石からウランの回収

ウラン鉱石からウランを溶かし出す（浸出という）ため、希硫酸が用いられる。鉱石の種類によっては、希硫酸の代わりに炭酸塩水溶液が用いられることもある。このような浸出液ではウランは UO_2^{2+} 、 $\text{UO}_2(\text{SO}_4)_2^{2-}$ あるいは $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ のような陰イオンとして存在する。このため、ウランの回収には、陰イオン交換がよく利用される。イオン交換樹脂に吸着された物質を再び水相にもどす操作を溶離という。一般に、ウラン濃度の低い大量の溶液からウランだけを吸着させ、できるだけ少量の溶離液を用いてイオン交換樹脂から回収（脱着）する。この種の化学操作を濃縮ということがある。

ウラン鉱石には、しばしばウラン以外の有用な金属元素が含まれており、このような物質の回収のためにもイオン交換樹脂が利用される。

実験マニュアル 4.2 原子力発電所におけるイオン交換の利用

軽水炉では、冷却材その他の目的で、大量に水を使う。その水の精製（浄化）や廃液の処理のためにイオン交換を用いる。その例をつぎに示す。

◇給水の処理

◇原子炉冷却水浄化系

◇脱ホウ酸

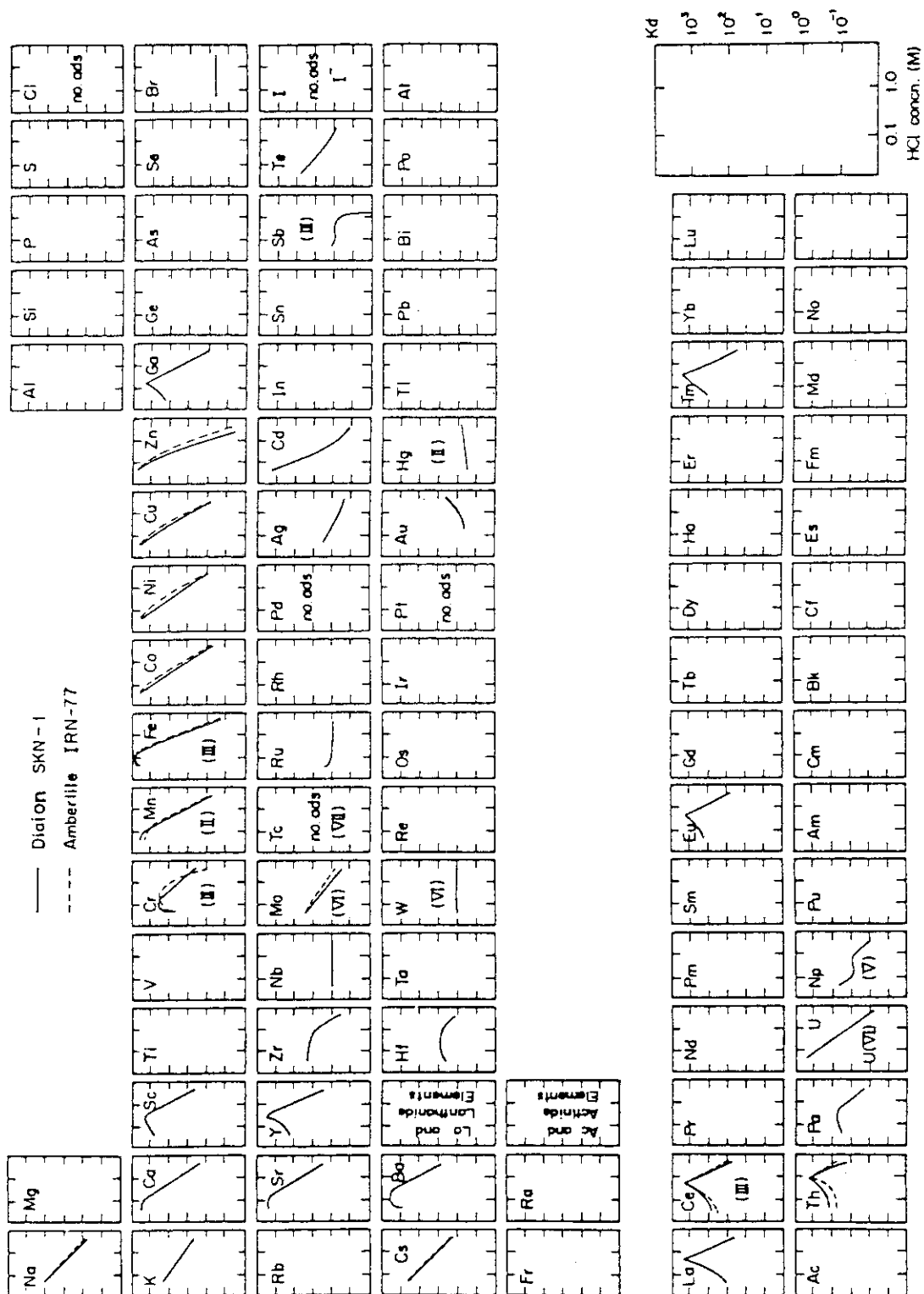


図1 原子炉用イオン交換樹脂，ダイヤイオンSKN-1によるイオン交換吸着（JAERI-M 7168, p.28より）

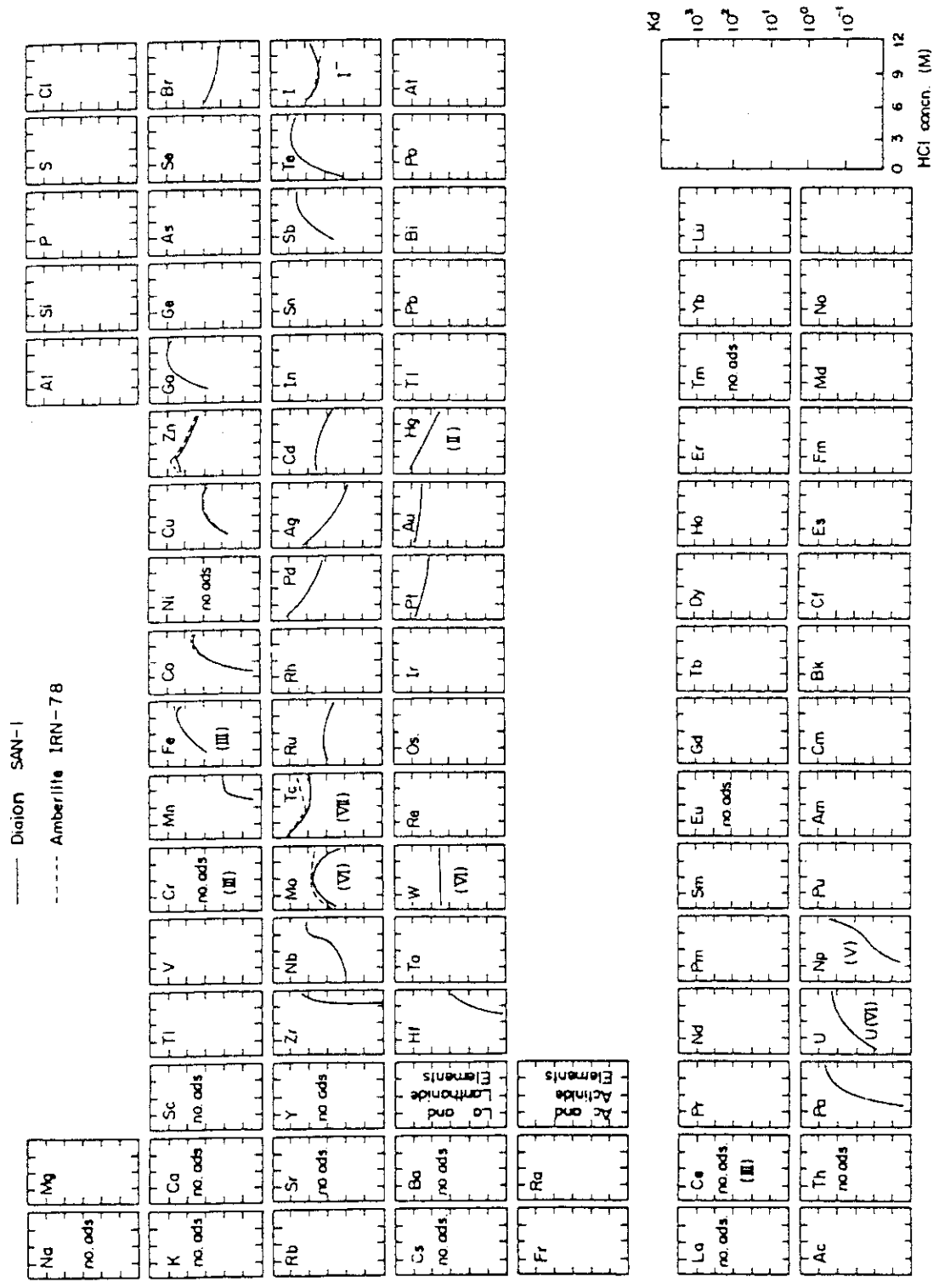


図2 原子炉用イオン交換樹脂, ダイアイオンSAN-1によるイオン交換吸着 (JAERI-M 7168, p, 30より)

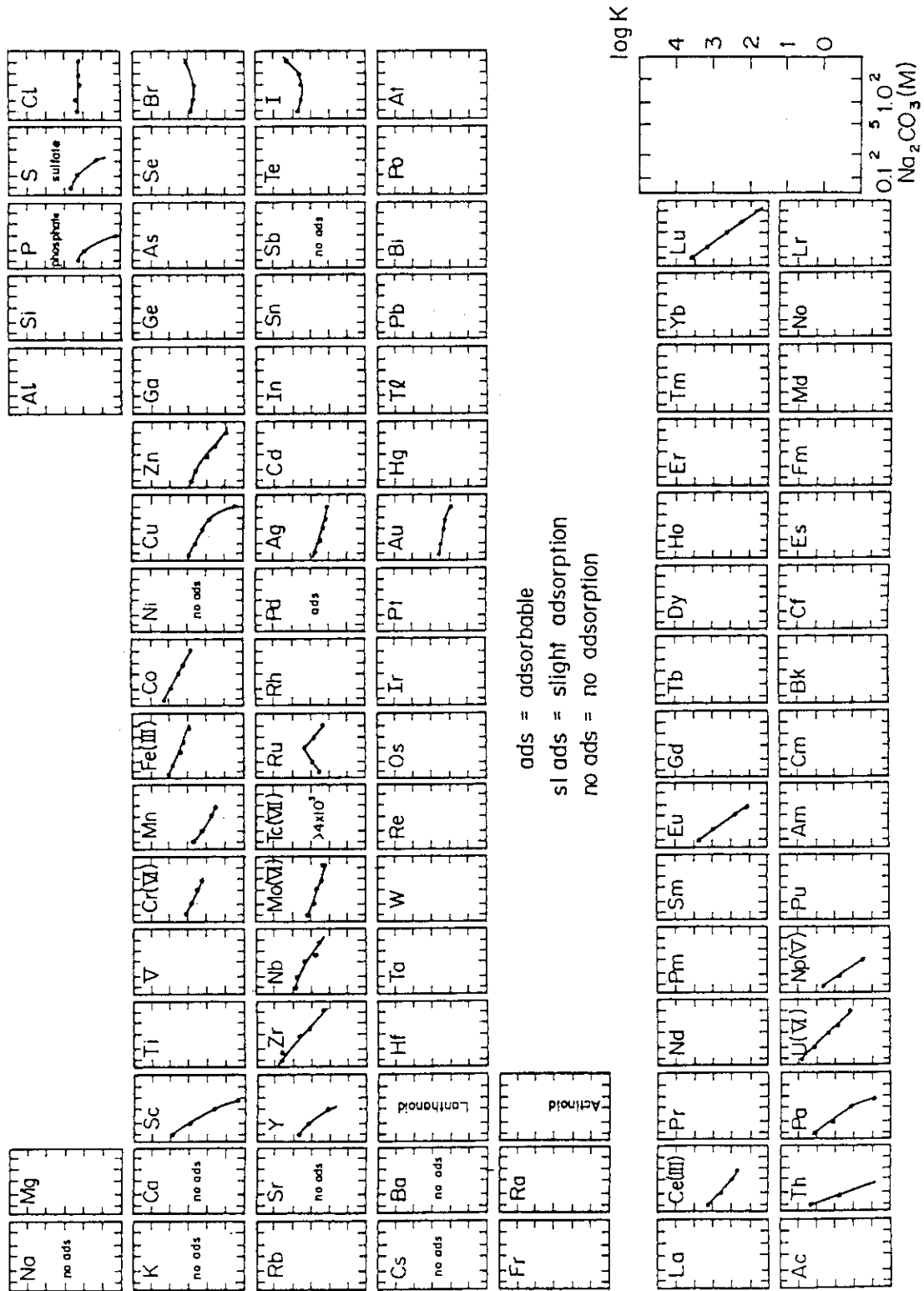


図3 ポーラス型陰イオン交換樹脂ダイヤイオンPA-360によるイオン交換吸着 (Anal, Chim, Acta, 93 (1977) 317)

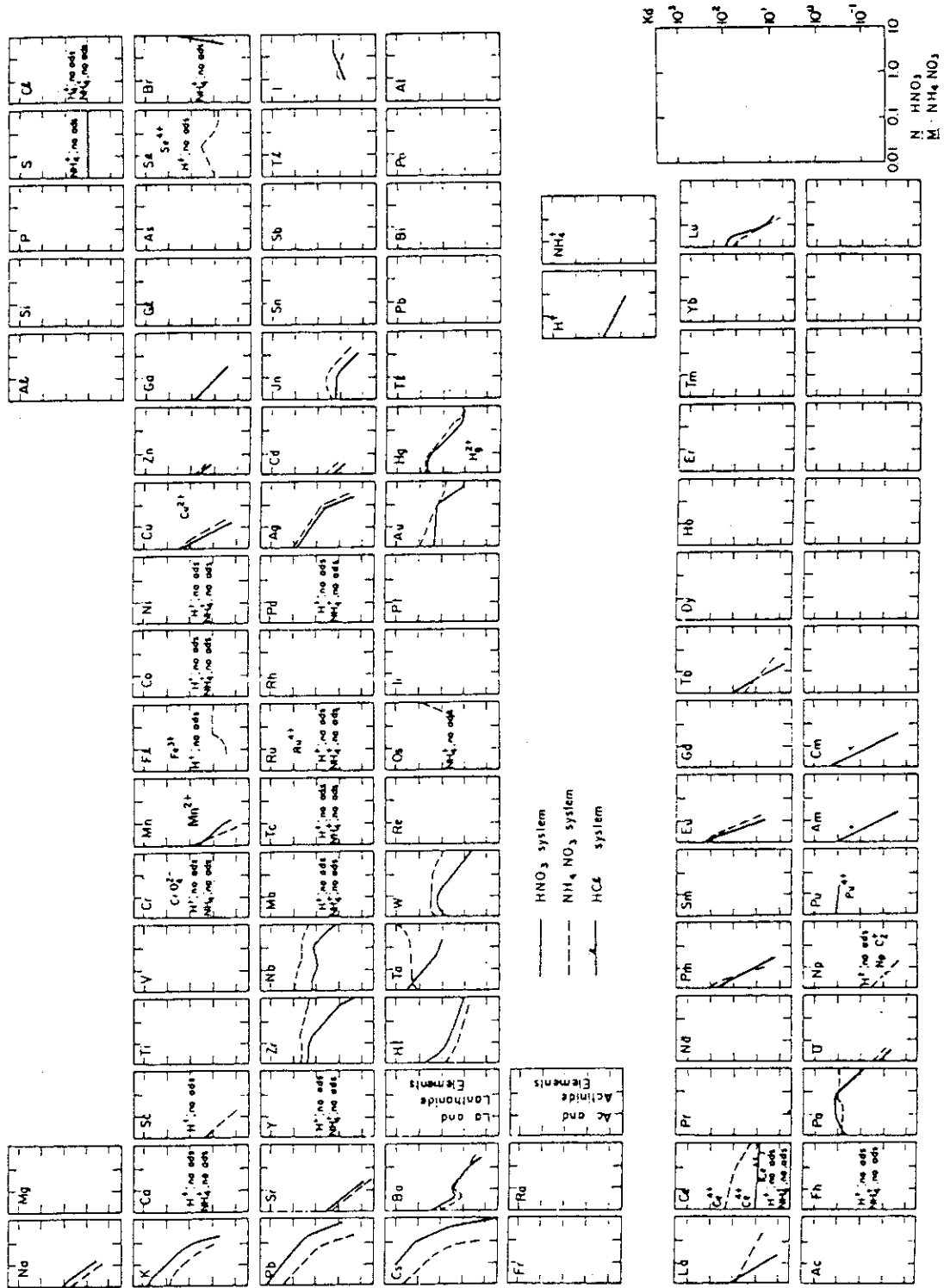


図4 りん酸ジルコニウム (イオナイトC)によるイオン交換吸着 (JAERI-M 7168, より)

◇復水浄化系

◇廃液の蒸発処理水の除染

◇燃料プールの除染

原子力発電所の一次冷却系で使用するイオン交換樹脂は、とくに精製したものであり、浸出性不純物がないこと、粒径が均一であること、および高純度で必要なイオン形に変換されていること、がその条件である。種類は、強酸性陽イオン交換樹脂、および強塩基性陰イオン交換樹脂である。

原子炉冷却水関連では、H形、OH形のほか、Li形、BO₃形（PWR）が用いられる。脱ホウ酸処理の目的で強塩基性陰イオン交換樹脂がもちいられるほか、多くは陽イオン交換樹脂と陰イオン交換樹脂を混合したイオン交換塔が用いられる。混床型という。また、BWRの一次冷却水に含まれる放射性核種を除去するため、フィルタ脱塩器の形で、粉末状（粒径0.03 mm以下、90%以上）のイオン交換樹脂を用いると有効といわれる。プリコート型という。

実験マニュアル 4.3 再処理におけるイオン交換

再処理で用いられる化学分離法の中心は、溶媒抽出である。すなわちトリブチル（TBP）を用いて、ウラン、プルトニウムおよび核分裂生成物を相互分離する。ところが、それに付随した化学分離や精製には、イオン交換が多く利用されている。その例を以下に示す。

◇プルトニウムの精製および濃度を上げること（濃縮）

◇²³⁷Npの回収◇高レベル廃液中のプルトニウムと²³⁷Npの回収

◇プルトニウム金属製造の際生じる残さからプルトニウムの回収

◇廃液処理

◇アクチノイドの群分離と相互分離

◇²³⁸Puの製造◇放置されたプルトニウムから²⁴¹Amの分離

◇超プルトニウム元素の製造

実験マニュアル 5. イオン交換クロマトグラフィ

イオン交換を利用する場合、クロマトグラフィを用いるのが通例である（参考文献8, 9）
クロマトグラフィとは、固定相にたいして移動相があり、試料の混合物を移動相にとかしこんで、固定相と接触させながら移動させ、試料中の各成分の性質の差から来る移動速度の差を利用して、各成分の相互分離を行う技術の総称である。

イオン交換クロマトグラフィは、固定相がイオン交換樹脂、移動相が水溶液である。固定相のイオン交換樹脂は、カラムにつめた形で用いる。このカラムを、かりにいくつかに分けて、バッチごとに化学平衡が成り立つとして考えると図5のようになる。上から順に移動相の水溶液が流れて、下に移動すると考える。一般に、ひとつのバッチと考えられるイオン交換樹脂の量は少なく、したがって、1本のカラムについて、多数のバッチが考えられるから、図5のプロセスが多数くりかえされて、分配比K_dの差の小さいものでも相互分離が可能になる。もちろん分配比がきわめて小さいものは、そのままカラムを通過し、吸着されない、とみてもよいし、分配比がきわめて大きいものは、イオン交換カラムの上部に吸着され、ほとんど全部、そこにとどまるような結果となる。

実験マニュアル 6. ^{60}Co について

軽水炉の一次冷却系に用いられる原子炉材料の腐食によって生じた腐食生成物が一次冷却水に入り、炉心で放射化され、再び炉外にもちだされて作業員の放射線被曝の原因となっていることは、よく知られている。腐食生成物はクラッドとよばれ、大部分が鉄の酸化物であるが、ステンレス鋼の成分であるニッケルやクロム、ニッケルの不純物であるコバルトなども含まれる。なかでも半減期が長く、放出する放射線のエネルギーと放出率の高い（そのため1cm線量当量率定数が大きい） ^{60}Co は、被曝にたいする奇与が大きい。

天然のコバルト同位体は、 ^{59}Co のみであり、 $^{59}\text{Co} (n, \gamma) ^{60}\text{Co}$ における核反応断面積（熱中性子）は約37バーンである。コバルトはニッケルと化学的性質がよく似ており、鉱石中でしばしば共存する。このため、通常のニッケル金属には、0.3%以下のコバルトが含まれる（JIS 2104）。ニッケルとクロムを成分とする鋼が炉材料として多く使用され、かつ一次冷却水と接触する面積が大きいため、クラッド中にコバルトも含まれる結果となる。このほか、一部には、コバルトを主成分とする合金も原子炉材料としてもちいられている。溶け出したコバルトが放射化された ^{60}Co は、半減期5.27年、1壊変あたりほぼ100%の放出率で1.17MeVおよび1.33MeVのガンマ線を放出する。一次冷却水中のコバルト濃度はppmオーダーであるが、 ^{60}Co の半減期が長いため蓄積される。

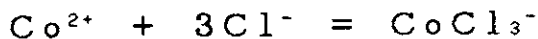
コバルトはイオンとして水溶液中にある場合には、通常+2価のイオン、 Co^{2+} として存在する。この状態では陽イオン交換樹脂に吸着される。一方

$$\frac{[\text{CoOH}^+][\text{H}^+]}{[\text{Co}^{2+}]} = \sim 10^{-10} \quad (\text{室温})$$

であり、

$$[\text{Co}^{2+}][\text{OH}^-]^2 = \sim 10^{-15}$$

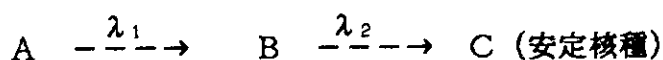
である。すなわちアルカリ性水溶液中では、水にとけにくい水酸化物を生じる。また、コバルトは、多種多様な錯体をつくることでよく知られている。塩化物濃度の高いところでは、



のように、 Cl^- イオンとの錯体を生じ陰イオン交換樹脂に吸着される。原子炉一次冷却水中のコバルトは、鉄と混在し、混合酸化物などの形になっているといわれている。

実験マニュアル 7. 放射平衡とミルキング

放射性核種が壊変して生じる核種が放射性核種であつて、いわゆる放射性壊変系列をつくる場合、放射平衡とよばれる現象がみられることがある。たとえば、つぎのような場合を考えてみる。



A, Bは放射性核種、 λ_1, λ_2 はその壊変定数である。また、A, Bの時間 $t=0$ における原子数を N_1^0, N_2^0 、 $t=t$ における原子数を N_1, N_2 とすると

$$N_1 = N_1^0 e^{-\lambda_1 t} \quad (1)$$

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_2^0 e^{-\lambda_2 t} \quad (2)$$

が成立する。

$\lambda_1 < \lambda_2$ で t が充分大きいとき、

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (3)$$

が成立し、A、Bの原子数は、いずれもAの半減期にしたがって減少する状態になる。これを過渡平衡という。例を図6に示す。

$$\lambda_1 \ll \lambda_2 \text{ で } t \text{ が充分大きいとき、} \lambda_2 \text{ に対して } \lambda_1 \text{ を無視できるから、(3)式は}$$

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \quad \text{または} \quad \lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 \quad (4)$$

となる。この状態を永続平衡という。

放射平衡にあるB核種を化学分離したのち、ふたたび放射平衡になるのを待つてB核種を分離すれば、A核種の量が充分である限り、くりかえしてB核種を得ることができる。この操作をミルクキング (milking)、Aを親核種 (parent nuclide)、Bを娘核種 (daughter nuclide) という。ミルクキングの様子を図6に示す。

ミルクキングにおいて、娘核種の放射能ゼロの状態から極大になるまでの時間 (図6参照) は、(2)式において第2項をゼロとにおいて、時間について微分し、ゼロとにおいて得られる式から求めることができる。この時間 t_{\max} は、ミルクキングとミルクキングの間の放置時間のめやすとして有用である。

実験マニュアル 8. 参考文献

- (1) W.W.Schultz, E.J.Wheelright, H.Godbee, C.W.Mallory, G.A.Burney, R.M.Wallace, DP-MS-83-109(1983)
- (2) 高等学校の化学関連教科書
- (3) P.Cohen, "Water Coolant Chemistry of Nuclear Reactors", American Nuclear Society (1980)
- (4) E.Akatsu, JAERI-M7168(1977)
- (5) E.Akatsu, H.Watanabe, Anal.Chim.Acta, 93, 317 (1977)
- (6) E. Akatsu, R. Ono, K. Tsukuechi and H. Uchiyama, J. Nucl. Sci. Technol., 4, 141 (1965).
- (7) S. Yokotsuka, E. Akatsu and K. Ueno, ibid., 8, 622 (1971).
- (8) 化学の領域、増刊88号、“新しい液体クロマトグラフィー”、南江堂、東京 (1979)
- (9) 新実験化学講座、基本操作 (I)、丸善、東京 (1976)

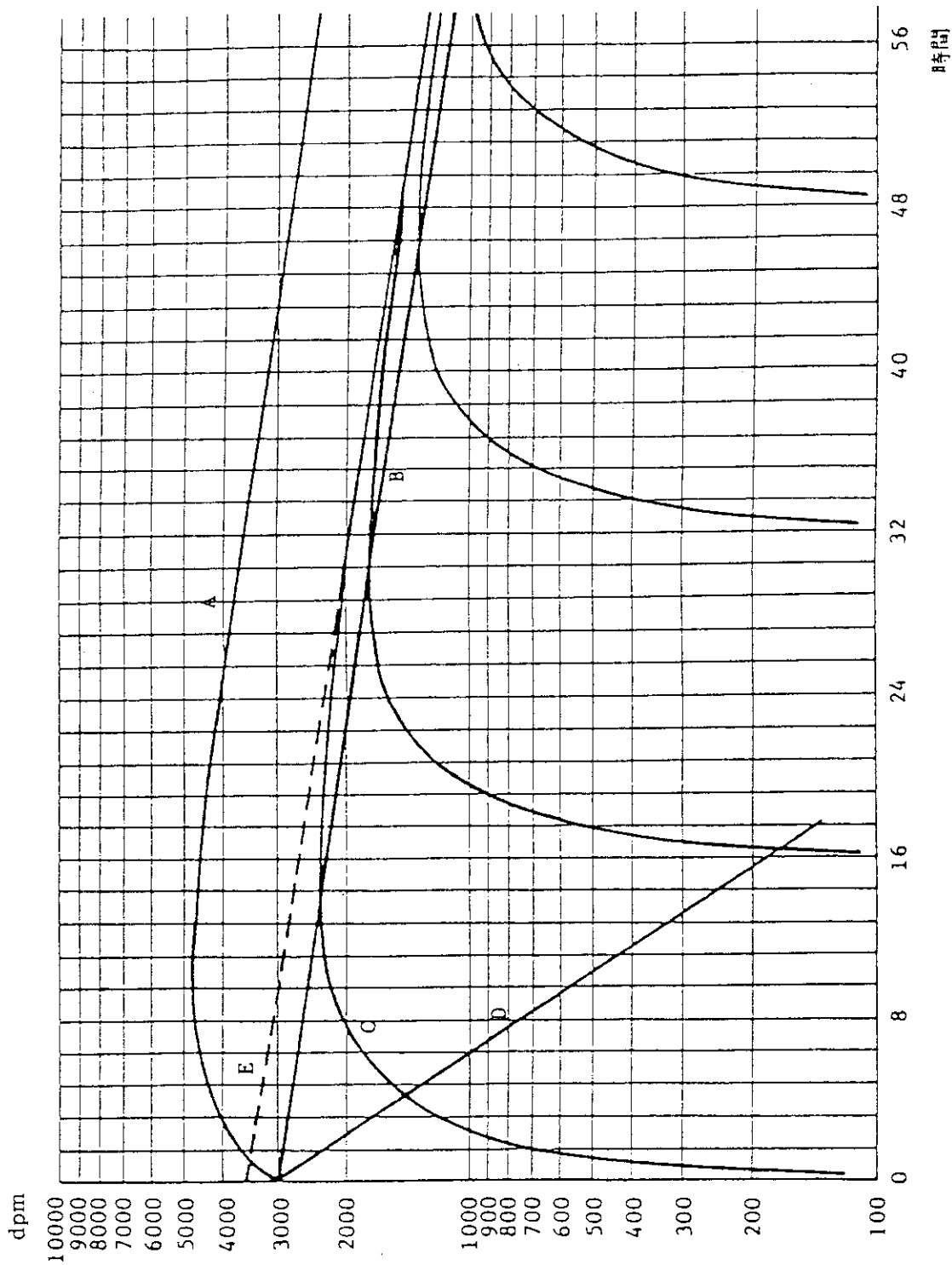


図6 過渡平衡の例

実験マニュアル 分配比に関する計算

- (1) ダイヤイオンSKN-1 ~ HCl系における分配比の測定データから、1M HClにおけるFe(III)の分配比を読みとり、この値を使ってつぎの計算をなさい。
 ^{59}Fe (III)が 10^4 [cpm]とけている 1M HCl溶液 1 [ml]に、ダイヤイオンSKN-1の 0.1 [g]を加え、平衡になったとする。何%の ^{59}Fe が、イオン交換樹脂に吸着されるか？それは何 [cpm]になるか？
- (2) 同じくダイヤイオンSKN-1 ~ HCl系における分配比で、1M HClにおけるトリウムおよびウランの分配比をよみとる。もしトレーサー量のウランとトリウムが含まれている 1M HCl溶液 20 [ml]に、イオン交換樹脂 1 [g]を加え平衡になったとするとウランおよびトリウムは、それぞれ何%吸着されるか？
- (3) イオナイトC ~ 1M HNO₃系で、CsとBaの分配比は、それぞれいくらになるか？図からよみとれ。イオナイトCの 0.1 [g]と ^{137}Cs -Baの 1M HNO₃溶液 1 [ml]の系では、平衡時CsとBaが、それぞれ何% イオナイトCに吸着されるか？

実験マニュアル 放射平衡に関する計算

- (1) t_{\max} の式を導きなさい。
- (2) 前問の式をつかい、つぎの場合の t_{\max} を計算しなさい。
- ^{137}Cs (30.2年) - $^{137\text{m}}\text{Ba}$ (2.55分)
 - ^{90}Sr (28.8年) - ^{90}Y (2.67日)
 - ^{95}Zr (64日) - ^{95}Nb (35日)
 - ^{99}Mo (66時間) - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (6.0時間)
 - ^{132}Te (78時間) - ^{132}I (2.38時間)
- (3) ^{137}Cs のみ 10^4 Bq の試料から生成する $^{137\text{m}}\text{Ba}$ の量を、1, 2, 3, 5, 7, 10, 20, 30分後について計算し、 $^{137\text{m}}\text{Ba}$ の成長曲線を片対数グラフにかきなさい。半減期の値は、前問の数値をつかいなさい。

実験マニュアル 放射化学実験 (イオン交換) ……バッチ法による分配比の測定

(1) 試薬と実験器具

しんとう器

栓付きポリエチレン棒状びん

マクロピペット (5ml, 2ml, 1ml)

同上用使い捨てチップ

 ^{60}Co 溶液、硝酸濃度5種 (0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 1.0M)

H形陽イオン交換樹脂 (ダイヤイオンSKN-1)

上皿電子天秤

薬さじ

その他

(2) 実習

a, 準備 (コールド実験室)

陽イオン交換樹脂を 0.5 g ずつはかりとり、重さを記録する。0.05, 0.2, 0.2, 0.5, 1.0 と記したポリエチレン棒状びんに入れる。 ^{60}Co 溶液の硝酸濃度に相当する数字である。

マクロピペット、棒びんの外側などを汚染させぬよう、コールド実験室で蒸留水をつかい、マクロピペット取扱の練習をする。チップの先を下に密着させると、うまく吸い上げることができない。チップの先をガラス壁から離れた瞬間に急に吸い上げられてマクロピペット内に汚染を生じる危険がある。

b, 実験 (ホット実験室)

ホット実験者をきめる。実験者がゴム手袋をはめ、準備した、イオン交換樹脂入りのポリエチレン棒状びんに、 ^{60}Co 溶液を入れる。5 ml 用マクロピペットとチップ (緑色) を使い、各々 5 ml 入れる。間違いをさけるため、ポリエチレン棒状びんは、1 本ずつフタをはずして溶液を入れる。練習したように、放射性溶液の付着はチップ内とチップの先にとどめる。使用済みチップは可燃性廃棄物とする。助手係は、5 ml 用チップを 1 本ずつ手渡す。フード内、実験者のゴム手袋は放射性汚染があるものとして、行動する。実験者は、溶液を吸い上げた後、マクロピペットを両手で扱うとよい。

^{60}Co 溶液を入れ終わったら、ふたを確認したのち振とう器にセットする。振とう器下部のゴム板の穴に、ポリエチレン棒状びんの下をきっちりとはめこむ。タイマーを 30 分にセットして振り混ぜる。

助手係はイオン交換樹脂との振り混ぜに使用したのと同じ、5 種類の硝酸濃度の ^{60}Co 溶液を i 試料とするため、新しいポリエチレン棒状びん 5 本を用意する。0.05 i, 0.1 i, 0.2 i, 0.5 i, 1.0 i と書いておく。i は initial の意味である。

30 分間の振り混ぜ中に、i 試料のサンプリングと測定を行う。すなわち、助手係は、準備した上記ポリエチレン棒状びんに、1 ml ずつ各硝酸濃度の ^{60}Co 溶液を、実験者に入れてもらう。入れるときは、助手係がフード内に棒状びんを差しだし、ゴム手袋をした実験者は、棒状びんには手をふれない。実験者右利きの場合には、実験者の左に立つ。実験者は、右手に持ったマクロピペットを左手で支えると、棒状びんに入れやすい。つぎに、i 試料を汚染防止用ポリエチレン小袋に入れて、井戸型 NaI (Tl) シンチレーションカウンターで測定する。

振り混ぜ終了後、上澄みを 1 ml ずつ、新しいポリエチレン棒状びんにとるが、助手係は、0.05 f, 0.1 f, 0.2 f, 0.5 f, 1.0 f (f は final の意味) と書き入れたものを用意しておき、i 試料と同様にして、1 ml ずつサンプリングする。実験者は、f 試料を入れる棒状びんには手をふれない。f 試料採取後、i 試料と同様に、測定する。f 試料は、 ^{60}Co の一部がイオン交換樹脂に吸着され、i 試料と比較して計数値が減少している。ほとんどバックグラウンドに近い試料では、バックグラウンド (10 分) と同じ計数時間をとる。その他は、計数誤差を考えて、適宜測定時間を決める。表 1, 2, 3 のデータ記入用紙に記入する。

c, データ整理

測定結果を整理し、得られた分配比を、誤差もつけて、両対数グラフにプロットする。

$$\text{分配比} = \frac{i-f}{f} \cdot \frac{\text{水相の容積 (5 ml)}}{\text{イオン交換樹脂の重さ (約 0.5 g)}}$$

註 和の誤差 $(A \pm a) + (B \pm b) = (A+B) \pm \sqrt{a^2 + b^2}$

差の誤差 $(A \pm a) - (B \pm b) = (A-B) \pm \sqrt{a^2 + b^2}$

積の誤差 $(A \pm a) \times (B \pm b) = AB \pm AB \left[\left(\frac{a}{A}\right)^2 + \left(\frac{b}{B}\right)^2 \right]^{1/2}$

商の誤差 $(A \pm a) \div (B \pm b) = \frac{A}{B} \pm \frac{A}{B} \left[\left(\frac{a}{A}\right)^2 + \left(\frac{b}{B}\right)^2 \right]^{1/2}$

実験マニュアル 放射化学実験 (イオン交換) ……バッチ法による¹³⁷Csと^{137m}Baの分離

(1) 試薬と実験器具

2 ml (または 1 ml) ガラス製棒状びん (共栓つき)

マクロピペット (2 ml または 1 ml)

同上用チップ (使い捨て)

¹³⁷Cs-Ba の 0.1 M HNO₃ 溶液 2 ml (または 1 ml) (上記棒状びんに入れてある)

イオナイト C (結晶りん酸ジルコニウムの無機イオン交換体)

(2) 実習

a, 準備 (コールド実験室)

イオナイト C の約 0.2 g (または 0.1 g) をはかりとり、薬包紙につつま、ホット実験室に持って行く。

b, 実験 (ホット実験室)

¹³⁷Cs-Ba の 0.1 M HNO₃ 溶液 2 ml (または 1 ml) にイオナイト C を加え、ふたをして、1~2 分手で振り混ぜる。ふたのスリ合わせ部分にイオナイト C が付着していると内容がもるので、注意する。振り混ぜ後、上澄みをできるだけ多くマクロピペットでとり、ポリエチレン棒状びんに入れる。棒状びんのふたをし、ポリエチレン小袋に入れて前日と同じ測定器で測定する。ただし、本日は、1 個の試料を 2 分に 1 回、くりかえし 15 回測定する。30 分間測定することになる。

c, データ整理

測定結果を、片対数グラフに、縦軸計数値、横軸時間としてプロットする。長半減期成分およびバックグラウンドの分をまとめて差し引いて、^{137m}Ba の半減期を求める。

表1 データ記入用紙(1)

硝酸溶液の容積 $V = 5.0 \pm 0.05$ [ml]バックグラウンド計数 _____ counts/ _____ min. = _____ \pm _____ c.p.m.

| 試料 | 0.05 M i | 0.05M f | 0.1M i | 0.1M f |
|-------------------------------------|----------|---------|--------|--------|
| イオン交換体重量 W [g] | \pm | | \pm | |
| V/W [ml.g ⁻¹] | \pm | | \pm | |
| [counts] | \pm | \pm | \pm | \pm |
| 計数時間 [min] | | | | |
| [c.p.m.] | \pm | \pm | \pm | \pm |
| c.p.m. - B. G. | \pm | \pm | \pm | \pm |
| i - f | \pm | | \pm | |
| $\frac{i - f}{f}$ | \pm | | \pm | |
| $\frac{i - f}{f} \cdot \frac{V}{W}$ | \pm | | \pm | |

表2 データ記入用紙(2)

硝酸溶液の容積 $V = 5.0 \pm 0.05$ [ml]バックグラウンド計数 _____ counts / _____ min. = _____ \pm _____ c.p.m.

| 試料 | 0.2M i | 0.2M f | 0.5M i | 0.5M f |
|-------------------------------------|--------|--------|--------|--------|
| イオン交換体重量 W [g] | \pm | | \pm | |
| V/W [ml.g ⁻¹] | \pm | | \pm | |
| [counts] | \pm | \pm | \pm | \pm |
| 計数時間 [min] | | | | |
| [c.p.m.] | \pm | \pm | \pm | \pm |
| c.p.m. - B. G. | \pm | \pm | \pm | \pm |
| $i - f$ | \pm | | \pm | |
| $\frac{i - f}{f}$ | \pm | | \pm | |
| $\frac{i - f}{f} \cdot \frac{V}{W}$ | \pm | | \pm | |

表3 データ記入用紙(3)

硝酸溶液の容積 $V = 5.0 \pm 0.05$ [ml]

バックグラウンド計数 _____ counts / _____ min. = _____ \pm _____ c.p.m.

| 試料 | 1.0M i | 1.0M f | | |
|-------------------------------------|--------|--------|-------|-------|
| イオン交換体重量 W [g] | \pm | | \pm | |
| V/W [ml.g ⁻¹] | \pm | | \pm | |
| [counts] | \pm | \pm | \pm | \pm |
| 計数時間 [min] | | | | |
| [c.p.m.] | \pm | \pm | \pm | \pm |
| c.p.m. - B. G. | \pm | \pm | \pm | \pm |
| $i - f$ | \pm | | \pm | |
| $\frac{i - f}{f}$ | \pm | | \pm | |
| $\frac{i - f}{f} \cdot \frac{V}{W}$ | \pm | | \pm | |

2. 3 海水中の ^{137}Cs の測定

1979～1989年、海水中の ^{137}Cs の分離と測定を、一般課程の選択実験として実施した。この時、 ^{137}Cs を分離して1個の測定試料を作成する部分を化学実験として実施し、測定の部分は、低レベル放射能の測定実験として東条隆夫氏により行われた。ここでは、化学実験を中心に、計測については結果のみを述べる。計測も含めた実習期間は1週間である。

2. 3. 1 海水中 ^{137}Cs の測定における化学分離実験器具、薬品類

りんモリブデン酸アンモニウム粉末：著者が前もって合成した乾燥粉末。環境放射能モニタリングのための市販品もある。

濃塩酸：JIS特級。

海水：実験当日、原研構内にある温水養魚開発協会養魚場のご好意により、日本原子力発電所からの温排水20～40リットルをポリエチレンびんに汲み取ってくる。

5種A濾紙：径70 [mm]

ガラスせんい濾紙：TOYO濾紙製、GA100 径70 [mm]

3リットル ビーカー：8個

時計皿：3リットル ビーカーのふたにつかう。 8個

かくはん棒：約40 [cm]、3リットルビーカーで使うのに十分な長さを要する。2～3本
水銀温度計、歯科用ピンセット：各1本

1000 [ml] および100 [ml] メスシリンダー：各1個

水流ポンプおよびトラップ：各1

真空用ゴム管：適宜

3方コック：1個

耐圧びん：2リットルおよび1リットル 各1個

耐圧びん固定用の鉄製スタンド

ブフナーろうと：径70 [mm] の濾紙が入るもの。つぎのろうとと同種でもよい。

ガラス製セパレート型ブフナーろうと：KS型ガラスファンネル、径70 [mm] の濾紙を使えるもの

同上用ガラスフィルター：No. 1

プラスチック容器：測定試料のりんモリブデン酸アンモニウムを入れるため。

径60 [mm] ×高さ40 [mm]、ふた付き。試料用およびブランク用各1個

100 [ml] メスフラスコ：1個

マグネチックスターラ：8台

上皿電子天秤：1台

pHメーター：1台

タイマー：1時間程度の使用時間で、セット時にスイッチの切れるもの。料理用などでよい。

通常、セットした時間後にスイッチが入、切、両方の差込みがある。8個

2. 3. 2 実験マニュアル (海水中の ^{137}Cs の測定)

実習に使用したマニュアルを以下に、また概略を図2. 3. 1に示す。

実験マニュアル 海水中¹³⁷Cs分離

(1) 海水を約20〔l〕採取してくる。

(2) 実験用海水の調製

KS型ガラスファンネルにNo. 1ガラスフィルターをセットしたもの（またはブフナーろうと）に5種A濾紙をのせて、水流ポンプで吸引しながら、2〔l〕耐圧びんに海水を濾過する。ゴミ、砂、小生物を除去するためである。

(3) ¹³⁷Csの捕集

1000〔ml〕メスシリンダーで海水を2500〔ml〕ずつ量り取り、3〔l〕ビーカーに入れる。約200〔ml〕を別の容器にとっておく。

ビーカーをフード内に置き、濃塩酸250〔ml〕を加える。海水1〔l〕につき100〔ml〕の割合である。

りんモリブデン酸アンモニウム2.5〔g〕（海水1〔l〕につき1〔g〕の割合）ずつはかりとり、それぞれの海水試料に加える。

攪はん子（スターラ）を入れて、マグネチックスターラー上に乗せ、タイマーを30分にセットして攪はんする。ビーカーを時計皿でおおっておく。

攪はん後、攪はん子を取り出してから、一晩放置する。

翌日、上澄みをデカントする。KS型ガラスファンネルNo. 1フィルター上にガラス繊維濾紙GA100、直径70〔mm〕（東洋濾紙製）をのせて、水流ポンプで沈澱を吸引濾過する。最後に、0.1M硝酸で洗う。しばらく吸引する。

ファンネル上部をはずし、付着したりんモリブデン酸アンモニウムを洗い流す。しばらく吸引した後、ポンプを止め、濾紙ごとポリエチレン容器に入れ、濾紙、ティッシュペーパーなどですきまを埋めて、測定試料とする。

(4) pH, 密度の測定

取り分けておいた200〔ml〕の海水を使う。

pHメーターでpHを測定する。水温も測る。

秤量した100〔ml〕メスフラスコに標線まで海水をいれ、再び秤量する。上皿天秤を使う。

実験マニュアル 参考文献

- (1) 笠井 篤、今井 利夫、保健物理、10、147（1975）。
- (2) N. Yamagata, Nature, 200,157(1963)。
- (3) 山県 登、“環境放射能測定法”，p. 173，共立全書，（1969）。
- (4) 日本化学会編、“環境汚染物質シリーズ、放射性物質”，丸善（1976）。

図2.3.1 海水中¹³⁷Csの補集研修生実験

海水 20リットル

濾過 (5種A濾紙、水流ポンプ使用)

2.5リットル海水を3リットルビーカーに入れる(8個)
それぞれ濃塩酸250 mlをかき混ぜながら加える
それぞれりんモリブデン酸アンモニウム粉末2.5 gを加える
スターラをいれタイマーを30分に設定。ビーカーを時計皿でおおう
マグネチックスターラ上で30分攪はん
スターラを取り出して、翌日朝まで放置
上澄みをデカント

濾過 (ガラスせんい濾紙GA100, 径70mm)

2.5 g × 8 の沈澱をひとつに集める

0.1M HNO₃ 少量で洗う

放射能測定

pH, 密度、水温 測定

2. 4 ^{87}Rb の半減期の測定

おもに原子炉工学専門課程における選択実験のひとつとして、液体シンチレーションスペクトロメトリにおける効率トレーサー法を ^{87}Rb の半減期測定に適用した実習を行った。実習期間は、2日間（全日）であった。3年間実施した。

2. 4. 1 ^{87}Rb の半減期測定における実験器具、薬品類

液体シンチレーションスペクトロメータ：Packard Tricarb Model 3320

^3H および ^{14}C 標準試料セット：Packard 製

塩化ルビジウム水溶液：Merk Suprapur の塩化ルビジウムを純水に溶かしたもの。

1 試料に、2.00 [ml] 使用する（ホールピペット使用）。

四フェニルほう酸塩沈澱法による重量分析で測定したルビジウム濃度は、

19.238 ± 0.029 [mgRb/ml] であり、放射化分析により不純物カリウムは検出されなかった¹⁾。

シンチレーションカクテル：Insta-gel, Packard 製

^3H 、 ^{14}C 、 ^{60}Co および ^{147}Pm 測定試料各1個（未知試料）：標準のガラス製バイアル瓶と各々の放射性核種溶液およびInsta-gelを用いて、教官の方であらかじめ作成しておく。

2. 4. 2 ^{87}Rb の半減期測定実習

実習内容は、つぎのとおりである。

① 試料チャンネル比法により、 ^3H および ^{14}C 未知試料の放射能を測定する。

② 外部標準法により、おなじ ^3H および ^{14}C 未知試料の放射能を測定し、一致することを確認する。

③ 効率トレーサー法により、 ^{60}Co および ^{147}Pm 未知試料の放射能を測定する。

以上(1)～(3)は、ラジオアイソトープ・原子炉研修所ラジオアイソトープ研修部門（当時）の石河寛昭氏により、保健物理専門課程における液体シンチレーション実習で使用された“液体シンチレーション実験マニュアル”にもとづいたものである。

④ ^{87}Rb の半減期測定：効率トレーサー法により、 ^{14}C no quencing 標準試料を用いて、塩化ルビジウム水溶液 2.00 [ml] と Insta-gel 10 [ml] の混合物を測定する。測定時間は、バックグラウンド（空バイアル）10分、ルビジウム試料5分、 ^{14}C no quencing 標準試料 2分のくりかえし、である。計算には、tropical year (3.1556926×10^7 sec/year) Rb原子量 85.4678、 ^{87}Rb の同位体比 27.83 [%] を使用した。

2. 5 燃焼率測定実験の改良

この研修生実験は、著者が原子炉研修部門に着任したとき、一般課程で、すでに行われていた。しかしながら、その測定試料調製には問題があると考えて改良した。改善した試料作成法は研修生実験で1976年から1994年まで、一般課程および原子炉工学専門課程で使用された。

2. 5. 1 燃焼率測定実験試料作成法

1976年当時の原子炉化学部分析センターには、1960年頃分析試料として試験的に使用したと思われる、ウラン-アルミニウム合金があった。ウラン濃度はさまざまであったが、その中から5.13%天然ウラン(重量パーセント)のアルミニウム合金を1グラムほど譲り受けることができた。これを圧延して薄い板状にし、小さく切って照射試料とした。合金の重量は、照射試料1個あたり1.5～4.0[mg]程度である。1M硝酸、蒸留水、アセトンの順に洗浄し、乾燥後、秤量したものを長さ数[cm]の石英アンプル(直径3[mm])に入れ、化学部分析センターガラス工場に依頼して減圧密封し、試料番号を刻印する。試料等の取扱には、布手袋を着用し、蒸留水、アセトンで洗浄したピンセットを用いる。エチレングライコール法による漏洩試験に合格したものを照射試料として研究炉利用課に届ける。

中性子照射には、JRR-2またはJRR-4を利用した。照射後の試料を研究第3棟の314, 316号室(第1種放射線管理区域)に運び、約1カ月経過後試料の開封を行う。

RI用フード内を養生したのちカプセル、ついでアンプルを壊して照射試料を取り出し、アセトン洗浄後、メンディングテープで、ステンレス製試料皿の中心に固定して、測定試料とする。はじめは、適宜照射した試料1個を使用していたが、のちには2種類の試料を実験に供した。JRR-2照射では2個、JRR-4照射では照射時間に応じて3～4個のウラン-アルミニウム合金片を照射し、当該年度では1個を、次年度には全部を1個のステンレス製皿(直径25mm)の中心に固定して使用する。すなわち、実習の行われた年度に原子炉照射を行い約1カ月冷却したものをA試料、それと同じ照射条件で重量をふやした試料を、次年度に冷却期間約1年のB試料とする。したがって、その年度のB試料は前年度の照射試料である。1987年までは、原子炉工学専門課程(当時)でも同様の実習を行ったが、一般課程で使用した試料をそのまま使用した例もある。なお1988年以降、照射試料の運搬、処理と測定試料の作成を放射線照射振興協会に依頼した。

2. 5. 2 実験マニュアル(燃焼率測定実験)

前任者の使用してきたもの²⁾を、引続き用いた。なお、核分裂収率の数値については、別なもの³⁾を使用した。

また、最後の数年間に、補足資料として用いたものを、つぎに示す。

Ge検出器をもちいた ガンマ線スペクトロメトリによる ウラン試料燃焼率の非破壊測定

原子炉燃料の燃焼率に関する情報は、燃料体の炉心内位置の配置替えによる燃焼率の向上、プル

トニウムの生成量の推定や保障措置などにおいて重要である。

原子炉で照射した核燃料がどのくらい燃焼したか、をあらわすために、燃焼率または、燃焼度をもちいる。燃焼率は、初期装荷燃料中の重元素（ウラン、プルトニウムなど）の原子数にたいする核分裂数の比である。

$$\text{燃焼率} = \frac{\text{核分裂数}}{\text{初めの重元素原子数}} \times 100 \quad [\%]$$

燃焼度は、核燃料単位重量あたり核分裂によって放出された熱エネルギーの量である。通常MWd/tであらわす。

$$\text{燃焼度} = \frac{\text{全放出熱エネルギー}}{\text{初めの重元素重量}}$$

いずれも、burnupという。

測定法には、破壊法と非破壊法がある。

破壊法では、核燃料物質の一部を試料とし、それを化学的に溶解し、水溶液としたのち、化学分離をおこなう。分離の目的とする対象は、核分裂生成物の中の、ある核種であるか、重元素である。分離したものは、質量分析や、放射線測定により定量する。

非破壊法では、一般に、原子炉燃料にたいして、ガンマ線スペクトロメトリをおこなうことが多い。本実験でも、この方法を採用する。ガンマ線を測定するのであるから、核分裂生成物を対象とする。

非破壊法は、測定試料の溶解、化学分離、質量分析のような、時間と手間のかかる方法ではないが、ガンマ線のコリメーター、遮蔽、燃料棒の移動装置など、設備が必要である。設備をととのえることができれば、自動化でき、高放射性の燃料棒を測定できる。

また、ガンマ線スペクトロメトリをおこなうので、一般に、1回の測定で、複数の全エネルギー吸収ピークのデータがえられる、すなわち、複数の核種の測定ができる。

しかし、核分裂生成物の中には、セシウムのように、燃料棒中の分布が均一でないものがあり、測定結果に影響をあたえる。

また、放射性核種の測定であるから、長期間にわたって、おなじ核種を測定すると、精度が変化する。試料の冷却期間からみて、精度よく測定できる放射性核種をえらぶ必要がある。

核分裂生成物を対象として、測定をおこない、燃料の単位重量あたり目的とする核種の量を定量する。核分裂生成物中の各核種について、核分裂収率が既知であるから、燃料の単位重量あたり核分裂数がわかる。核分裂によって放出されるエネルギーが既知であるから、燃料の単位重量あたり放出エネルギーがえられる。これがガンマ線スペクトロメトリによる非破壊測定の原理である。

この場合、目的とする核種(burnup monitor)には、いくつかの条件がある。

半減期は、測定に適したものであること、

燃料内拡散において、温度依存性が小さいこと、
 先行核種をふくめて、中性子捕獲断面積が小さいこと、
 放射化生成物にまれであり、核分裂生成物として特異的であること、
 核分裂収率が、核燃料内の核分裂性物質について、ほぼ等しく、かつ大きいこと、
 核データが正しくわかっていること、
 ガンマ線スペクトロメトリにおいて、測定しやすいこと、があげられる。

実験

測定器など。Ge検出器、遮蔽ほか。

試料 原子炉で照射したウラン-アルミニウム合金 ウランの含有量5.13% (w)

データの整理

- (1) 目的核種(burnup monitor)の計数値 [cps] から放射能 [dps] をもとめる。
 ウラン 1g あたりの数値とし、a [dps] とする。
- (2) 目的核種の、測定時における個数をもとめる。目的核種の壊変定数を λ [sec⁻¹] とすると

$$N_1 = \frac{a \text{ [dps]}}{\lambda \text{ [sec}^{-1}\text{]}} \quad \text{[個]} \quad (1)$$

- (3) 試料(核燃料)を原子炉から取り出した時点の個数をもとめる。冷却期間を t とすると

$$N_2 = N_1 e^{-\lambda t} \quad (2)$$

- (4) さらに、照射中の放射性壊変があるから、これを加える。

燃焼中の燃料中に存在する ある核種の原子個数 N は 時間にたいして

$$\frac{dN}{dt} = P - \lambda N$$

であらわされる。ただし、 P は、ある炉出力において 一定の時間的割合で生成する ある核種の原子個数； λ は、ある核種の壊変定数 である。したがって

$$N = \frac{P}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t})$$

これに条件をいれる。すなわち、 $t = T$... 燃焼時間
 $N = N_2$... 燃料取り出し時(照射終了時)における
 燃料中 ある核種の原子個数

を代入すると
$$P = \frac{\lambda N_2}{1 - e^{-\lambda T}}$$

燃焼時間内に生成した ある核種の総数は、 $P \times T$ であるから

$$N_3 = \frac{\lambda N_2 T}{1 - e^{-\lambda T}} \quad (3)$$

(5) 燃料の単位重量あたり起こった核分裂数は、核分裂における目的核種の生成率、すなわち、核分裂収率 Y からもとまる。 Y が [%] で表されている時には、分率になおした値をつかう。

$$N_f = \frac{N_3}{Y} \quad (4)$$

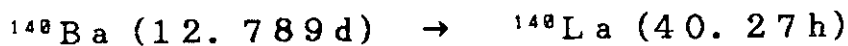
(6) 原子炉内で発生したエネルギーは、燃料の単位重量あたり、核分裂回収エネルギーを 201.7 MeV とすれば、

$$1 \text{ [MeV/g]} = 1.854 \times 10^{-18} \text{ [MWd/t]} \quad \text{であるから、}$$

$$BR = 3.739 \times 10^{-16} N_f \quad (5)$$

(7) ^{140}La を burnup monitor とした場合

このときは、核分裂によって生成した ^{140}La と、 ^{140}Ba の放射性壊変によって生成した ^{140}La とを区別して考えておく必要がある。前者がすでに壊変し、後者のみを考慮すればよいこと、さらに、放射平衡がなりたっていることを確認し、 N_1 を ^{140}La の測定値からもとめたのち、 ^{140}Ba の個数に換えて、そのあとの計算をおこなえばよい。



の場合、過渡平衡であるから、平衡時

$$N_{\text{La}} = \frac{\lambda_{\text{Ba}}}{\lambda_{\text{La}} - \lambda_{\text{Ba}}} N_{\text{Ba}}$$

がなりたつ。

補足資料の表1 ^{235}U の熱中性子による核分裂における おもなF. P. 核種の核分裂収率
(累積収率)

B.F.Rider, NEDO-12154-3(C)(1981), Recommended cumulative yields

| 核種 | 核分裂収率 [%] | |
|-------------------|--------------------|---------------------|
| | $^{235}\text{U}_T$ | $^{239}\text{Pu}_T$ |
| ^{95}Zr | 6.52 | 4.95 |
| ^{103}Ru | 3.04 | 6.95 |
| ^{106}Ru | 0.401 | 4.30 |
| ^{131}I | 2.89 | 3.87 |
| ^{132}I | 4.32 | 5.41 |
| ^{137}Cs | 6.19 | 6.71 |
| ^{140}Ba | 6.19 | 5.39 |
| ^{140}La | 6.20 | 5.41 |
| ^{141}Ce | 5.82 | 5.31 |
| ^{143}Ce | 5.97 | 4.43 |
| ^{144}Ce | 5.50 | 3.74 |
| ^{148}Nd | 1.67 | 1.64 |

3. 研修生実験の実施状況と結果および考察

3. 1 溶媒抽出の実習

3. 1. 1 溶媒抽出実習の歴史

原子炉研修部門の一般課程では、当初から化学実験として、非密封のR Iを使った実習が行われてきたようであるが、その経緯は、著者には不明である。著者が原子炉研修部門に着任した当時、化学実験室に残されていた大量の古びたガラス器具類や伝聞からおしはかると、それ以前の原子炉研修部門で化学部の協力によって実施されていた化学実験は、ラジオアイソトープ研修部門で行われていた沈澱を扱う実験や、放射化分析、溶媒抽出などの実習と類似のものであったように思われる。そのような状況の中で、化学部関係者の専門であった溶媒抽出が取り入れられたのは、ごく自然のなりゆきであったといえよう。長年溶媒抽出の研究に携わった研究者にとって、それはやさしい内容であり、“簡単な”実験であった。

1970年頃の核分裂生成物の分離実験手順を図3. 1. 1に示す。ラジオアイソトープ研修部門で行われていた、イオン交換による核分裂生成物の分離実習にヒントを得たものと思われる。この時原子炉研修部門の担当者は、溶媒抽出について専門ではないなどの理由で、準備と後始末を中心に、実習のかなりの部分を化学部に依存していた。図3. 1. 1を見ると、原子炉研修部門担当者によって追加された説明のレベルと比べ、化学部担当者の提案した実習内容のレベルがかなり高いことが分かる。

一方、化学部の負担は少なくなかった。実習のためのR Iの購入、開封、混合など研修生実験のための試料調製、ガラス器具の準備やイオン交換カラムなどの作成、2週間(午後)の間実験室で4回繰り返される同じ実験の指導、実習後に残される大量の放射性汚染ガラス器具洗浄のための数日の労働、研修生が化学の専門家ではないために起こるさまざまなトラブル、とんちんかな質問やレポートへの対応など、研究員にとっては楽なものではなかった。実験班によっては、ほとんどデモンストレーションになってしまうケースもあったと聞いている。

このような状況の中で1973年に、著者は化学部の一員として研修所講師を依頼され、このとき初めて実験内容の詳細を知った。放射化学の専門家から見るとたしかに複雑な実験ではなかったが、原子炉研修部門の担当者から、実習に余裕がないという研修生が多いと聞き、簡略化を試みた(図3. 1. 2)。それでもなお、著者が研修生の化学知識や経験、研修生の考え方を十分に理解していなかったため、研修生の専門や考え方と実験内容との不適合から来ると思われる問題点が見られた。その上初めて非密封線源を用いる化学実験を行うために生じる緊張も加わって、抵抗感と飽きの悪さが目立った。教官側が実験の準備や後始末を引き受けて、研修生は肝心の実験だけをすればよい、という、いわゆる殿様実験であるにもかかわらず、実習の中身を理解させるのは難しかった。実習は“とにかく規定の実験を終えること”が目的になりがちであった。さらに、一定の休憩時間がとりにくい非密封線源の取扱作業はトラブルに結び付きやすく、一旦放射性汚染が見つかり、長時間拘束される。なにより問題なのは、図3. 1. 1からも分かるように、化学分野に関しては硝酸の化学式から示す必要があるようなレベルの研修生に対して、管理区域作業の説明(ゴム手袋の扱い、放射性廃棄物の扱い、管理区域の出入り、非密封線源作業における注意事項など)を含めて約15分のガイダンスの後実習を始めても、1時間から2時間の超過勤務になると言う点であった。実験で何をしているのか理解していない研修生が次の段階を予想できるはずがなく、言われたことを終ればつぎの指図を待つ、という繰り返しや、待つ間に分離した放射性核種が壊変してしまうなど、手際の良さを期待するのは難しかった。結

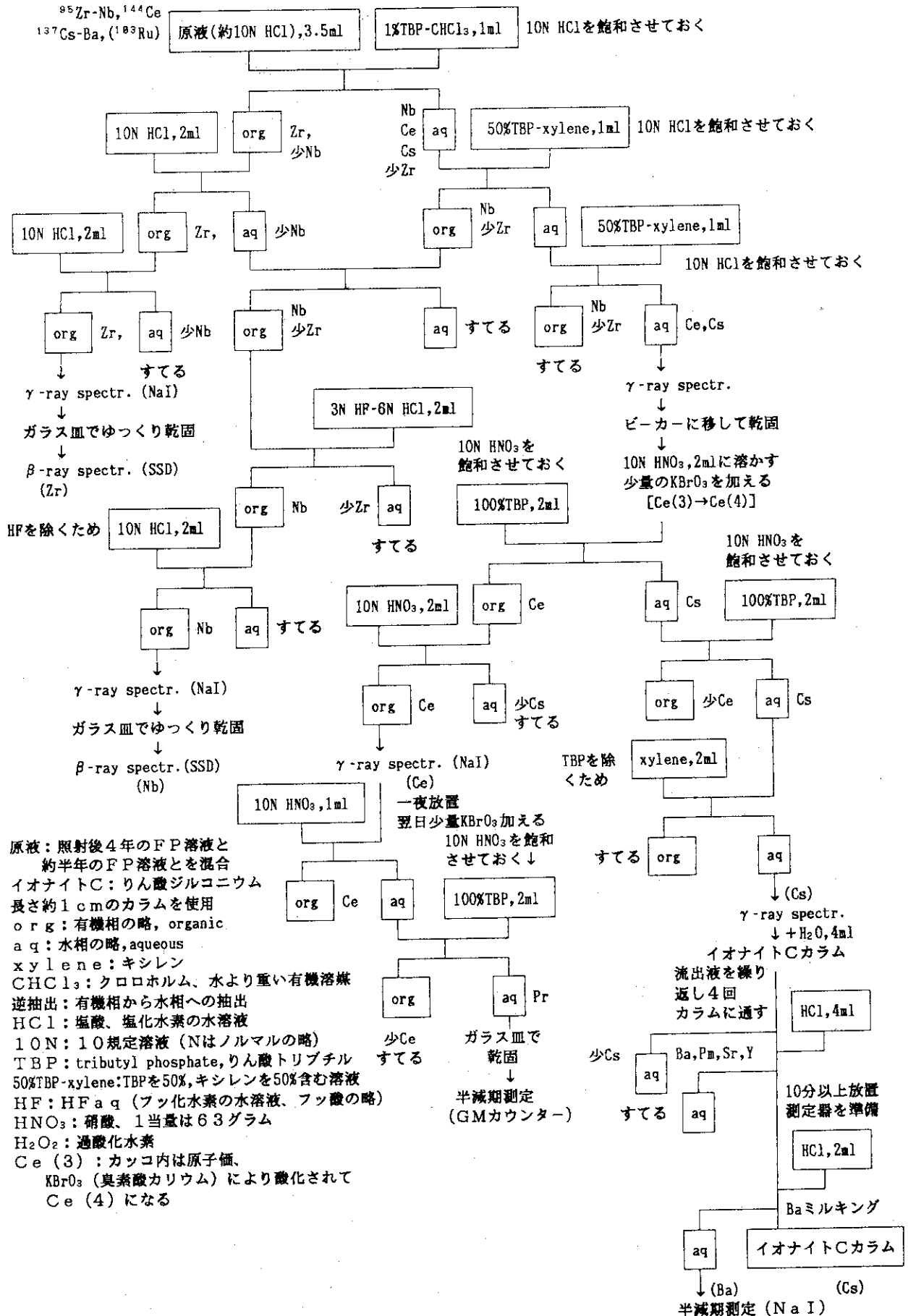


図3.1.1 1970年頃の溶媒抽出実習のマニュアル

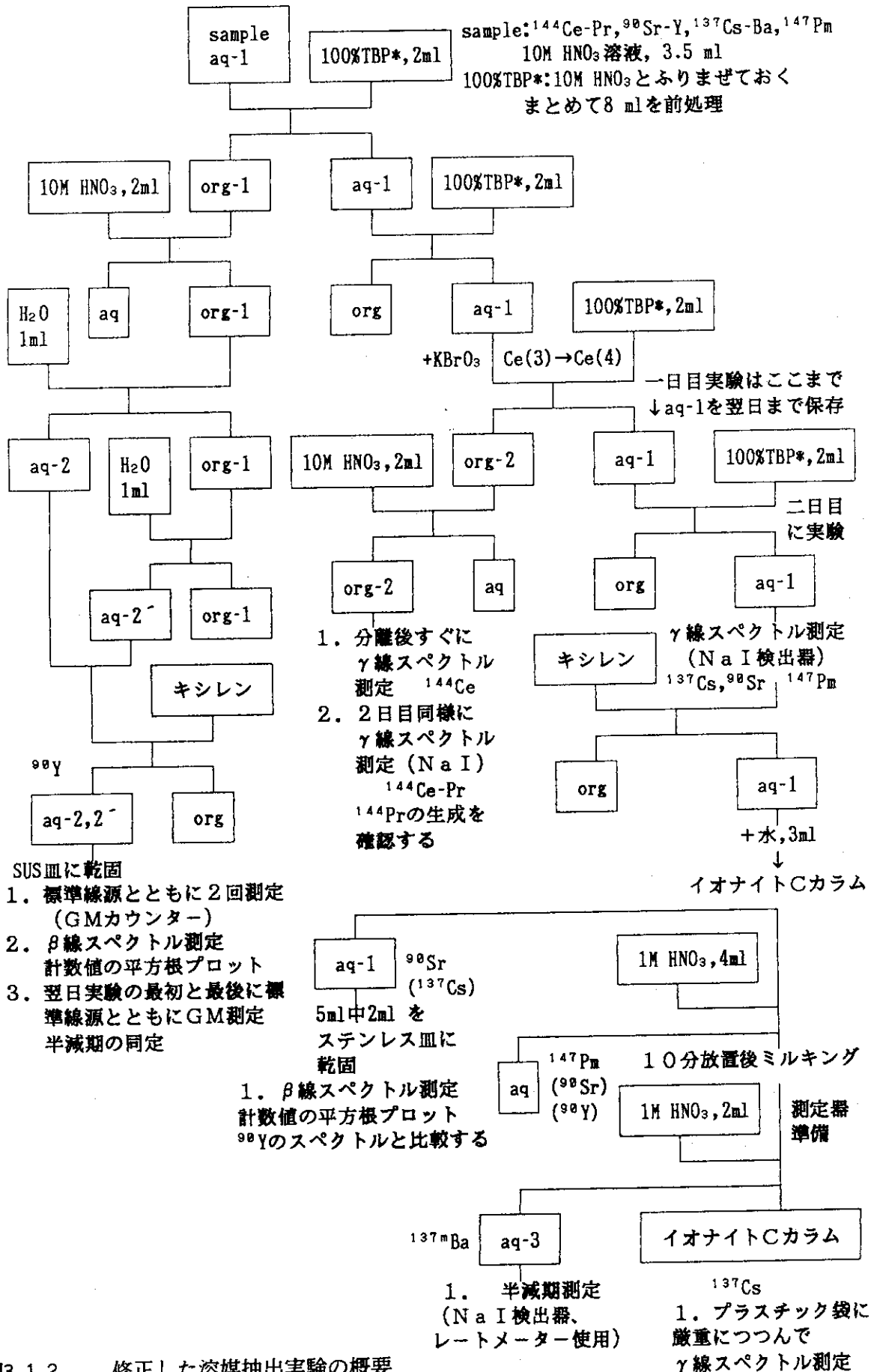


図3.1.2 修正した溶媒抽出実験の概要

試料： ^{90}Sr -Y, ^{137}Cs -Ba, ^{144}Ce -Pr
 10M HNO_3 溶液, 3 ml
 contactor-Y に入れて
 である

註1：contactorとは2相を振り混ぜるための、5ml 共栓つきメスシリンダーをいう
 註2：100%TBP, 2ml*は10M HNO_3 で前処理する(まとめて8ml)

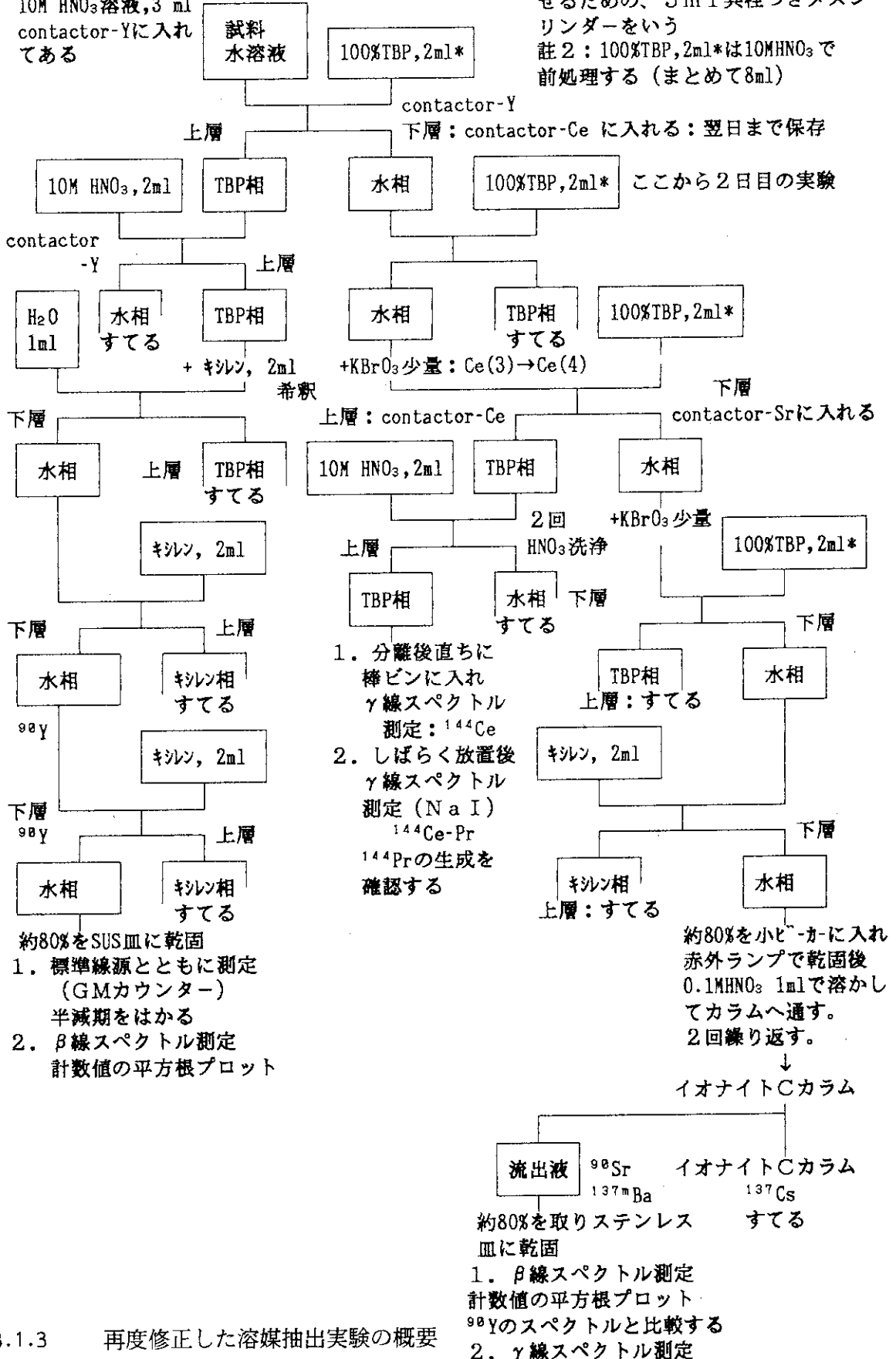


図3.1.3 再度修正した溶媒抽出実験の概要

局教官のデモンストレーションになってしまう場合、何をしているか分からない実験を見ているのであるから、面白いわけがない。しかしそうでもしなければ、実験はいつ終わるかわからないようなテンポで続くのであった。教官だけが、張り切って声を張り上げ、その日の実験を片付けるのであった。電気や機械系の学科に学んだ人々にとって、彼らの言葉によると“何をやっているのかよく分からない”実験のためにただ手を動かしている、という状態は、強制力の働く条件下でなければ難しい上、教室の雰囲気悪化させる。さらに、管理区域内で数時間にわたって継続する、しかも放射性汚染を避けるため緊張を強いられる立ち作業では、教官、研修生ともども疲労のため、徐々に不注意、手抜きの作業を引き起こす危険も感じられた。

さらに、当時の原子炉研修部門の計測担当者の熱意もあって、その頃には貴重品であった γ 線波高分析器などを、塩酸や硝酸の蒸気が漂う放射線管理区域内の化学実験室で使うために、実習の都度、研究2棟3階から研究3棟3階まで運んだ上調整する、ということも行われた。 γ 線スペクトロメーターの老朽化による故障と実習の中断、同時にべつな教室で実習指導中の教官達による修理なども行われたのであった。

1976年著者は、原子炉研修部門に転属になった。そこで、一人の化学屋として、化学を専門としない人々と仕事をし、ゆくゆくで認識したことは、まず、研修生に限らず電気を専門とする人達が畑の化学に対して持っている違和感であり、物理と化学の本質的な違い、思考経路の差であった。それは、化学を専門とする人達の集団から来た著者にとっては一種のカルチャーショックであった。あらためて、研修生実験を検討し、まずは、研修生に実験内容を理解してもらうことが大切だと考え、さらに簡略化をおこなった(図3.1.3)。その基本となった考え方の第一は、専門性である。溶媒抽出は再処理に利用されている、という点で原子力分野に含まれるけれども、原子炉とは直接結び付かない。また、電気系研修生は一般に、事実から導かれる帰納的な論理よりも、頭で考えだした論理や仮定の方に興味をもつ。講義で聞いた論理を実験で証明する、というタイプの実習を好み、それが科学であると信じて疑わない研修生も少なくない。これに対して化学系研修生は、実験事実から経験法則を導くとか、実用性を引き出すといった帰納的な方向を好む。今後放射化学関連の仕事をしようという人々なら、溶媒抽出法で核分裂生成物の分離ができる、という事実に興味をもち、やってみたい、と思うかもしれない。しかし、電気や機械系の研修生は、別な受け止め方をする。一般課程では、電気、機械系研修生がほとんどであるため、実験の目的をただ単に分離できることが面白い、という点に求めるのではなく、なにを証明するために実験をしなければいけないのか、と言う点にずらしてくる。そこで、分離実験の“予想”をする、という形で、分配比に関連した計算を実験実習の前のガイダンス段階で取り入れる方法を採用し、実験内容に対する理解を深めるよう配慮することにした⁴⁾。

第二点として、授業内容のレベルがある。原子力という世界では、放射化学研究室の研究者にとって常識であるようなことが、原子力発電所で働く電気、機械系の人達から見れば全然関係のないこと、あるいはその逆の事柄が少なからず存在する。だからといって、ただ単に内容をやさしくすればよい、というものではない。まず化学実験特有の技術は、研修生のほとんどにとって必要ではない。実験技術は簡単に、安全に、多少いい加減な、素人のぶっつけ本番であってもできるものにする必要がある。一方、電気屋の評価に耐え得るデータが得られ、内容は学ぶ価値があると思わせるものでなければならぬ。風袋という言葉さえ通用しない場合があるのが現実であり、教える側にとって厳しいものがある。しかし、当分は、溶媒抽出実験を継続せざるを得ない状況であったため、さらに簡略化を試みた。その理由として上に述べた点の外にいまひとつ、

著者の原子炉研修部門着任以後、化学部では前述のような“大変なお手伝い”は、行わないことになった点がある。つまり、研修生が来る時間割上の時間だけは、非密封線源の扱いに慣れない研修生を指導するために講師を依頼できる、ということになった。この結果、準備と後始末はいっさい著者の仕事となった。あわせて、化学実験専用が高価なγ線スペクトロメーターを持つことなど不可能であり、借用すれば計測担当教官の負担が大きい上、老朽化したγ線波高分析器の更新も難しかったことなど、研修所教官による手間に対する教育効果を考えると、さらにすぐれた教育用実験を開発すべきだという結論を得た。そこで、γ線スペクトロメトリーをやめ、GMカウンターによる測定を取入れた実習を開発した。有機相と水相をふりまぜる5〔ml〕および10〔ml〕の共栓付きメスシリンダーについては、1回あたり24本（3本×8班）に減らして実験後の洗浄器具を少なくし、のちに使い捨てとした。測定試料は洗浄後再使用していたガラスびんを止めてポリエチレン棒状びんにとり、使い捨てとした。イオナイトCカラムの使用もとりやめ、実験準備から除いた。ガスバーナーを使い、1本ずつ手づくりしていた使い捨てガラスピペットについては、1回の実験に約200本（最低25×8班）から約40本（最低5本×8班）に減らしたが、のち外注に切り換えた。実験前の計算と実験操作の簡略化は、何をやっているのか分からない実験を減らすのに役立つと考えられた。

改善した溶媒抽出実習は、化学部の協力を得て1985年まで続いた。中止の理由は、実験に使っていたRI、 $^{144}\text{Ce}-\text{Pr}$ の製造が中止になったことである。以後、原子炉でも使用されている、イオン交換樹脂を使う実習に切り換えた。

3. 1. 2 溶媒抽出実習の状況と実験結果および考察

実習は前記の実験マニュアルにあるとおり、2日にわたって行う。いずれも午後で1時10分から5時30分までである。ただし、汚染、やり直しなどのトラブルがあった場合を考慮して、4時30分頃終了をめどに実習をすすめた。

実験を始めるまえに、2日とも実験内容の説明と計算を行う⁴⁾。電気、機械系の研修生に対する配慮である。先に計算をすることで、実習を一見演繹的な形にするためである。第1日目にはこの外に放射線管理区域への立ち入りに際して注意事項や手続き、作業用靴下や管理区域用作業衣の取扱い、管理区域内実習室の状況を説明する。一方研修生は、ピペット取扱練習、実験班ごとに臭素酸カリウムの秤量、ゴム手袋の使用経験のない研修生では着脱の練習を行う。

非密封線源を使った実験は、一回の実験で実験班2班ずつ実施した。実験中には各班に1名の割合で指導教官がつき、特にゴム手袋を用いるフード内作業に注意した。実験内容については、計算をとりいれた説明の効果か、こまごまと注意したり、実験の流れを説明する必要がほとんどなく、具体的な実験操作についての指導が主であった。

トラブルなく実習を終えた場合には、レポート作成のためのデータ整理を行う。半減期測定では、長半減期成分の測定をおろそかにするとデータの差引計算で誤差の原因となることを説明する。この説明がないと、60分の測定を中断しようとする研修生が現れることがある。計測時間が約40分の時点で充分であると強硬に主張する場合には、一応半減期を求めてもらう。実際に不十分な測定時間でデータ解析をすれば、長半減期成分の勾配が大きめになるから、 ^{144}Pr の半減期は当然短く出る。何を分離しているか不明の場合には、間違ったデータを手に入れる結果になることを理解してもらう。パソコンによる学習のようにリセットできるつもりでいても、一

巨變変してしまった放射能を測りなおすことはできない。論理だけではどうにもならない現実にはぶつかるわけである。 ^{144}Pr の約17分という半減期は、実験であわてる必要もなく、学生実験にはちょうどよい長さと思われるが、なかには半減期を追いきれない研修生がいたのも事実である。計算式によるグラフの方が、実験データによるグラフよりも優れている、と考えているかに見えた。たしかに、計算データの方がデータのバラツキもなく、きれいではあるが。

片対数グラフ上2成分を含む衰変曲線を得た後、各成分の半減期を決める場合には、短半減期成分に対して、できるだけ長い直線をひいて、溶媒抽出実験マニュアルの(3)式を応用するように指導する。たとえば(3)式で、 N_1^0 が 10^4 、 N_1 が100となるような t をグラフ上に読みとり、 λ から半減期を求める。しかし、縦軸の対数目盛りで、例えば2000から1000までに対応する横軸の長さ(時間)を読みとり半減期とする例が見られた。短半減期成分の直線を2桁以上にとれば、単に二分の一になる長さを読み取るよりも良いデータが得られるとともに、基本的な放射性衰変の式を使う練習になる。ときには、半減期の逆数を出してしまうケース、 N と N_0 の入れ違い、が見られることがある。また測定値にもとづいて直線をひく作業で、数値の取扱いに慣れていない研修生もあり、実験班一同注目の作業であった。得られたデータが直線上にない点を含む場合、計算によらないで最小自乗法に近い直線を引くのは、経験者でないと難しい。一般に、数字の扱いに慣れていないと言いきれない状況といえる。

各年度毎に8班で実施された研修生実験による ^{144}Pr 半減期の平均値を表3.1.1に示す。後に述べるイオン交換実験における ^{137}Ba よりも誤差の小さい数値が得られており、約17分という半減期が、初心者にも測りやすい、学生実験に適したものであることが分かる。

表3.1.1 研修生による ^{144}Pr 半減期
測定結果平均値

| 年 | 半減期 [min] |
|------|-----------------|
| 1980 | 16.4 ± 0.53 |
| 1981 | 16.8 ± 0.41 |
| 1982 | 17.3 ± 0.11 |
| 1983 | 17.3 ± 0.30 |
| 1984 | 17.2 ± 0.13 |
| 1985 | 17.2 ± 0.19 |
| 總平均 | 17.1 ± 0.44 |
| | ($n=43$) |
| 最大値 | 18 |
| 最小値 | 16 |
| 文献値 | 17.30 |

A1板による $^{144}\text{Ce}-\text{Pr}$ 線源からの β 線の吸収測定の例を図3.1.4に、 ^{144}Pr の放射能の成長測定の例を図3.1.5に示す⁴⁾。

1979年までの研修生レポートの状況を表3.1.2⁴⁾に示す。マニュアルに見られるとおり、研修生に実験の目的を話してはいない。実習の内容を中心に話してある。したがって、研修生はそれぞれに目的を設定している。その状況から、研修生が実験内容をどのように把握したかが分かる。表3.1.2では、1980年以降と以前とに分けてあるが、1980年以降は、前述の実験マニュアルを使用し、それ以前は、図3.1.2の実験続いて、さらに簡略化した実験（図3.1.3）を実施していた。1980年以降は“計算による予備実験”を取り入れたため、“放射平衡の理解”という項目に分類可能な実習目的を記載したレポートが増えている。放射平衡は、フィッシュンチェーンの中に多く見られ、重要な学習項目と考えられる。一般課程では、化学実験の後に行われる燃焼率測定実験においても、核分裂生成物の γ 線スペクトル解析に関連して放射平衡を取り上げるほか、RI取扱主任者試験とも関連がある。

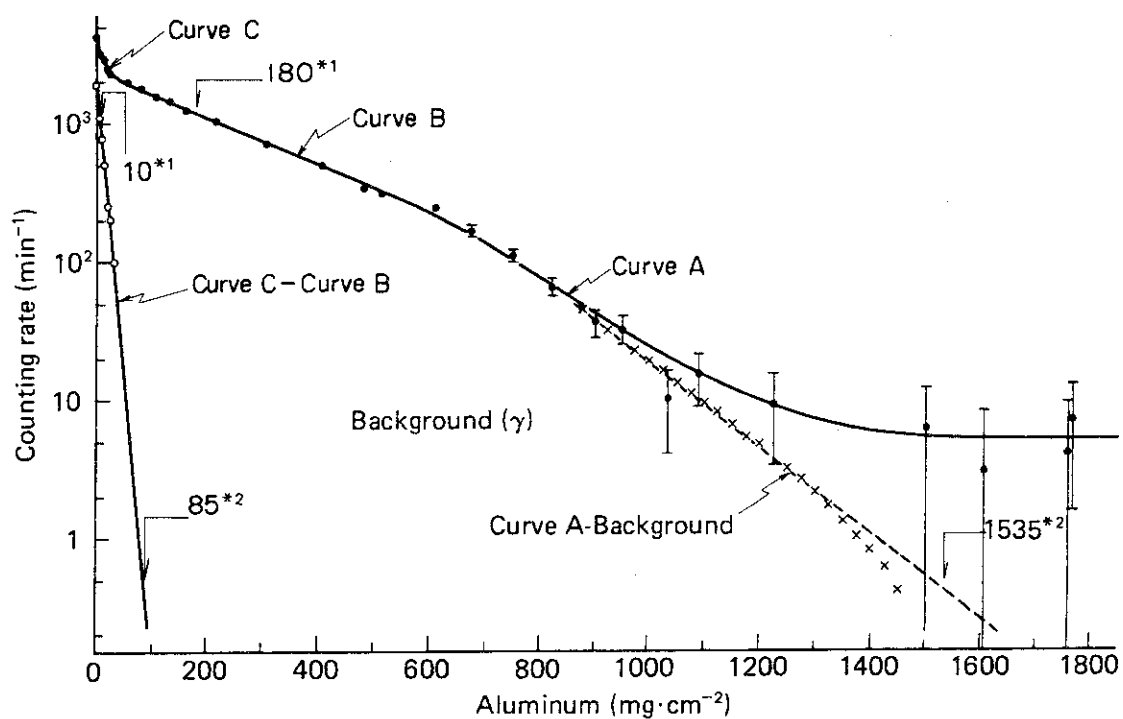
表3.1.2 研修生実験レポートに見られる実習の目的

| 実習目的 | 実験班数 (1980~1985) | 実験班数 (1977~1979) |
|--------------|---------------------|---------------------|
| 溶媒抽出の理解 | 14 (29%) | 14 (38%) |
| 分配比測定と放射化学分離 | 10 (20%) | 15 (41%) |
| 放射平衡の理解 | 25 (51%) | 4 (11%) |
| なし | 0 (0%) | 4 (11%) |

この実習指導の中でつぎのような問題点が見いだされた。

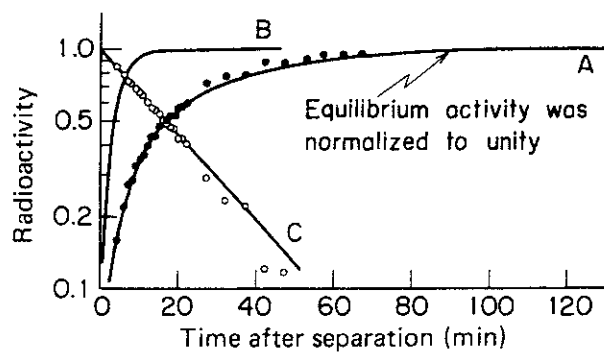
- (1) まず、有機溶媒と水溶液との区別ができない研修生にとっては、やりにくい実験であること。水と油といっても、研修生はすべて男性であるから、料理からの連想は難しい。実験に際して、どっちを取るのですか？ 上ですか、下ですか？ という問いを發する研修生を見ると、セパレート型のフレンチドレッシング、といて理解できるかどうか、疑問が残るところである。
- (2) 注射筒と使い捨てのガラスピペットによる有機相または水相の取り出しは、慣れない研修生にとって比較的難しい操作であり、吸い上げた液体がピペットの先から洩れる危険があること。まれではあるが、これを恐れて手がふるえる研修生には、交代してもらった。ガラスピペットは、廃棄の際に破損の危険性もあった。
- (3) 再処理につながるといっても、電力の現場からきた研修生にとっては、いまひとつピンと来ない内容であること。年代が後になればなるほど、研修生自身の仕事と直接関連のない授業を敬遠する傾向が見られるようになり、溶媒抽出実験の役割が徐々に小さくなるのではないかとこの懸念が生じた。
- (4) 研修生は、化学的内容よりも、半減期の測定であるとか、 β 線のAl板による吸収曲線など、測定の方に興味を持ちやすい。その上、半減期や ^{144}Pr の成長曲線で、計算式との完全な一致を期待する傾向は、電気系研修生の特徴といえる。たった一度の実験データの精度について考えるより以前に、そのような点を問題にする。

教官側で設定した実習の目的を、ある程度化学らしい、帰納的な考え方を知ってもらう点においたとしても、逆に反感を買うおそれもあった。著者側で意識せずに、化学特有の概念を取り



*1 = Thickness necessary to stop 50% of the beta rays ($d_{1/2}$)
 *2 = Thickness at $1/10^4$ of the value with no absorber

図3.1.4 $^{144}\text{Ce-Pr}$ β 線のAl板による吸収測定データ例



A = ^{144}Pr growth calculated
 B = $^{137\text{m}}\text{Ba}$ growth calculated
 C = Decay with half-life of 17 min
 ● = ^{144}Pr growth experimental
 ○ = Difference of unity and ^{144}Pr growth (experimental)

図3.1.5 ^{144}Ce から成長する ^{144}Pr 放射能の測定例

入れる結果となった実験内容例として、つぎのようなケースがある。すなわち、上記のマニュアルに落ち着く以前に、 ^{144}Pr の回収率を求める実験を入れていた。大多数の論理優先の研修生は、約80%などという回収率を許しがたい数値であるとして、なぜこうなったのかを追求した。研修生は、慣れない実験であるからうまくいかなかったのだ、という結論になった。著者からみれば、その回収率は、きわめて当然の値であった。せいぜい、2~3 [ml]程度の液量の試料を、5 [ml]の共栓つきガラス製メスシリンダーやガラスピペットで扱えば、ガラス器具への付着量は、かなりの割合になるのは当然である。容器内壁に全く付着させずに、液体試料を扱うなど、金輪際不可能である。化学実験経験者にとって、ごく当り前のことが、数値だけを扱うことが許されている人々にとって、“異常”なのであった。化学実験に慣れさえすれば、容器内壁に液体を付着させずに実験できるのであろうか？ これは、実体のある物質を取り扱う立場にある化学屋の物質観、考え方、価値観に対する挑戦であった。研修生の多くは具体的な事実よりも、数字に気を取られ、一回の溶媒抽出分離によって完全な分離ができないことも感覚に合わないようであった。スイッチのオン・オフとはまったく異なる、“不完全で異常な”自然現象であつたらしい。遂に、完全な回収率や純度を追求しない化学屋のやりかたを非難するものまで現れた。2回実施したのち、あまりの抵抗に驚き、実験から回収率を求める部分を除いた⁴⁾。すなわち、必ずしも研修生に合った実験ではなかったものの、アナログ的、現実優先的な実習とデジタル的、論理優先という研修生の考え方との違いが明瞭になった、電気や機械系の若い人達の考え方を知ることができた、という点ではまことに面白い実験であった。これを教訓に、後出のイオン交換実習では、クロマトグラフィの説明をとりいれてデジタルでない化学の一面を示すことにした。別な授業の中で同位体希釈法の説明に苦勞させられるのも、同じ理由によるものと思われる。物理屋から見ると、化学屋とは実にいい加減な種族に見えるのであろう。

さらにつけ加えるならば、この溶媒抽出実験には長所もあった。化学実験と非密封RI取扱いの経験のない研修生にとっては、実験内容の豊富な実習であり、それなりに、皆一生懸命に実験した。また、非密封RIの取扱いを経験することに意味があるとされた時期もあった。しかし、研修生が原子炉建屋内で非密封RIに相当する放射性汚染物品などを業務上取り扱っており、その放射能レベルも原子炉の方が高く、放射線防護上の設備や器具も原子炉の方がずっと厳しい、という状況になり、実習授業の意味を、非密封RI取扱い経験のみに求めるのは無理になった。このような状況の下では、実験内容を、研修生にとって必要性が感じられるもの、分かりやすいものにすることが必要という結論を得た。他方、溶媒抽出を放射化学分析技術のひとつとして、あるいは非密封RI取扱い技術の教育訓練の中で実施するならば、研修生の専門や実習目的によっては、長所の多い有用な実習と考えられる。すなわち、 ^{144}Pr の半減期が学生実験には極めて適切であることや、GMカウンターによる β 線の区別のように高価な計測器を使わないことなどがあげられる。ただしガラスピペットなどのガラス器具は、マクロピペットと使い捨てチップ（可燃性）などプラスチック製品に代える必要がある。化学系の研修、研修生に向く実習と言える。

3. 2 イオン交換の実習

3. 2. 1 研修生実習としてのイオン交換実験の開発

本実験開発の動機は、一般課程の研修生実験で使用していたRI、 $^{144}\text{Ce}-\text{Pr}$ の製造が中

止となり、溶媒抽出実験を継続できなくなったことである。しかし、前述のように溶媒抽出実験を実施する中で問題を感じていたことから、

①原子炉研修部門研修生の実習にふさわしいRIを使う、

②原子炉との関連性の点で、溶媒抽出より関連の大きいイオン交換をとりあげる、

の2点を考慮して、新しい研修生実験を開発した。一般に学生実験では、低エネルギーのβ線放出核種や揮発性の放射性物質、たとえば、トリチウム、ヨウ素などは、ふさわしくない。そこで、 ^{60}Co と ^{137}Cs を使うことにした。研修生実験における溶媒抽出とイオン交換の違いについては、後に述べる。

イオン交換は、原子力発電所ばかりでなく、再処理など、原子力分野で広く利用されている⁹⁾。イオン交換は、再処理工程の中で分離精製に利用されているほか、原子力発電所でも冷却水の浄化に利用されている。ところが、長年原子炉の運転に携わっていても、イオン交換樹脂など見たことがない、という者も少なくない。そこで、イオン交換樹脂を実際に使った実験で、その実物にふれると同時に、その特徴を知ることも大切である、と考えた。

実験はバッチ法による分配比*の測定と、 $^{137}\text{Cs}-\text{Ba}$ から $^{137\text{m}}\text{Ba}$ の分離である。後者は、古い溶媒抽出実験の中でカラム法により実施されていたものを改良し、バッチ法で $^{137\text{m}}\text{Ba}$ を分離するようにして成功した。

3. 2. 2 研修生実習の状況と実験結果および考察

実習は、2日間（午後）で実施する。実験班は3ないし5名で、一回に2班ずつ、午後2日間で4回または3回繰り返した。

第1日にはまずコールド実習室で、2章と3章（アンダーラインはイオン交換実験マニュアル内の事項を表す）の説明および分配比に関する計算をする。計算では、分配比Kdをイオン交換樹脂相への吸着量%への換算をする。なれない者には、分配比からイオン交換樹脂相への吸着状況を読み取るのは難しいが、樹脂相と液相の体積を限定して、吸着%になおせば、分かりやすいと考えられる。これは、溶媒抽出実験による研修生実習の経験⁴⁾から、電気、機械系の研修生が多い点に配慮したやり方で、まず計算値から化学分離の特徴を理解してもらうためである。化学系の者には極めて当然のことなのであるが、クロマトグラフィという化学らしい化学特有の“特殊技術”が必要なのが化学分離なのである。一方、前述のように“回収率は100%があたりまえ”という電気系研修生がいる。経験や具体的事実を重要視する帰納的な考え方は、電気、機械と化学との協力の中で働いている原子力発電所職員にとって、知識とともに習得必要な、大切な考え方であり、専門にとじこもらない、視野の広い原子力専門家を育てる目的にかなったことと考えられる。ある研修生から、トラブルの解決に際して理論優先か、現場からはじめるか、化学屋と電気屋では、やり方に差がある、という話があった。予想外のトラブルでは、それまでの演繹的なやり方の中で考慮していなかった部分や、経験の中に解決法がある、ともいわれる。化学的な発想も時には役に立つのではなかろうか。

$$* \text{分配比 (Kd)} = \frac{\text{乾燥樹脂 } 1 \text{ [g] あたり吸着されたある物質の量}}{\text{これと平衡にある水相 } 1 \text{ [ml] あたり同じ物質の量}}$$

水に浸した膨潤樹脂1 [ml] あたりにとる例もあるが、少ない。この場合、単位がない。

そのほか、実習前の説明としてコールド実習室で、マクロピペットの扱い方の説明と練習、イオン交換樹脂を秤量してプラスチック棒状びんに入れる（5本）準備作業のほか、ゴム手袋の使用経験のない研修生にたいしては着脱の説明と練習、黄色実験衣や靴下など放射線防護具の説明、管理区域出入り管理記録の記入などを行う。電卓、筆記用具、マニュアルなど、必要なものは前もって管理区域内実習室に用意しておく。原子力発電所に比べてレベルの低い放射性物質を扱う管理区域なので、着替えのようなことはないので、驚く研修生がいる。

実験は、まずバッチ法による ^{60}Co の分配比測定である。非密封RIの扱い、あるいは化学実験ははじめて、という研修生もいるので、講師1名を他部に依頼して、監視と手伝いをお願いしていた。実験は、1実験班ごとに、ゴム手袋をつけた実験係と助手係の2名を決めることから始める。まずコールド実習室で準備したイオン交換樹脂入りのポリエチレン棒状びん5本をRI用フード内の試験管立てに立て、ふたを取る。これに、5種の硝酸濃度の ^{60}Co 溶液を5.0 [ml] ずつ入れる、イオン交換樹脂と振り混ぜ前の ^{60}Co をはかるためのi試料（イオン交換実験マニュアル参照）採取までを、1サイクルとして実験者の交代をする。そこで30分間振とうするので、その間にバックグラウンドとi試料を測定する。同じ実験班で3人目以上の、実験していない研修生に、実験中にバックグラウンド測定を始めてもらおうと、ここで時間があく。コミュニケーションの時間である。

30分間の振とうは、ポリエチレン棒状びんを立てた状態で、振り混ぜる。これは、この種の実験に経験のない研修生の技術を考慮し、横倒しの状態での振り混ぜによる内容のもれと放射性汚染を避けたもので、ポリエチレン棒状びんと振とう器の組合せを見いだすため、3種類の振とう器で試験を繰り返した結果である。

振り混ぜ終了後f試料を取るために、別な実験係と助手係に出してもらう。イオン交換樹脂と水相は一目瞭然区別ができるため、有機相と水相の区別がつかない一般の研修生にとって、溶媒抽出よりはずっとやりやすい実習であり、研修生実験として適している。また、有機相と水相との区別は、原子力発電所で働く者にとって、実習で学ぶ必要性があるものではない。

f試料を測定する時は、ほとんどバックグラウンドの試料があるので、測定時間に注意する。また、計数誤差や、引算による誤差の変化に注意を喚起することができる。

結果を両対数のグラフにプロットし、おおよそ-2の勾配をもった直線を得る。例を図3.2.1に示す。

表3.2.1 研修生による ^{60}Co 分配比測定結果（1986～1993年）

| 硝酸濃度 | 0.05M | 0.1M | 0.2M | 0.5M | 1.0M |
|--------|-----------------|----------|--------|-------|--------|
| 分配比平均値 | 15000 ±19000 | 2400±910 | 540±95 | 86±11 | 20±3.0 |
| 最大値 | 84000 | 7500 | 1040 | 110 | 27.4 |
| 最小値 | 3300 | 1600 | 361 | 57 | 15.1 |
| データ数 | 48 | 48 | 48 | 47 | 48 |

分配比測定結果（48班の平均値など）を図3.2.1および表3.2.1に示す。硝酸濃度に差があると当然分配比に差がでるが、電気系、機械系の研修生がほとんどであるため、イオン交換実験マニュアルに記載してある濃度からのズレを嫌って、硝酸濃度を±2%に調整してある。研修生実験班2班のデータ例を同じく図3.2.1に示す。

分配比データには、特に0.05M硝酸における数値に大きなバラツキがある。これは、この硝酸濃度における分配比が比較的大きいため、イオン交換樹脂とのふりませ後上澄み中 ^{68}Co がかなり低濃度となり、ほとんどバックグラウンドに近い計数値になるためである。

研修生実験各班による分配比には0.05M硝酸を除いて、大きな誤差はなく、0.2M硝酸以上では、グラフ上に記入できない程度であった。また、各実験班による分配比の硝酸濃度依存性は、両対数グラフ上すべて-2の勾配を得ており、イオン交換のメカニズム理解に有効であった。さらに、硝酸濃度の低いところで分配比が高いこと、極低濃度のコバルトが炉水中でイオン状態と考えられること、からイオン交換が除染に有効であることが説明できる。また、金属イオンの陰イオン交換に関連して、 FeCl_4^- イオンの存在なども説明する。

第2日には、前日の実験を簡単にふりかえった後、イオン交換実験マニュアル7章の説明と放射平衡に関する計算を行う。計算では、放射平衡に達するまでの時間が短く、充分やりなおしができることを強調する。つづいて、イオナイトC約0.1[g]を秤りとり、薬包紙につつま、管理区域内実習室に入る。前日と同様にして実験係と助手係を決め、 $^{137}\text{Cs}-\text{Ba}$ の0.1M硝酸溶液1[ml]を使い、 $^{137\text{m}}\text{Ba}$ をバッチ法で分離する。

古い溶媒抽出実験でもイオナイトCによる $^{137\text{m}}\text{Ba}$ を行ったが、前任者の方法を引き継いだところ、分離はカラム法、計測はレートメーターで、得られたデータは短半減期の核種があると確認できた、というレベルのものが多かった。すなわち、 $^{137\text{m}}\text{Ba}$ の流出ピークを眼で捉えることができない、溶離までに多少時間がかかる、という問題点のため、充分な放射能のある測定試料を得るには多めの ^{137}Cs を使う、測定試料を多めに取る、などの手段が必要であった。また、時定数を大きくしても、レートメーターのグラフからは、数値としての半減期を得るのは難しかった。そこで、バッチ法に切り換えたものである。 $^{137\text{m}}\text{Ba}$ は必ず上澄みに多い。イオン交換実験マニュアルの方法では、ほとんど失敗はなかった。カラム法よりも短時間で作業がおわり、確実に試料が得られる。また、数値として、かなり良いデータを取ることが出来る。測定データを片対数グラフにプロットし、解析する。2本のdecay curveの合成曲線が測定されるので、これを分ける。長半減期成分の ^{137}Cs は横軸に平行な直線になるから、これを差引いて $^{137\text{m}}\text{Ba}$ の壊変をあらわす直線を得る。前述の溶媒抽出実習の場合と同様にして λ から半減期を求める。測定結果の例を図3.2.2に、平均値を表3.2.2に示す。

$^{137\text{m}}\text{Ba}$ の分離と半減期測定実験では、46実験班の測定値（1986～1993年）についてつぎのような結果が得られた。すなわち、平均値は 2.52 ± 0.091 [min]、最大値2.67 [min]、最小値2.08 [min]であった。測定結果の分布は、表3.2.3のようである。分配比の測定結果に比べて、かなり良好な結果を得ている。ただし、実験班3班が、単に計数値が半分になる時間を読み取るなどして、約2.5分という結果を出した。分離から計測開始までに少々時間がかかりすぎ、よりよいデータを求めてミルクングまたはやりなおしを行った実験班は、52班中3班にすぎない。バッチ法による2.55分の $^{137\text{m}}\text{Ba}$ 分離実験は、

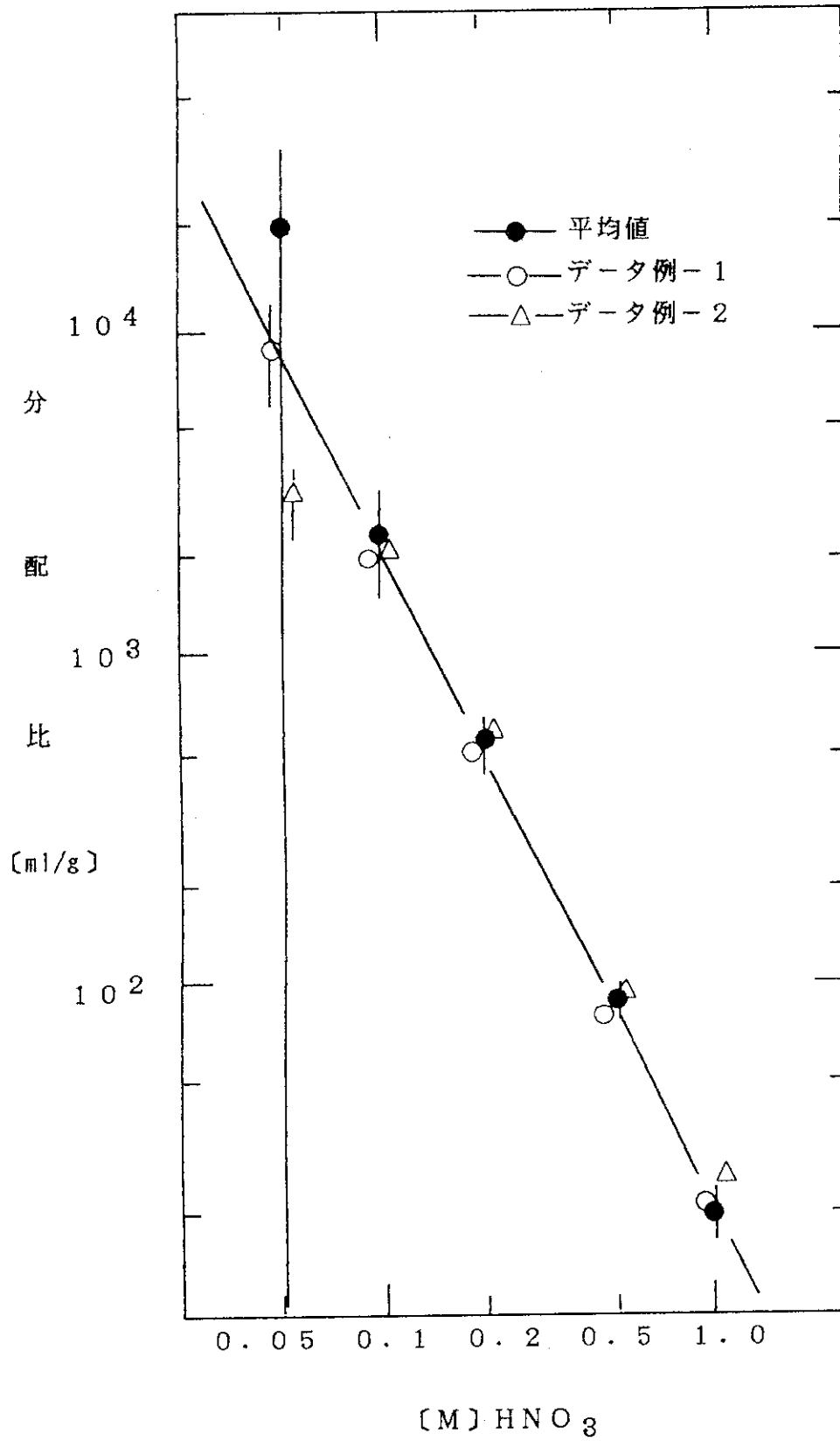


図3.2.1 分配比測定結果の例

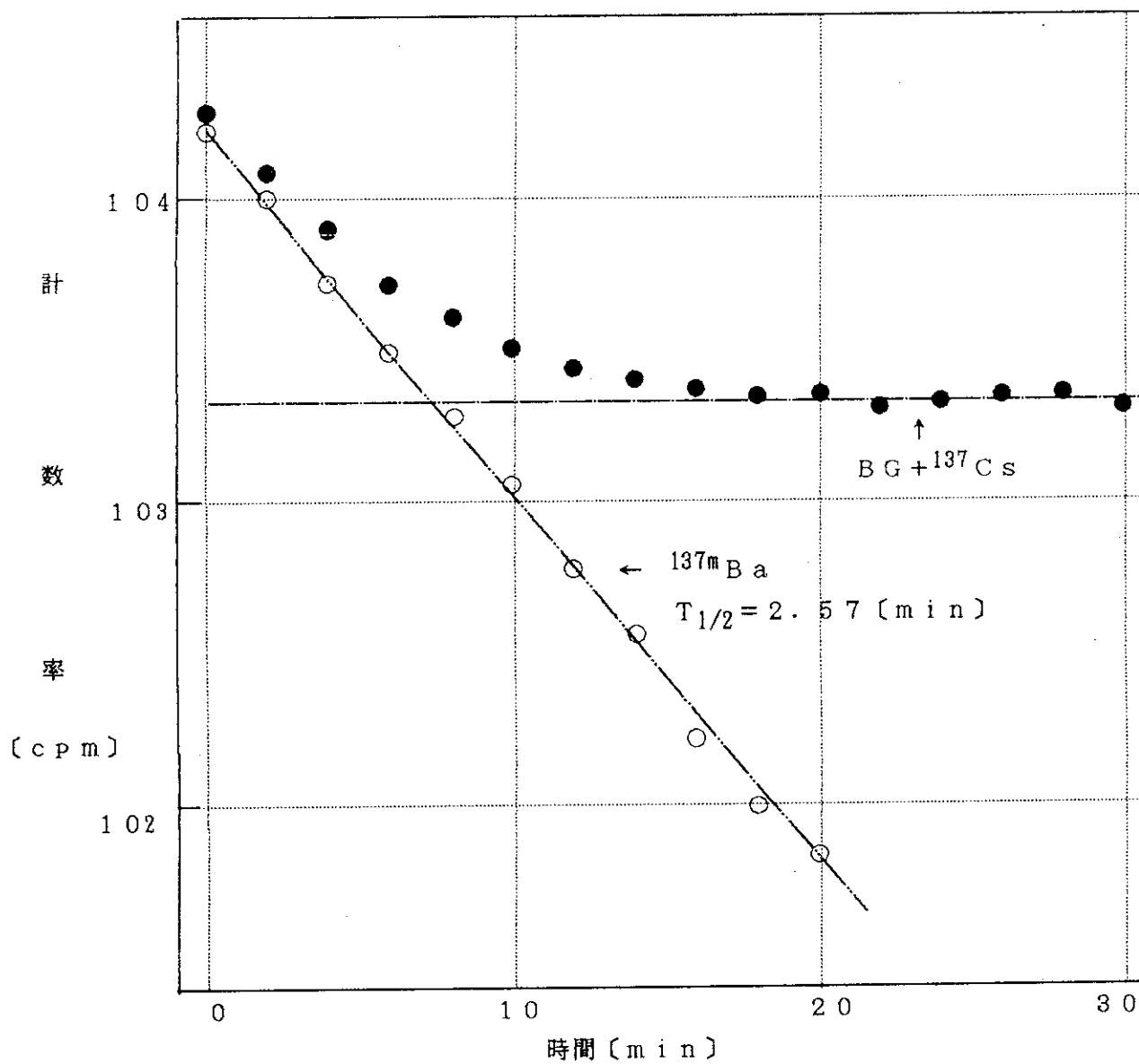


図3.2.2 研修生による^{137m}Ba半減期測定データの例

初めての研修生にもとくに問題のない実験といえる。

表3.2.2 研修生による ^{137}mBa 半減期
測定結果平均値

| 年 | 平均値 [min] |
|------|-------------|
| 1986 | 2.54±0.080 |
| 1987 | 2.53±0.030 |
| 1988 | 2.50±0.065 |
| 1989 | 2.56±0.039 |
| 1990 | 2.58±0.055 |
| 1991 | 2.5±0.18 |
| 1992 | 2.54±0.044 |
| 1993 | 2.52±0.072 |
| 總平均 | 2.52±0.091 |
| 最大値 | 2.67 (n=46) |
| 最小値 | 2.08 |
| 文献値 | 2.5513 |

表3.2.3 研修生による ^{137}mBa 半減期
測定結果の分布

| 測定値範囲 | 実験班数 |
|-----------------|------|
| 2.01 ~ 2.10 [分] | 1 |
| 2.11 ~ 2.20 [分] | 0 |
| 2.21 ~ 2.30 [分] | 0 |
| 2.31 ~ 2.40 [分] | 2 |
| 2.41 ~ 2.50 [分] | 14 |
| 2.51 ~ 2.60 [分] | 25 |
| 2.61 ~ 2.70 [分] | 4 |
| 合計 | 46 |

1986 ~ 1993年の実習結果
による。

研修生レポートに見られた実験の目的は、表3.2.4のようである。イオン交換の理解のため、という極めて当然な、また著者の目的に合致した実験目的がもつとも多い。つづいて、実験内容をそのまま記した“分配比測定とイオン交換分離”が多かった。

表3.2.4 研修生実験レポートに見られる実習の目的
(1986~1993年)

| 実習目的 | 実験班の数 | その他に放射平衡の理解、 非密封RIの扱いを学ぶ、 が重複して、各1件、 目的として挙げられた。 |
|-------------|----------|---|
| イオン交換の理解 | 27 (52%) | |
| 分配比測定とミルキング | 15 (29%) | |
| なし | 10 (19%) | |

3.3 海水中の ^{137}Cs の測定実習

3.3.1 実習の目的

原子炉研修部門における原子炉技術者むけの化学実験の場合、電気系や機械系学科の卒業生が多いため、化学嫌いや帰納的なやり方に対する偏見を考え直してもらうことも目的のひとつであった。そこで親しみの持てる化学実験として、いわゆるRIを使わず、環境試料中の放射性核

種を化学分離して測定する道考えたのが本実験である。すなわち1979～1989年、海水中の ^{137}Cs の分離と測定を、一般課程の選択実験として実施した。この時、 ^{137}Cs を分離して1個の測定試料を作成する部分を化学実験として実施し、測定の部分は、低レベル放射能の測定実験として原子炉研修部門の東条隆夫氏により行われた。ここでは、化学実験を中心に、計測については結果のみを述べる。計測も含めた実習期間は1週間である。

3.3.2 化学分離実験の状況

まず、海水試料を入手しなければならない。研修生実験では、日本原子力発電からの温排水で養魚を行っている温水養魚開発協会の養魚場（原研構内にある）から、20～30〔1〕の海水を採取させていただいたが、養魚場の見学というおまけがついた。予備実験では、日立のおおみか燈台下の海岸、あるいは磯浜の海岸で採取したこともある。なお、この場合河口から遠い場所ので採取するよう配慮した。

採取した海水から ^{137}Cs の化学分離は、放射線管理区域ではなく、コールドの化学実験室で行った。

温排水試料では、細かい泥状の懸濁物、海岸の海水では小さなエビや砂などが入っているので、5種A濾紙で、これを濾過して除く。なお、正式の環境試料海水の場合、海岸近く、あるいは河口近くでは海水試料を採取しないきまりになっている。濾過は、No. 1ガラスフィルターに5種A濾紙を敷いて行う。温排水の場合細かい懸濁物があり、濾紙がよく目詰まりした。たびたび濾紙を交換して、海水試料が濾紙を通過するような状態で濾過を行った。濾過済みの海水は、一部をpHおよび温度測定用の試料として取分け、大部分をセシウムの分離に供する。セシウム分離用の海水は、濾過したのから順に、2.5〔1〕づつ、3〔1〕ガラスビーカーに入れる。これを化学実験用フード（コールド）内に持込み、濃塩酸250〔ml〕を少しづつ、かくはんしながら加える。つづいて、りんモリブデン酸アンモニウム 2.5〔g〕を、やはりかきまぜながら加える。すなわち、海水試料 1〔1〕あたり、濃塩酸 100〔ml〕と りんモリブデン酸アンモニウム 1〔g〕を加えることになる。これをマグネチックスターラ上に置き、スターラを入れ、時計皿でおおったのち、タイマーを30分に設定して攪はんする。これを、8試料繰り返すと、20〔1〕の海水試料を処理したことになる。

30分かくはんを行った試料は、スターラを取り出してから時計皿でおおって、一夜放置する。

翌朝、上澄みをデカントしたのち、セパレート型フィルターに、No. 1ガラスフィルターをセットし、ガラスせんい濾紙をのせ、水流ポンプを使つてりんモリブデン酸アンモニウムの黄色沈澱を吸引濾過する。この時、処理した20〔1〕の試料すべてをひとつのフィルター上に集める。測定試料とするので、沈澱の厚さが均一になるように、注意する。沈澱全部を濾過し終わったら、セパレート型フィルター上部を取り外し、フィルター上部に付着した沈澱を少量の0.1 M硝酸で洗い落とし、さらに濾紙の周辺部の沈澱がやや少な目になるように配慮して、沈澱を洗浄する。

この濾過と洗浄のところは、この種の化学実験に慣れない者には、困難な作業のようである。はじめに、濾紙を少し濡らして、ガラスフィルター上に張り付けるところや、水流ポンプにつないだ三方コックを操作しながら、できるだけ少量の洗液で洗浄する操作などである。洗浄では、三方コックを半開にして減圧を弱め、沈澱全体を湿らせる程度に0.1 M硝酸をまわりからすこ

しづつかけたのち、コックを閉じる。0.1M硝酸は、500 [ml] のポリエチレン洗浄びんに入れておくとよい。濾紙周辺部の沈澱を少な目にするときには 0.1M硝酸を勢いよくかけるが、濾紙をはがす時に沈澱をすべて回収できればよい。

洗浄後しばらく吸引する。湿った状態の試料を、歯科用ピンセットを使って、直径60 [mm] のプラスチック容器に濾紙ごと移して、測定試料とする。

同量のりんモリブデン酸アンモニウムを、0.1M硝酸を使って、ブランク試料につくる。

取り分けておいた濾過済みの海水を、秤量した100 [ml] メスフラスコに、標線まで入れて、秤量する。別に、海水温度を水銀温度計で、海水のpHをpHメータではかる。海水密度を計算する。

3.3.3 放射線計測の状況

原子炉研修部門の東条隆夫氏の指導により、Geまたは、Ge(Li)検出器に対して、NaI検出器を使ったコンプトンスペクトル抑制方式で、“理論放射線計測の実験”として、別途計測が行われた。低レベルの環境放射能測定に適した測定法である。詳細は省略する。

いずれも、ブランク試料と海水試料とを測定した。測定条件を表3.3.1に示す。計測は、できるだけ週末を利用した。ブランク試料の計測時間は、海水試料と同じであるか、または海水試料より長い時間であった。 ^{137}Cs の661 [keV]の全エネルギー吸収ピークの面積から、 ^{137}Cs の量を求めた。

3.3.4 研修生実習の実験結果と考察

予備実験のデータも含めて、海水中 ^{137}Cs の測定結果を表3.3.1(a)(b)に、保健物理部によるデータ(c)⁷⁻¹²⁾とともに示す。1974年6月から8月の間に環境モニタリングのために、同一海域から採取された表面海水14試料についての測定結果¹³⁾は、0.19~0.35 [pCi/l] (平均値0.25)であった。研修生実験で得られたデータでは、試料の数がただ1個である点に問題があるほか、分析試料の採取場所が異なる点で、比較の対象として問題があるが、よく一致した結果が得られたといえよう。

前述のように、厳密な比較はできないが、表の結果から、海水中 ^{137}Cs の濃度について年とともに減少傾向がみられる。1978年には、10 [l]でも、得られた試料中 ^{137}Cs の測定が可能であったが、1989年には、20 [l]の海水から得られた ^{137}Cs の放射能が低く、ほとんど検出限界まで減少しており、本実習は、やむなく研修生実験としての実施を中止した。20 [l]以上の海水試料の処理や、80,000 [sec]を越す計測時間に見合うような、意味のある“数値”が期待できないからである。“検出限界以下”というデータは、環境放射能測定データとして意味があるのは当然であるが、“研修生実験”としては採用できないと判断したためである。γ線スペクトルの例を図3.3.2⁴⁾および3.3.3に示す。1989年には、検出限界に近かったことが分かる。

化学分離操作の際、この液量では、比較的試料をこぼしやすかった。100 [ml]程度までは、誤差として扱った。沈澱を吸引濾過して測定試料にするところは、前述のように、化学実験操作に慣れない者にとって、楽ではなかったようである。結局、著者が、手伝ったり、やってしまったという例が多かった。できあがった試料は、プラスチックケースの中で、除々に乾燥す

る。沈澱が乾燥した粉体は飛散しやすく回収が難しいほか、呼吸によって人体に吸入されやすいため、放射性物質の中では取扱において最も危険なものであり、学生実験として適切とはいえない。しかし本実習では、天然の海水を使用することによって、この点を解決した。すなわち、化学以外の専門分野からきた研修生を対象とする実習として、天然の海水を使う点に大きな意味があったといえる。話に聞くだけでなく、実際に自分達が分離した試料から ^{137}Cs が検出されるのは、研修生にとって興味深い経験と見受けられた。なお、標準海水のpHは、15℃で、8.3、密度は $1.02600 [\text{g}/\text{cm}^3]$ である。比較的多量の海水を扱う実習であったが、実習時期が暑い季節であったことが幸いした。著者および東条氏以外の実験者は、すべて原子炉研修部門で実施した一般課程の研修生である。なお1980年までの実習状況については、前に報告した⁴⁾。

表3.3.1 海水中 ^{137}Cs 濃度測定状況と結果

(a) 海水試料

| No | 年、月 | 試料量:採取地 | pH | 密度* と 温度(°C) | 実験者 |
|----|-----------|--------------|-----|-----------------|------------------------------|
| 1 | Nov. 1978 | 12.5 [1] 大みか | | | 吾勝永子、東條隆夫 |
| 2 | Jan. 1979 | 10.0 [1] 磯浜 | | | 吾勝永子、東條隆夫 |
| 3 | Jan. 1979 | 9.3 [1] 磯浜 | | | 吾勝永子、東條隆夫 |
| 4 | July 1979 | 35.0 [1] 養魚場 | 8.2 | 1.020(26) | 高田保、柴田芳昭、小浦茂、石原準一 今野猛、米田實 |
| 5 | Sep. 1980 | 20.0 [1] 養魚場 | | | 中嶋邦広、酒井伸一、阿草享、楠清明 光延秀夫 |
| 6 | Sep. 1988 | 20.0 [1] 養魚場 | | | 村山晃、豊住健司 |
| 7 | Sep. 1989 | 20.0 [1] 養魚場 | 8.1 | 1.021(23) | 三浦茂紀、枅明彦、小出正、大原政典 河津滋郎 |

* $[\text{g}/\text{cm}^3]$

(b) 測定

| No | 年、月 | 検出器 | 検出効率 $\times 10^{-3}$ | 計測時間 [ks] | ^{137}Cs 濃度 [pCi/l] | 同左 [Bq/l] $\times 10^{-3}$ |
|----|-----------|--------|--------------------------|--------------|---------------------------------|-------------------------------|
| 1 | Nov. 1978 | Ge(Li) | 5.1 | 100 | 0.64 ± 0.090 | 24 |
| 2 | Jan. 1979 | 同上 | 5.1 | 200 | 0.50 ± 0.075 | 18.5 |
| 3 | Jan. 1979 | 同上 | 5.1 | 200 | 0.50 ± 0.070 | 18.5 |
| 4 | July 1979 | Ge | 14 | 200 | 0.41 ± 0.029 | 15 |
| 5 | Sep. 1980 | 同上 | 32 | 40 | 0.38 ± 0.040 | 14 |
| 6 | Sep. 1988 | 同上 | 14 | 150 | 0.10 ± 0.013 | 3.7 |
| 7 | Sep. 1989 | 同上 | 14 | 80 | 0.088 ± 0.035 | 3.2 |

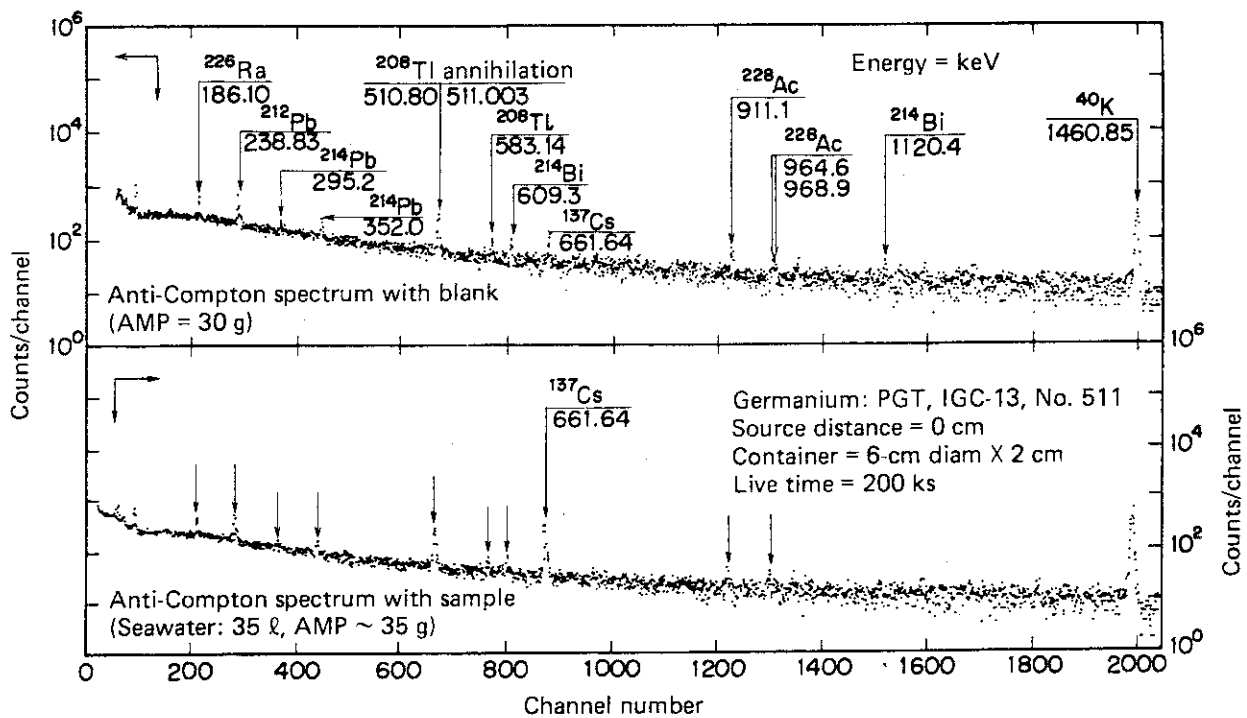


図3.3.1(a) 海水処理試料（上）及びブランク試料（下）のコンプトンサプレッションスペクトル（1978年）

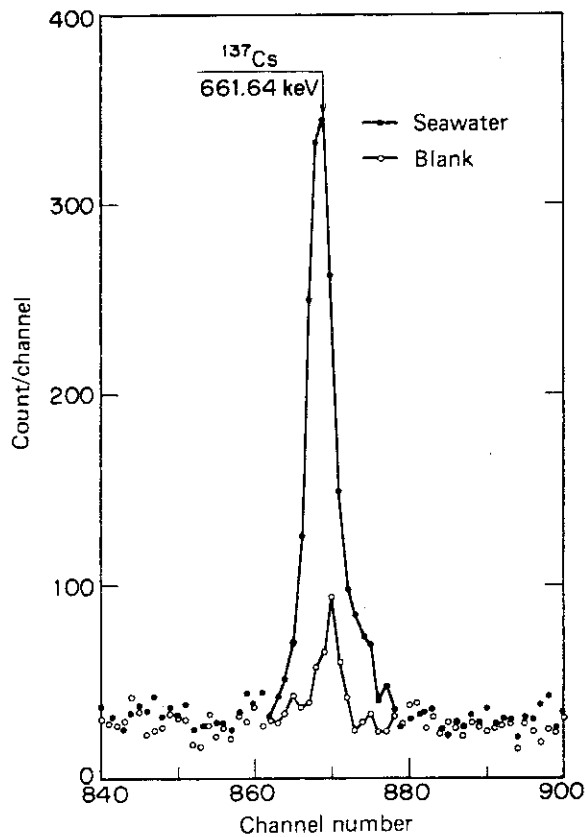


図3.3.1(b) スペクトル（a）の¹³⁷Cs661keV付近（1978年）

Filename B:\DATA-C.CHN Date 89/09/06 08:00:00 Time 80000.000 Real time 80000.000 Live time
DATA FOR Cs-137 (COMPTON SUPPRESSION)

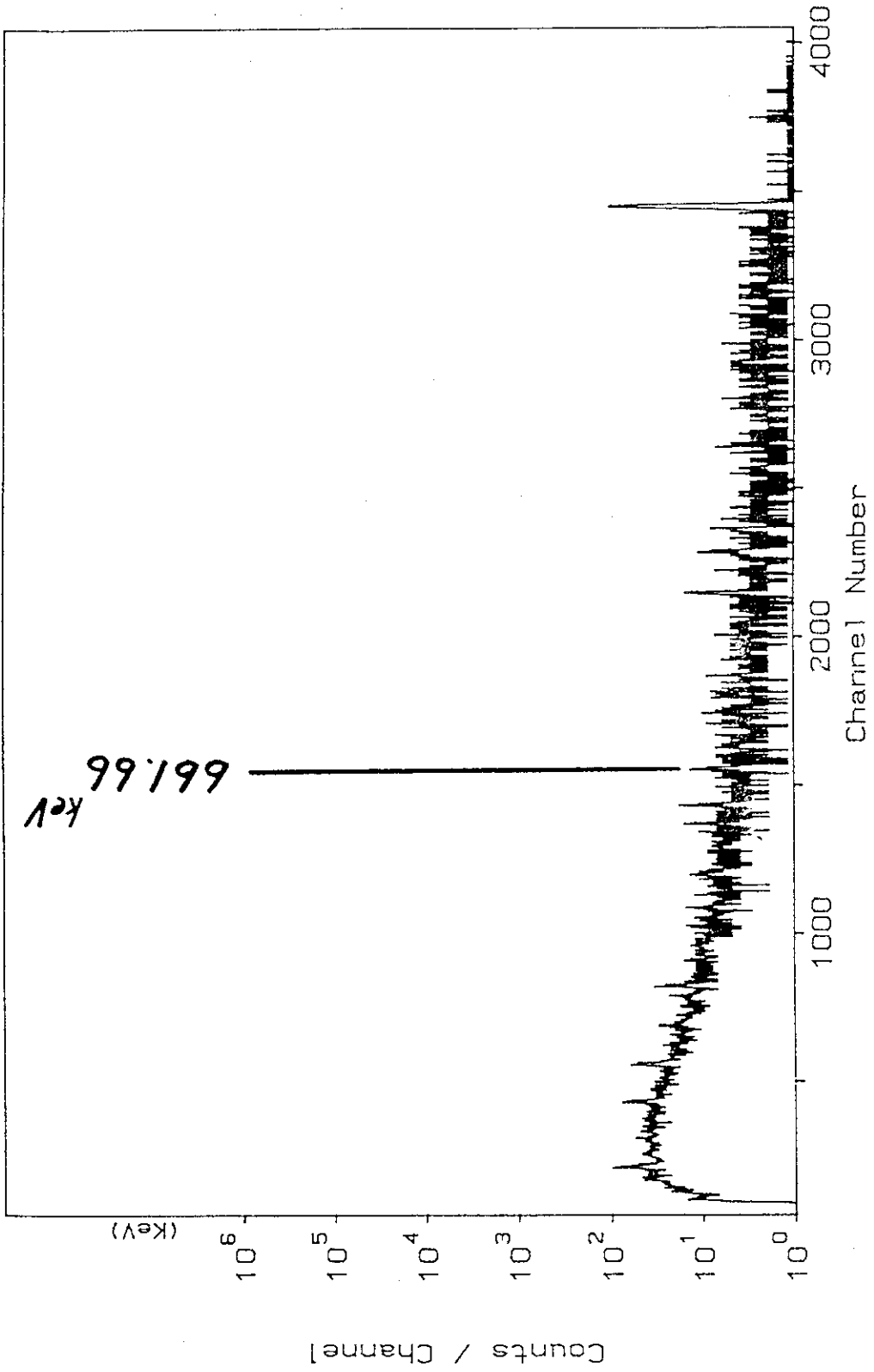


図3.3.2(a) 海水処理試料のコンプトンサプレッションスペクトル (1986年)

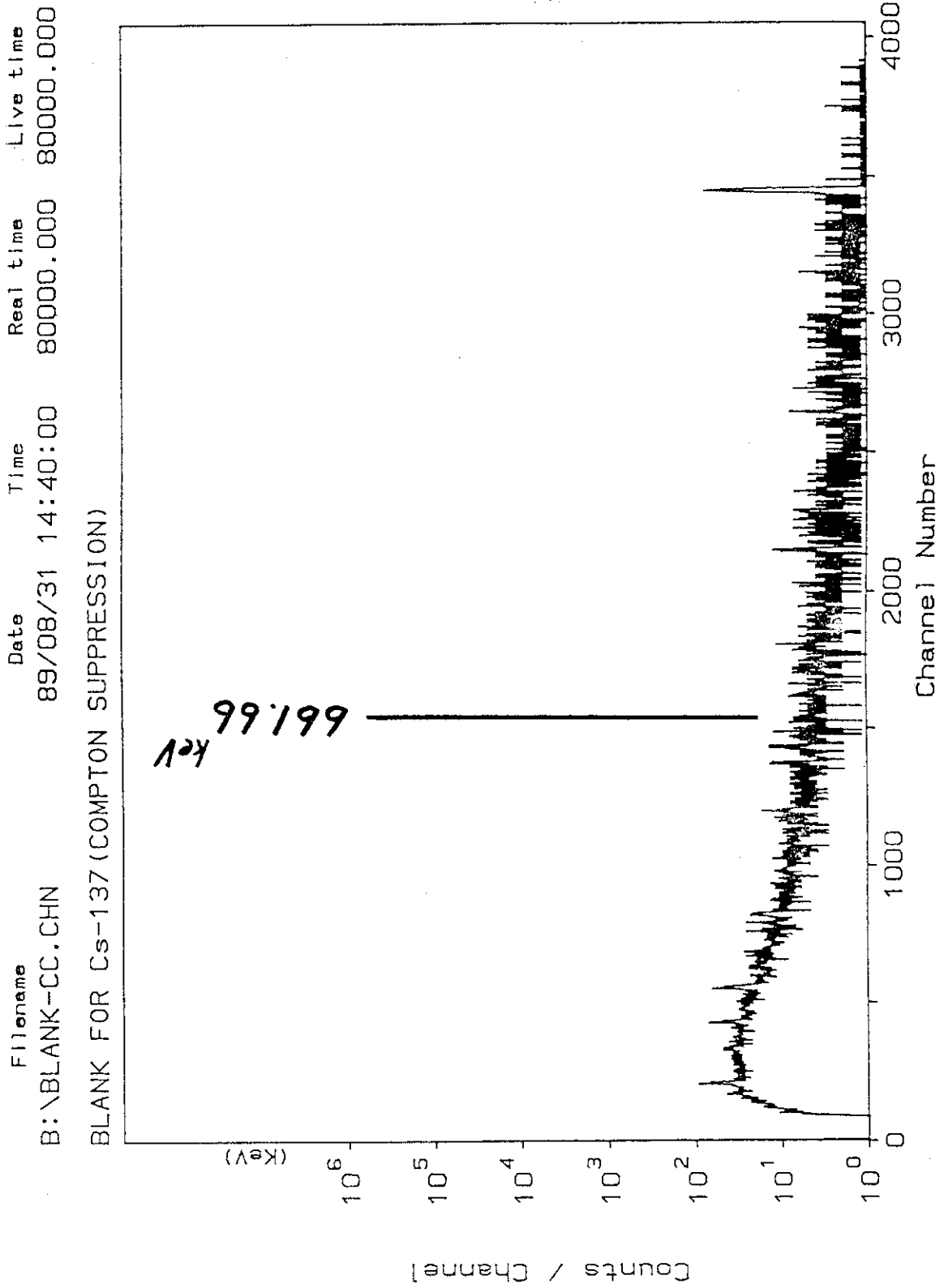


図3.3.2(b) ブランク試料のコンプトン抑制スペクトル (1989年)

(c) 文献値：東海研沖500m⁷⁻¹²⁾

| 年、月 | ¹³⁷ Cs濃度 [pCi/l] | 同左 [Bq/l] ×10 ⁻³ |
|-----------|--------------------------------|--------------------------------|
| July 1980 | 0.17 | (6.3) |
| Apr. 1981 | 0.14 | (5.2) |
| Oct. 1987 | 0.12 | (4.4) |
| Oct. 1988 | 0.097 | (3.6) |
| Oct. 1989 | (0.081) | 3.0 |
| Oct. 1990 | (0.097) | 3.6 |

()内数値は報告値よりの計算値

3.4 ⁸⁷Rbの半減期の測定実習

3.4.1 シンチレーションカクテルを用いた⁸⁷Rb半減期の測定と 研修生実験

保健物理専門課程で液体シンチレーション測定 of 講義と実習が始まったとき、ラジオアイソトープ研修部門(当時)の石河寛昭氏の御協力により同部門で数年間使用した液体シンチレーションスペクトロメーターを整備の上ゆずりうけてそれを使用した。そのスペクトロメーターを活用して、著者が⁸⁷Rbの半減期測定¹⁾を行い、その結果を原子炉工学専門課程および一般課程の選択実験に応用したものである。保健物理専門課程の実習は、当初、主担当石河氏、副担当著者、後に、石河氏のご指導のもとに主担当著者、副担当佐藤孝雄氏(原子炉研修部門)により行われた。その後液体シンチレーションスペクトロメーターの更新を実現できなかったため保健物理専門課程の実習とともに本実習も中止することになった。

⁸⁷Rbの半減期を液体シンチレーション法で測定したデータにはいくつか報告があるが、ルビジウムのカルボン酸塩をシンチレータに溶かして測定するなどの方法がとられ、いわゆるシンチレーションカクテルを用いて測定したのは、1981年の著者によるものが最初であった¹⁾。著者は、おもに原子炉工学専門課程における選択実験の中のひとつ、液体シンチレーション測定にこれを取り入れ、3年間実施した。測定法は、効率トレーサー法である。液体シンチレーション測定法の実習として、基本的な部分を一通り行ってから、その中の効率トレーサー法を⁸⁷Rbの半減期測定に適用する、というものであった。実習期間は、2日間(全日)であった。

3.4.2 研修生実習の状況と実験結果および考察

研修生の測定結果を著者のデータとともに表3.4.1に示す。

測定器が老朽化しており、なおかつ研修生実験であるために、前出のレポート¹⁾の場合(バックグラウンド20分、ルビジウム試料10分、¹⁴C標準試料2分)よりは測定時間を短くしてあるにもかかわらず、たいへんよい一致を示した。効率トレーサー法におけるグラフの例を、図3.4.1および3.4.2に示す。

研修生の実験レポートでは、核データとして認知されている数値(4.7×10^{10} y)より長い半減期がえられたことを問題にしたもの、化学系研修生で、乳化した測定試料に危惧の念を

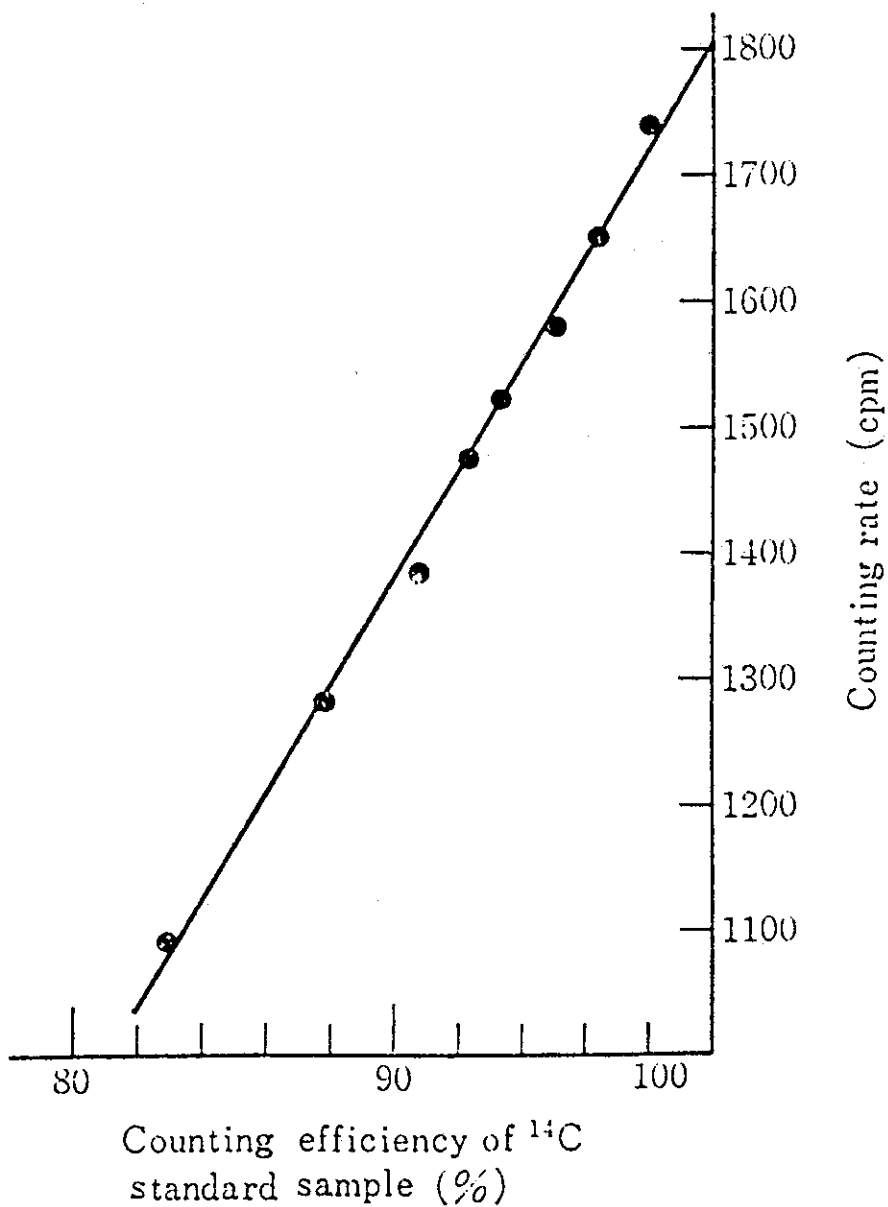


図3.4.1 ^{87}Rb 試料と ^{14}C 標準試料による効率トレーサー法のグラフ例 (著者)

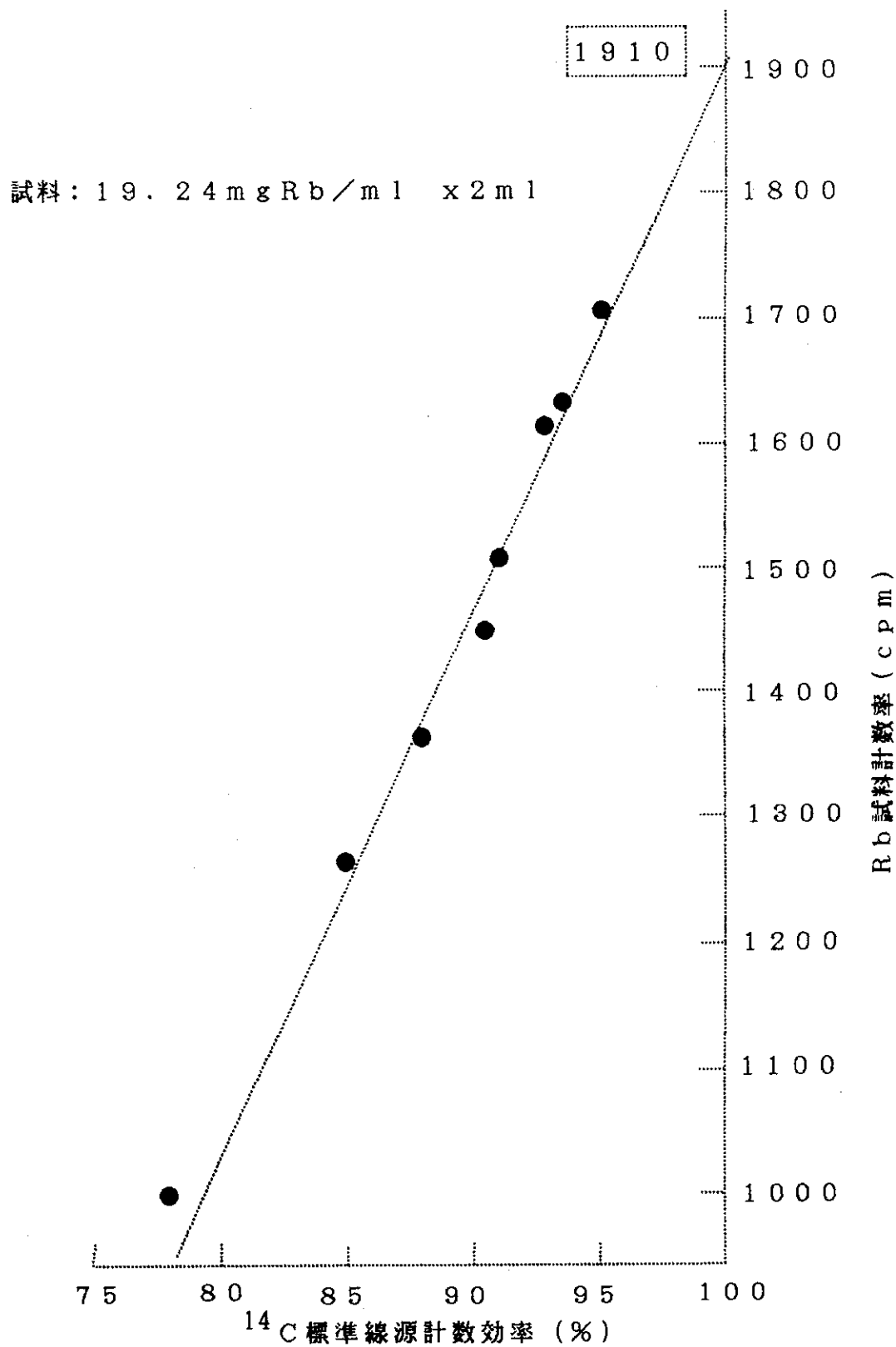


図3.4.2 研修生実験による ^{87}Rb 試料に対する効率トレーサー法のグラフ例 (1983年)

抱いたものがあつた。後者は、実験的に問題がないことが証明されている。前者は、一般に新しい測定では、長い半減期の場合さらに長くなる傾向があること、および古い文献の測定法について説明した。既報の液体シンチレーション法ではルビジウム塩を有機溶媒に溶かすため octoate とし、それを有機シンチレータに溶かして測定した後、計測試料を硫酸-過塩素酸で分解し、最終的にルビジウムを硫酸塩として秤量している¹⁴⁾。一方、著者は、シンチレーションカクテルを用い、カクテルと混合した塩化ルビジウム溶液について、テトラフェニルほう酸塩として、ルビジウムの定量を行った¹⁾。

論理ではなく、実験的に証明されている効率トレーサー法は、電気系の研修生にとって有意義な経験と考えられる。また液体シンチレーション法は原子力発電所でも利用されている。単にトリチウムの検出だけでなく、 β 線放出核種の測定など、適用範囲の広さを理解しておくことや、長半減期核種の測定を通して壊変定数と原子個数と半減期の基本的な関係式を確認してみる経験も、実務上意味のあることであろう。短寿命核種では、このような実験は難しい。

表3.4.1 ^{87}Rb 半減測定データ

| 年 | コース | ^{87}Rb 半減期測定値 [y] | 測定者 |
|------|------|-----------------------------------|----------------------------------|
| 1981 | 炉工*1 | 5.391×10^{10} | 重松交響、小島辰美 |
| 1981 | 炉工 | 5.32×10^{10} | 末永紳一、渡辺一美、長井潔、日高昭秀 |
| 1982 | 炉工 | 5.53×10^{10} | 本房克紀、鈴木研一 |
| 1982 | 炉工 | 5.417×10^{10} | 野村保、吉田、清野公広、荒邦章 |
| 1983 | 一般*2 | 5.270×10^{10} | 渡辺雄二、緑川勇二、藤巻克己、 首藤康夫、渡部宏道、本村力 |
| 1983 | 炉工 | 5.21×10^{10} | 新井信芳、大沢隆夫、白石宏志 |
| 1983 | 炉工 | 5.26×10^{10} | 三並賢造、田畑修三 |
| 1981 | -- | $(5.56 \pm 0.025) \times 10^{10}$ | 著者 ¹⁾ |

*1 原子炉工学専門課程

*2 一般課程

3.5 燃焼率測定実験の改良

3.5.1 燃焼率測定実習のための試料について

燃焼率測定研修生実験では、測定試料調製に問題があると考えて改良した方法を19年間、一般課程および原子炉工学専門課程で約30回使用した。ここでいう1回の研修生実験とは、つぎのようなものである。研修生の実験班は、各年度毎に8班または6班あり、一日1班ずつ実習して“1回の研修生実験”となる。すなわち教官は同一実験を、2週間内に8回または6回繰り返さなければならない。したがって、照射後の測定試料作成、運搬、予備実験と実習に約1カ月かかるほか、照射試料の作成、原子炉での照射依頼と照射に関する作業を、実習の数カ月前から

始める必要がある。

以前の測定試料は、酸化ウランを原子炉照射したものを酸にとかし、500 [ml] メスガラスコとピペットを使って、2～3回希釈したのち、1 [ml] をステンレス試料皿内に乾固したものの2個程度であった。したがってほとんどの照射ウランを、液体廃棄物として廃棄することになるほか、ステンレス試料皿の扱いに注意しなければ放射性汚染の危険もあったと考えられる。また、測定試料の作成にあたって、かなりの放射能レベルの照射試料を扱うにもかかわらず、実際に使う測定試料は照射試料のごく一部にすぎないというのも、無用の放射線被曝と考えられた。さらに、照射試料の作成では、粉末の酸化ウランを秤量して、細い石英アンプルに密封しなければならない。これが、アンプルの閉封の際にはかなりの放射性粉末となることが予想された。粉末状の放射性物質は、放射性汚染の発生源として最も危険なものである。そこで、酸化ウラン粉末にかえて、ウラン-アルミニウム合金を照射試料にすることを考え検討の結果、採用した。

3. 5. 2 研修生実験の状況と実験結果および考察

著者は、当初、測定試料の作成のみを担当していた。実習は、東条隆夫氏ほか1名であった。著者は、ある時やむを得ない事情により東条氏の代役をつとめたが、その後、実習を東条氏と分担、協力して実施するようになった。最後の10年間は、東条氏が測定器の整備担当、試料作成と実験当日の指導が著者、という分担であった。また、計測器の進歩が著しく、全エネルギー吸収ピークの計数値等が、勞せずして得られる状況へと変化した。このため、実習内容が変化し、計測データの処理に要する時間が減り、放射平衡の計算等が加わる形になった。すなわち、著者が実習に関わった当座は、Ge(Li) 検出器であったものが、Ge 検出器に換わり、 γ 線スペクトルを手でプロットしていたものが、プロッターやプリンターで打ち出すようになり、全エネルギー吸収ピークの面積を“貴重品”の電卓を使って計算していたものが、スペクトルデータとともにプリントアウトされるようになった。このため、通常は1個であった測定試料を2個にし、放射平衡の計算を追加した。すなわち、研修生は必ず ^{140}La の1597 keVの全エネルギー吸収ピークをとりあげ、 ^{140}Ba との放射平衡を加味した計算を行う。さらに放射平衡における娘核種の数の式で、第1項と第2項とを分けて計算し、それぞれ片対数グラフ用紙に描き、実習当日における約40日の冷却時間において、 ^{140}Ba と ^{140}La との間に放射平衡が成り立っていること、および直接生成した ^{140}La は壊変したが ^{140}Ba の娘核種としての ^{140}La が存在していることを確認する。

計測時間も、15年前には、昼食時間を入れて8000秒という例もあったが、1000秒でも待ちかねるようになった。測定条件は、試料の長さが3ミリ以下であるので、点状線源とみなし、DEAD TIME 4%以下になるように、検出器からの距離等をきめた。検出器と線源との距離は、スパーサーによって線源を定位置にセットすることで決まった。測定関連の機器の整備、検出効率測定など測定に関わることは、東条氏によって行われるか、東条氏の指導のもとに行った。実習は、実験班1班あたり、1日(9:10 am～5:30 pm)である。通常は、午前中説明と測定、午後計算と討論を行った。 γ 線スペクトル解析には、放射化分析などで使用される資料^{15,16)}を用いた。

また本実習は、核燃料物質の取扱となるため①アイテム数変更、②原子炉施設へのKMP間移動、③未照射から照射済みへの変更（研究炉利用課）、④原子炉施設から研究3棟（第1種管理区域）へのKMP間移動、⑤第3研究棟から原子炉特研建屋（第2種管理区域）へのKMP間移動、⑥原子炉特研建屋から第3研究棟へのKMP間移動、⑦アイテム数の変更、以上7回の手続きが必要であった。なお、JRR-2で照射が行われた場合とJRR-4で行われた場合とでは、手続きに違いがある。また、第3研究棟（第1種放射線管理区域）は非密封RIを扱う作業場所、すなわち照射試料の開封場所であるとともにウラン-アルミニウム合金の保管場所でもある。一方原子炉特研には計測設備があり、ここで密封線源としての試料を用いて研修生実験を行った。両実験室とも核燃料物質の使用許可を得ている。照射施設、照射試料の開封を行った施設、計測を行った施設が、異なるKMPであったため、運搬上の手続きも必要であった。

1988年から1994年の間で、研修生実験に使用した測定試料の状況、測定条件、および燃焼率のデータを表3.5.1に示す。A試料とB試料は、照射後の冷却時間がそれぞれ約40日、および約1年である。A、B試料の γ 線スペクトルの例を図3.5.1および3.5.2に示す。

研修生が同定した γ 線スペクトルの全エネルギー吸収ピーク、その中から選んで燃焼率計算に用いたピーク、およびその数などを表3.5.2と3.5.3に示す。全エネルギー吸収ピークの同定は、 γ 線スペクトロメトリであつて、別途単純な線源を用いた実習があり、燃焼率測定実験はその応用となる。さらに、本実験で2種のスペクトルをていねいに調べる中で核分裂生成物に対する理解も得られると思われる。しかし、すべての全エネルギー吸収ピークを調べた実験班は多くないことが表から読み取れる。かなりの実験班が、最低2本と指示した結果、2本のピークの同定にとどまっている。1988年のA試料と1989年のB試料、1989年のA試料と1990年のB試料、・・・が同じ照射条件であることから、それぞれの組合せにおいて、等しい燃焼率を与えるはずである。表3.5.1の研修生によって得られた燃焼率データでは、おおよその一致が得られたといえよう。計算結果のみを記載したレポートが多い、すなわち計算プロセスの詳細が分からない例が多いことから、計算ミスの可能性も否定できない。計算ミスに気付いて修正した例としては、 ^{140}Ba の半減期が間違っていた例や、 $[\text{MeV/g}]$ から

$[\text{MWD/T}]$ に換算するときの係数を間違えた例があつた。実験マニュアルにある計算式を使って計算するときには、計算ミスに気づきやすいので、式の意味を考えながら、順を追って計算するように指導したが、プログラム電卓を使用して多数の燃焼率データを算出した実験班もいくつかあつた。

レポートの最後に、考察や感想をのべた例も多かつた。最低2種の全エネルギー吸収ピークを使った計算を課したが、この2個の数値が多少かけはなれている結果を問題にした実験班が17班と最も多かつた。ほかに公称の中性子束から算出した燃焼率との差を論じたもの2班、burnup monitorの選定法を問題にした実験班4班があつた。燃焼率の測定は原理的に以外と簡単なのでびっくりした、という感想もあつた。一方24班が感想や考察をまったく書いていないが、得られた結果が相互によく一致した例が多い。ほかに、“測定試料の重量と燃焼率とが比例するはずなのに、そうではなかつた” (?) という実験班、計算に用いた全エネルギー吸収ピークの γ 線エネルギーや照射条件を記していない班があつた。研究論文を書いた経験のある者か、まれに、ととのつたレポートがみられた一方、実験マニュアルをそのまま取り入れたレポートもあつ

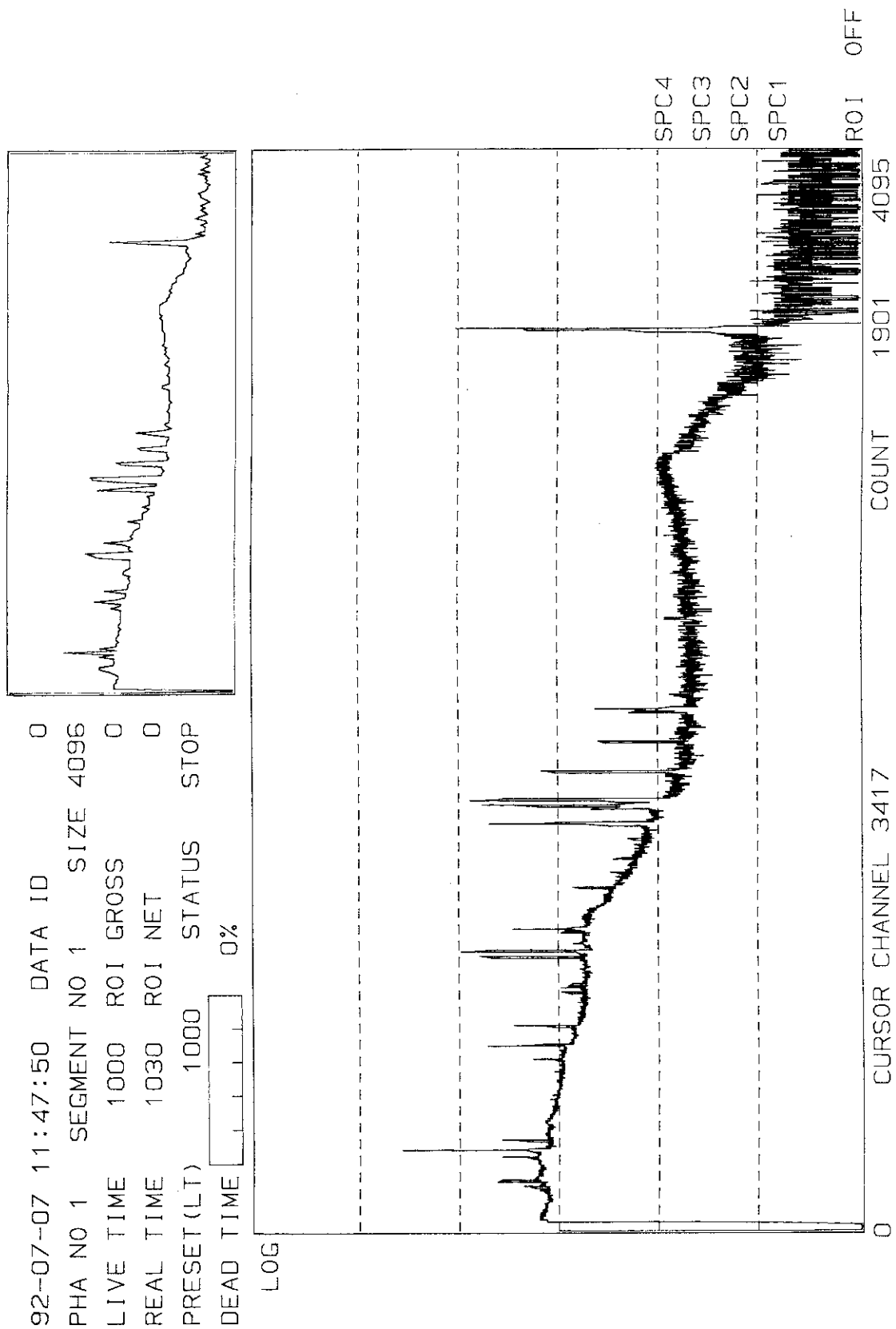


図3.5.1 A試料のγ線スペクトル例

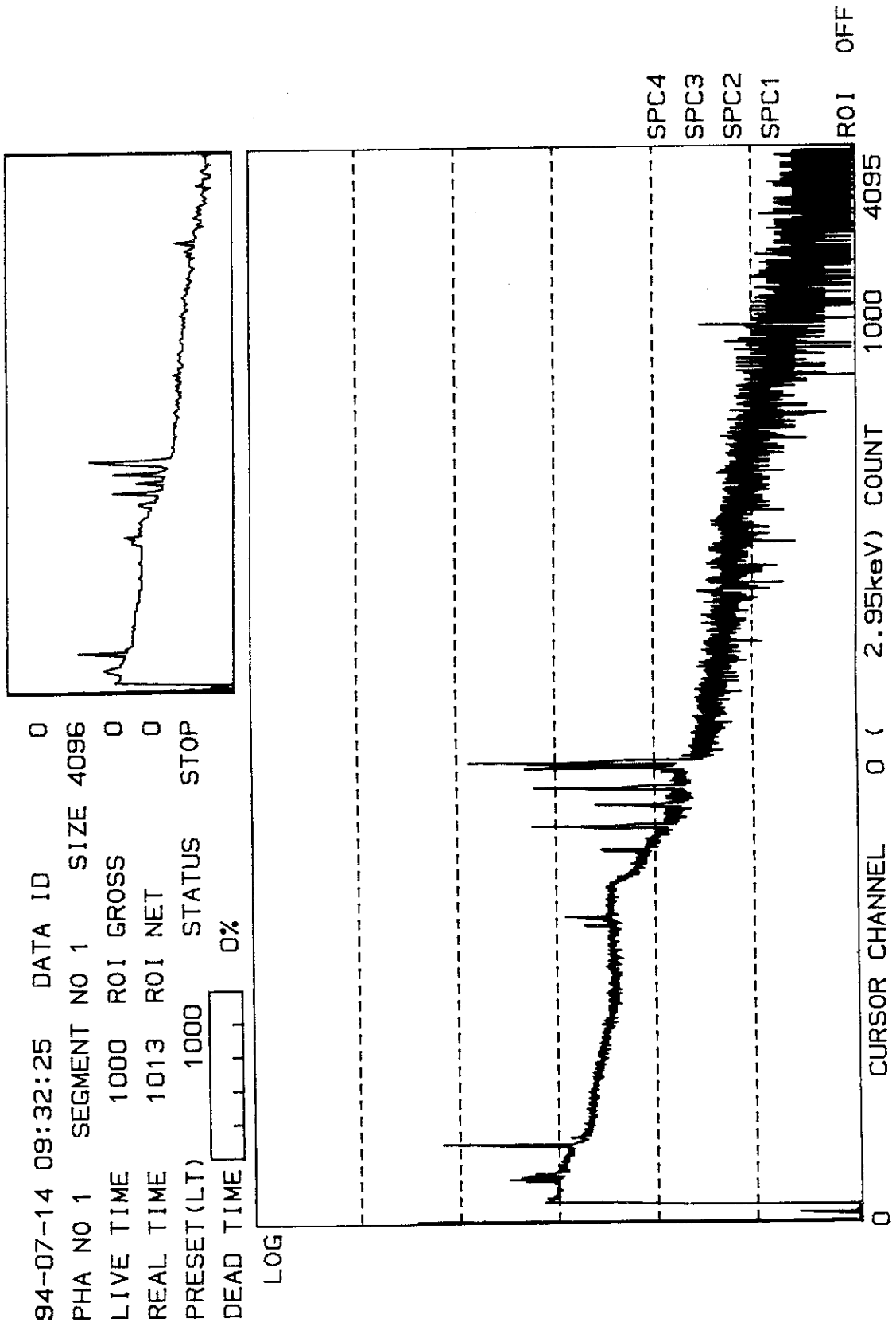


図3.5.2 B試料のγ線スペクトル例

た。1994年には、文章がまったくないレポートが現れ、驚かされた。

この実習は計算が多く、計算式の理解に意味があると考えられる。実習の目的はおおむね達せられたと思われるが、なかには、見当違いな実験班もあったことが分かった。実習中つねに感じたことは、同一試料を用い、同一の測定条件で測定しているにもかかわらず、実験班相互のデータの一致は今ひとつだということであった。これは、表3.5.2, 3.5.3の数値に見られる誤差からも分かる。ただ、表3.5.1の燃焼率平均値では、各年度ごとには、比較的よい精度が得られている。B試料については前年度に短い冷却時間でA試料として測定していることを研修生に話してはいないのであるが、同一照射条件の試料に対して得られた2年にわたる燃焼率測定結果の一致はよかったとはいえない。しかし、著者から見ると、研修生の実験における“ていねいさ”が、測定位置の正確さや、計測時間の長さ、全エネルギー吸収ピークのデータのとりかたなどに、少なからぬ影響を生じたように見受けられる。著者の側も、非破壊による燃焼率測定の原理を理解することを第一の目的とし、データの不一致について深く考えていなかった。化学実験と比較して論理性が強く、当然データの精度は良いはずだという先入観があったためか、終ってみると以外に難しい実験であったというのが、著者の感想である。

表3.5.1 測定試料と測定の詳細

| 測定試料 と 測定条件 | | 研修生実験実施年度 | | | | | | |
|-------------------|------------------------------|--|--------------------------------|--------------------------------|-------------------------------|--|--|-------------------------------|
| | | 1988年 | 1989年 | 1990年 | 1991年 | 1992年 | 1993年 | 1994年 |
| A | 照射 孔 | JRR-2 VT-8 | JRR-2 VT-8 | JRR-2 VT-8 | JRR-2 VT-8 | JRR-4 DA ^o 17 ^o | JRR-2 VT-8 | JRR-2 VT-8 |
| | 照射 期間 | 1988 May 16~27 266hr | 1989 June 12~23 266hr | 1990 June 11~22 266hr | 1991 June 3~14 266hr | 1992 May 19~22 24hr | 1993 May 17~28 266hr | 1994 June 13~15 50hr |
| | 試料 *1 | 1.5mg | 2.2mg | 2.5mg | 2.6mg | 3.7mg | 2.3mg | 2.7mg |
| | 測定 位置 | 5.0cm | 10cm | 15cm 10cm | 20cm 15cm | 5.0cm 2.5cm | 15cm | 15cm |
| | 測定 時間 | 10 ³ sec | 300 or 500sec | 500sec | 700sec | 500 or 10 ³ sec | 500 or 10 ³ sec | 500 or 10 ³ sec |
| | MWD T*2 | 19.4 ±0.57 | 33.9 ±0.36 | 49 ±2.7 | 78 ±1.8 | 5.3 ±0.19 | 93 ±2.0 | 6.7 ±0.61 |
| | 照射 孔 | JRR-4 SA ^o 17 ^o | JRR-2 VT-8 | JRR-2 VT-8 | JRR-2 VT-8 | JRR-2 VT-8 | JRR-4 DA ^o 17 ^o | JRR-2 VT-8 |
| 照射 期間 | 1987 May 25~27 18hr | 1988 May 16~27 266hr | 1989 June 12~23 266hr | 1990 June 11~22 266hr | 1991 June 3~14 266hr | 1992 May 19~22 24hr | 1993 May 17~28 266hr | |
| 試料 *1 | 3.4mg | 3.8mg | 4.7mg | 5.2mg | 5.2mg | 8.7mg | 5.7mg | |
| 測定 位置 | 1cm | 1cm | 1cm | 1cm | 1cm | 1cm | 5cm | |
| 測定 時間 | 5 × 10 ³ sec | 10 ³ sec | 10 ³ sec sec | 700sec | 10 ³ sec | 1or2 × 10 ³ sec | 2or3 × 10 ³ sec | |
| MWD T*2 | 7.6 ±0.19 | 16.7 ±0.40 | 30.6 ±0.43 | 31.5 ±0.92 | 52 ±1.9 | 6.9 ±0.24 | 63 ±3.4 | |

*1 測定試料 (5.13%ウラン-アルミニウム合金) の重量。

*2 研修生のレポートにあった数値の平均値。表3.5.2, および
3.5.3で誤差のついている数値の重みつき平均。

表3.5.2 研修生の実験データ (A試料)

| 核種 | ENERGY (keV) | 研修生実験実施年度 | | | | | | |
|-------------------|-----------------|---------------------------|---------------------------|------------------------|------------------------|--------------------------|---------------------------|--------------------------|
| | | 1988年 | 1989年 | 1990年 | 1991年 | 1992年 | 1993年 | 1994年 |
| ^{141}Ce | 145 | 1/6 19.1 | --- | 1/2 69.5 | 3/3 85 ± 4.7 | 2/2 6 ± 1.1 | 3/5 97 ± 2.9 | 1/2 8 |
| ^{140}La | 329 | 0/1 --- | --- | 1/2 54 ± 4.4 | 1/1 85 | --- | 0/2 --- | --- |
| ^{131}I | 365 | --- | --- | 0/2 --- | 1/1 78 | --- | --- | 0/1 --- |
| ^{140}La | 487 | 0/5 --- | --- | 1/2 55 | 2/2 77 ± 4.2 | --- | 0/4 --- | 0/1 --- |
| ^{103}Ru | 497 | 1/6 18 | 3/3 33.3 ± 0.61 | 3/4 48 ± 8.0 | 5/6 78 ± 8.1 | --- | 4/5 93 ± 3.6 | 1/1 7 |
| ^{95}Zr | 724 | 5/8 19.3 ± 0.64 | 3/3 33 ± 3.7 | 6/6 47 ± 6.1 | 2/2 84 ± 7.8 | 4/4 5.5 ± 0.24 | 3/5 87 ± 10 | 4/5 6.5 ± 0.84 |
| ^{95}Zr | 757 | 0/3 --- | --- | 0/2 --- | --- | --- | 0/4 --- | --- |
| ^{95}Nb | 766 | 0/3 --- | --- | 0/2 --- | --- | --- | 0/4 --- | --- |
| ^{140}La | 816 | 1/6 19 | 1/1 34 | 1/3 53 | 2/2 78 ± 3.1 | --- | 0/4 --- | 0/1 --- |
| ^{148}La | 868 | 0/2 --- | --- | 1/4 51 | --- | --- | --- | --- |
| ^{140}La | 1597 | 8/8 20 ± 1.3 | 6/6 34.2 ± 0.44 | 6/6 43 ± 5.0 | 6/6 74 ± 3.7 | 4/4 4.8 ± 0.34 | 3/6 *3 84 ± 5.0 | 6/6 7.0 ± 0.90 |

- *1 各欄の分数表示について 分子：燃焼率を計算した班の数；
分母：全エネルギー吸収ピークを同定した班の数。
- *2 各欄の、分数の下の数値について *1で分子が2以上（燃焼率計算結果が複数）の場合の平均値。データが一個（分子=1）の場合には、誤差のない数値を示す。
- *3 このピークを使うよう、実習中に指導したはずであるが、レポートに記載がない班が1班あったほか、計算ミス2班あり、除外した。

表3.5.3 研修生の実験データ (B試料)

| 核種 | ENERGY (keV) | 研修生実験実施年度 | | | | | | | |
|-------------------|-----------------|-------------------|--------------------|--------------------|-----------------|-----------------|-------------------|-----------------|----------|
| | | 1988年 | 1989年 | 1990年 | 1991年 | 1992年 | 1993年 | 1994年 | |
| ^{144}Ce | 134 | 2/5 | 2/2 | 4/4 | 6/6 | 3/3 | 5/6 | 4/4 | *1 *2 |
| | | 7.8 ± 0.23 | 19 ± 1.3 | 31 ± 1.1 | 32 ± 1.3 | 54 ± 2.4 | 7.0 ± 0.39 | 69 ± 6.3 | |
| ^{103}Ru | 497 | 0/2 --- | --- | --- | --- | --- | 0/3 --- | --- | |
| ^{106}Ru | 512 | 0/1 --- | --- | --- | --- | --- | 0/3 --- | --- | |
| ^{106}Ru | 622 | 0/1 --- | --- | 0/1 --- | --- | --- | 0/3 --- | --- | |
| ^{137}Cs | 662 | 7/8 | 5/5 | 6/6 | 6/6 | 4/4 | 6/6 | 6/6 | |
| | | 7.2 ± 0.57 | 16.5 ± 0.42 | 30.5 ± 0.55 | 31 ± 1.8 | 50 ± 4.4 | 6.9 ± 0.36 | 63 ± 5.9 | |
| ^{144}Ce | 697 | 0/5 --- | --- | 0/1 --- | 0/1 --- | --- | 0/4 --- | 0/1 --- | |
| ^{95}Zr | 724 | 7/8 | 1/1 | 4/5 | 6/6 | 3/3 | 3/5 | 4/5 | |
| | | 7.0 ± 0.48 | 15.8 *3 | 30.7 ± 0.75 | 31 ± 1.9 | 45 ± 4.6 | 6.9 ± 0.54 | 59 ± 5.7 | |
| ^{95}Zr | 757 | 0/5 --- | 3/3 (16)*4 | 0/1 --- | --- | --- | 0/4 --- | 0/1 --- | |
| ^{95}Nb | 766 | 0/4 --- | 1/3 (16)*4 | 0/1 --- | --- | --- | 0/4 --- | 0/1 --- | |
| ^{144}Ce | 1489 | 0/1 --- | --- | --- | --- | --- | 0/1 --- | --- | |

*1 各欄の分数表示について 分子：燃焼率を計算した班の数；

分母：全エネルギー吸収ピークを同定した班の数。

*2 各欄の、分数の下の数値について *1で分子が2以上（燃焼率計算結果が複数）の場合の平均値。データが一個（分子=1）の場合には、誤差のない数値を示す。

*3 外に2班分のデータがあったが、計算ミスがあったため採用しなかった。

*4 燃焼率計算には適さない全エネルギー吸収ピーク。なぜレポートに記載されたか不明。

4. 原子炉研修部門における放射化学関連実習のあり方

昭和51年(1976年)4月、著者が原子炉研修部門に着任後最初に問題にしたことは、原子炉技術者の教育訓練における化学の授業内容であった。幸いなことに、同年夏に日本原子力発電(株)の目黒芳紀氏より原子炉の化学管理のお話を伺う機会があり、その後一般課程で同氏による原子炉の化学管理に関する講義を取り入れることになった。日本原子力発電(株)は、ガス炉、続いてBWR、PWRを建設、その経験が、目黒氏、ひきつづいて同社の酒井公雄氏による講義に生かされ、一般課程および原子炉工学専門課程(現在の原子炉工学課程)における原子炉の化学管理の講義としては完璧といえるものとなり、現在に至っている。ただ電気化学の基礎で専門分野による違いがあるため、研修生にとって、腐食の話が分かりにくい一面があると思われたので、原研の化学部(当時)の諏訪武氏による腐食の基礎に関する講義を取入れ、電位の基礎の取りかたから話していただくように配慮した。

一方著者の立場では、電気系および機械系がほとんどである一般課程および原子炉工学専門課程の研修生に対し、化学が親しみやすいものとなる授業、化学屋が異星人ではないことを感じさせる授業ができればよいのではないかと考えた。そこで、教育訓練に関する諸外国のレポートを調査することにした。そのうちにアメリカにおける原子炉技術者の教育訓練で、まず数学、ついで化学と熱が基礎である、とするものが見つかった¹⁷⁾。化学の内容は、酸素欠乏や、硫酸の取扱いなど、安全に関わるものがら取り入れられており、きわめて実務的な内容であった。熱に関する授業では、温度と熱との関係を正しく理解させるように、との一行が印象に残った。また、20年前のアメリカにおける放射線管理技術者の教育訓練では、教育訓練の対象者が大学卒業レベルであったり、行政面で指導的立場に立つ人の養成であったりしたためか、化学関連の授業項目が見あたらず¹⁸⁻²¹⁾、いくつかの大学に保健物理の研究室を設ける、学位取得の問題、専門の教育訓練を終了した者の全国に対する配置計画などの内容で、日本とは事情がまったく異なることが分かり、参考にならなかった。結局、前述の原子炉技術者の教育訓練など^{17, 22)}を参考に、原子炉研修部門の化学の授業内容について、一応の結論を出した^{23, 24)}。また1980年から、INISを利用して原子力教育訓練に関するレポートの定期的調査を開始したが、化学に関するレポートは珍しかった²⁵⁾。

ところが、原子力関連の技術、原子力を取り巻く社会、したがって研修生をとりまく状況はこの20年間に大きく変化した。研修関連の変化としては勉学に対する考え方があげられる。20年前には、遊学という言葉が生きていたが、1995年現在、そのような言葉は死に絶えてしまった、としか言いようがない。当然、基礎としての放射化学の授業も、さしあたり必要のない講義へと徐々に変化していた。原子炉技術者の教育訓練の中で、化学管理や放射性廃棄物と関連のない化学の授業では、欠席者の人数を数えなくなる傾向が出てきた。読書の世界でも、ハウツーものがはばをきかせ、いわゆる教養とか、文学とか、そのような書物は店頭から姿を消した、といわれる時代である。原子力技術者が時代の外に取り残されてはいない証拠に、研修生の教室での態度はあきらかに20年前とは違っている。

さらに技術の進歩に伴って、一人の技術者の取り扱う範囲は狭くなり、以前は自分でやった仕事を他人に任せるようになり、昔は勉強するのが当たり前であった基礎的なことが、今では必要性を感じない形になったようである。昔は自分で作ったものでも、今では出来合いを買ってしまう時代である。苦勞して覚えなければならなかった技術は、一部の専門家だけのものになり、あるいは機械化されて、苦勞せずに成果を入手することができる。対数表を使った世代と電卓でた

ちどころに対数の数値を手にいれる世代とでは、技術に対する感覚が異なるのは当然である。その結果、昔の人が何かを作る過程で学んだことは、今の人にとってブラックボックスであってもおかしくない、という状況になっている。別な見方をすれば、アナログ的な考え方がすたれて、途中で飛躍のあるデジタル的な考え方が幅をきかせるようになったと言えよう。

化学関連の授業で今でも質問が出るのは、化学管理くらいである。イオン交換樹脂を見たことがない、ということ、20年前の原子炉技術者なら恥ずかしい、と思ったかもしれないが、今は知らなくて当然、さらに知る必要はない、という方向に向かって流れている。それが良いか悪いかは別にして、原子炉技術者にとって教養レベルの化学の授業は、要らなくなりつつある。このために、本報告の実習用実験はその役割を終えており、RI取扱技術者の教育訓練など、また別な場所で活用されるならば幸い、といわねばならないのは、残念であるがやむを得ない。さらに、研修生のほとんどが工学部出身であることから、実務的な授業内容の方がふさわしいと思われる。一般課程では、このような時代の流れにそってカリキュラムの改革が行われ、化学の授業も変わるようになった。化学関連の授業も前述のレポート^{23,24)}のような構成、すなわち、放射化学概論、核分裂生成物、アクチノイド、のように周期表にもとづいて無機化学概論風に組み立てられていた授業は、燃料化学、バックエンドの化学のように、工学部的発想で組み直され、原子炉燃料、あるいは放射性廃棄物を知るための基礎知識として必要なものだけが取りあげられる。

著者は、これだけ幅ひろい技術の集大成である原子力分野では、視野を広く持つことが原子炉技術者にとって大切なことではないのか、演繹的な考えばかりでなく、帰納的な考え方をすることも必要ではないのかと、それを言いたくて化学の授業を続けてきた。原子炉技術者の教育訓練では、物理系に分類される教科目がほとんどである。さらに、教え方のような、人間相手の、教育訓練に関することがらであっても、演繹的な手法が優れた方法であると考えられている。演繹的な教え方は、教官にとって授業のシナリオを作るのに好都合な方法である。一方研修生の側から見た場合、途中でつまづくと、そこから先が分からなくなるのが演繹的授業である。その結果、ついてゆけなかった研修生からアンケートで、教官が言いたいことを一方的に話した、という苦情が出る。数学に代表される演繹的手法に弱い研修生は、授業におじけづく。帰納的な手法は、論理的な筋道のみにも頼ることができないためシナリオの組立てが難しい。その上、演繹的な世界で暮らしている電気系の研修生の中には、帰納的な話を論理性に欠ける授業と受取る者がいる。ふたたび研修生によるアンケートの中で、教官は言いたいことを一方的に話した、となる。

演繹的手法に弱い研修生の場合、事実を出発点として、そこから法則性を導くとか、歴史的な流れのなかで、現在使われている定義を解説する、すなわちなるようになった結果としての法則を持ち出すという方法がとれる。こういう事実があった(ある)、それはなぜだったのだろう(なぜなのだろう)という疑問を持たせることで、学習に対して能動的な態度を呼び覚ますことができる。苦手な論理的法則に対する抵抗を減らすことができる。

一方、演繹的な手法に慣れ親しんだ研修生に対して、帰納的な手法を持ち出す、逆の教え方は難しい。論理性を第一に考える研修生にとって、クロマトグラフィを使わなければ分離が難しい化学分離の世界は、理解を越えているらしい。完璧に純粋な金属が地球上に存在しうるとか(入手できないのは、化学者の怠慢だという)、化学収率が“100%”でないのはおかしいといったたぐいの、化学屋から見ると現実ばなれした主張をする人は決して珍しくない。経験によると、このような場合にそれはおかしいと言え、彼らのやり方を“100%”否定し、非難し

たことになりがちで、議論になりにくい。彼らの主張によれば、100%純粋な物質や薬品を手にいれたり、100%の純度で放射化学分離をするのは“当たり前”のことなのであって、放射化分析用の照射試料作成や、放射化学分離をした核種の放射化学的純度に対して、化学屋の感覚からいうとけた外れのレベルを、当然のこととして要求してくる。それならご自分でどうぞ、と言うのは簡単であるが、それでも化学屋かと言われた上に、放射線管理区域の中でステンレス流しに塩酸溶液や硝酸溶液を流したり、されても困るのである。

そのうち、原子炉の安全性に関するレポートの中に、経験を生かすべきであった、小さなトラブルを論理的にあり得ないこととして片付けてしまうのではなく、起こるべくして起こったと考え、事実を明かにし、修正すべきところを修正しておくべきだったのだ、という言葉を見いだしたとき、原子炉技術者には、帰納的な手法も必要なのだと思う。しかし現実はどうかといえ、ば、“論理的に”原子力発電所で化学管理という仕事があるから原子炉技術者の教育において化学が必要だ、ということで充分だと考えられているらしい。では、化学管理の仕事をする上で、かくかくしかじかの事柄が必要である、ということを経験屋に理解し、納得してもらわなければならない、という場合に、簡単な論理だけで化学の話をするのであろうか？ 常時放射性核種を取り扱っている実験室では環境試料中の放射性核種の分離分析はできないとか、しばらく使っていなかった蒸留水製造器から出てくる蒸留水は、始めの数リットルが使いものにならないとか、研修生実習のように年に一〜二度しか実施しない実験では微量分析は無理であるとか、この種の化学屋の常識は、物理屋には通用し難い。実在の物質とは、そういうものである。それぞれの物質の性質にもとづいて、まったく科学的に行動しているにすぎないのであるが、融点ひとつとってもマイナス $x^{\circ}\text{C}$ からプラス $x^{\circ}\text{C}$ までである実在の物質の多様性のために、科学的説明は単純ではない。さらに概念としての違いがある。たとえば物理屋の蒸気圧は単なる数値であり、化学屋の蒸気圧はたくさんの分子達や原子達が飛び交っている“具体的な”姿かもしれない。また物理屋にとって高純度のアルミニウムとは100%A1かもしれないが、化学屋にとっては、どのような不純物がいかほど入っているか、が気になり、さらに眼には見えなくても表面に吸着された気体分子を考え、酸化がいかほどであるか、や保存状態を気にする。ひとつの言葉から生じるイメージには、物理屋と化学屋との間でかなりのギャップがあるように思われる。結局化学屋の責任のとりかたは、今現実そこに、ある“特殊な例”としての実体からことを始める、というかたちをとりがちなのである。化学分離が電流のオン・オフのようにはいかないのは、神様のせいなんだという、そのあたりのことをいかにカッコヨク授業に取り入れるか、それが問題なのである。結局、あたかも論理優先という厚い壁に対する闘いのような化学の授業であった。原子炉研修部門における化学の授業とは、著者にとってそういうものであった。

もちろん研修生の中には、化学に興味をもち著者担当の実習を選択し、発電所で化学管理や放射線管理の担当者として仕事をするときの違和感や、どうしたらよりよいコミュニケーションがとれるか、といったことがらについて楽しく話し合った電気系学科卒業の研修生もいた。彼らの共通点は、現場から来た人達だということであった。いくら電気系といっても、現場の仕事には論理だけでは済まない部分があるのであろう。それでもなお、化学屋との考え方の違いが議論の中心であった。また、化学が100%帰納的なことから構成されているのではない点も明白であるし、演繹的手法は明快ですばらしいと思っている化学屋は少なくない。逆に電気屋の方では、数学や数値の嫌いな化学屋を、話の分からない、いい加減な連中だと思っているに違いないのである。そこをなんとかつなぐために本報告の実習が役に立ったならば、実習を通して科学の中の化

学という、電気屋にとって基本的に“異質な”分野の存在を研修生に知らせることができたならば幸いだと思う。

最近の世の中では、一旦細かく分化し、専門化したことがらが、それらをまとめるものを必要としている、との意見が出ている。一方科学技術の専門家教育では幅広い基礎から狭く深い専門へ、という手法があった。原子炉研修部門で、総合的な手法と基礎から積み上げる手法とを両立させた授業が、どのような形の実習であり講義なのか、それは、これからの課題と考えられる。

謝辞

溶媒抽出研修生実験の際、計測器の使用にあたって便宜をはかっていただいた、原子炉研修部門東条隆夫氏および近藤眞氏（当時）、海水試料採取と養魚場見学に便宜をはかっていただいた温水養魚開発協会、および海水中 ^{137}Cs 放射線計測データを提供していただいた東条隆夫氏、保健物理専門課程の液体シンチレーション測定実習において、ご指導をいただいたラジオアイソトープ研修部門石河寛昭氏（当時）、燃焼率測定実習の実施に際して、ご指導をいただいた原子炉研修部門東条隆夫氏、実習に関連してお世話になった放射線管理課（研究3棟担当）、保健物理業務課、研究炉利用課、構内課、核燃料課、廃棄物処理場、もと化学部の皆様に深く感謝いたします。

学という、電気屋にとって基本的に“異質な”分野の存在を研修生に知らせることができたならば幸いだと思う。

最近の世の中では、一旦細かく分化し、専門化したことがらが、それらをまとめるものを必要としている、との意見が出ている。一方科学技術の専門家教育では幅広い基礎から狭く深い専門へ、という手法があった。原子炉研修部門で、総合的な手法と基礎から積み上げる手法とを両立させた授業が、どのような形の実習であり講義なのか、それは、これからの課題と考えられる。

謝辞

溶媒抽出研修生実験の際、計測器の使用にあたって便宜をはかっていただいた、原子炉研修部門東条隆夫氏および近藤眞氏（当時）、海水試料採取と養魚場見学に便宜をはかっていただいた温水養魚開発協会、および海水中 ^{137}Cs 放射線計測データを提供していただいた東条隆夫氏、保健物理専門課程の液体シンチレーション測定実習において、ご指導をいただいたラジオアイソトープ研修部門石河寛昭氏（当時）、燃焼率測定実習の実施に際して、ご指導をいただいた原子炉研修部門東条隆夫氏、実習に関連してお世話になった放射線管理課（研究3棟担当）、保健物理業務課、研究炉利用課、構内課、核燃料課、廃棄物処理場、もと化学部の皆様に深く感謝いたします。

引用文献

- 1) E. Akatsu, Radioisotopes, 30, 647~648 (1981).
- 2) 東條隆夫, 私信

- 3) B.F.Rider, NEDO-12154-3(C)(1981).
- 4) E.Akatsu, Nucl.Technol., 59, 532~539 (1982).
- 5) 吾勝永子, 私信
- 6) W.W.Schultz, E.J.Wheelright, H.Godbee, C.W.Mallory, G.A.Burney, R.M.Wallace, DP-MS-83-108(1983).
- 7) 東海研究所保健物理部、ほか、JAERI-M 9654 (1981) .
- 8) 東海研究所保健物理部、ほか、JAERI-M 82-112 (1982) .
- 9) 東海研究所保健物理部、ほか、JAERI-M 88-226 (1988) .
- 10) 東海研究所保健物理部、ほか、JAERI-M 89-212 (1989) .
- 11) 東海研究所保健物理部、ほか、JAERI-M 90-224 (1990) .
- 12) 東海研究所保健物理部、ほか、JAERI-M 91-171 (1991) .
- 13) 笠井篤、今井利夫、保健物理、10, 147~149 (1978) .
- 14) K.F.Flynn and L.E.Glendenin, PHYSICAL REVIEW, 116, 744 (1959).
- 15) W.W.Bowman, K.W.MacMurdo, Atomic Data and Nuclear Data Tables, 13, 89~292(1974)
- 16) U.Reus, W.Westmeier, ibid., 29, 1~192 (1983).
- 17) J.A.Cox, C.D.Cagle, B.L.Corbett, W.H.Culbert, T.P.Hamrick, S.S.Hurt, R.V.McCord, K.H.Poteet, A.E.G.Bates, W.R.Casto, ORNL/TM-5304(1977).
- 18) Walter D. Claus, Health physics, 8, 93 (1962).
- 19) L.K.Akers, W.L. Beck, Roger J. Cloutier, Howard W. Dickson, FDA-73-8209, p.281~287 (1973).
- 20) Idaho National Engineering Lab., CONF-791203-1(1979).
- 21) J. C. Courtney, V. N. Thelen, Health physics, 35, 860 (1978).
- 22) M. D. Karkjamavala and K. S. Venkateswarla, IAEA-SM-238/12, p.555 (1979).
- 23) 吾勝永子、JAERI-M 9827 (1981) .
- 24) 吾勝永子、JAERI-M 82-169 (1982) .
- 25) 吾勝永子, 私信