

JAERI-Tech
2003-071



JP0350557



RI・研究所等廃棄物の埋設処分における
安全評価上重要核種の選定（その2）
— 原子炉施設および照射後試験施設から発生した
廃棄物の核種分析手法の検討 —

2003年8月

浅井 志保・坂井 章浩・吉森 道郎・木原 伸二

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。

入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2003

編集兼発行 日本原子力研究所

RI・研究所等廃棄物の埋設処分における安全評価上重要核種の選定(その2)
—原子炉施設および照射後試験施設から発生した廃棄物の核種分析手法の検討—

日本原子力研究所東海研究所バックエンド技術部

浅井 志保⁺・坂井 章浩・吉森 道郎・木原 伸二

(2003 年 7 月 8 日受理)

RI・研究所等廃棄物処分の放射能インベントリー調査において、実廃棄物を対象とした放射化学分析により、計算・記録により求めた核種組成比の検証を行うため、原子炉施設および照射後試験施設から発生した廃棄物を対象として、RI・研究所等廃棄物の核種組成比にかかる特徴を考慮した分析スキーム(ここでは、放射性廃棄物中の多核種について放射化学分析を行う手順全体をいう)を検討した。本分析法は、分離工程を合理化するものであるが、 ^{59}Ni および ^{238}U のような組成比の小さい核種を含む全ての核種について相対誤差が数～10%程度で定量値が得られ、かつ各分離系統における回収率が概ね良好であった。これらの結果から、検討した分析スキームは、原子炉施設および照射後試験施設から発生する廃棄物の放射化学分析法として簡便かつ妥当であることを確認した。

**Selection of Important Nuclides from the Viewpoint of Safety
Assessment for Disposal of Radioactive Waste Arising from
Research Institutes - Part 2 -**

**Analytical Scheme for Nuclide Composition in Radwastes Arising from Research
and Testing Reactor and Post-irradiation Examination Facilities**

Shiho ASAI,⁺ Akihiro SAKAI, Michiro YOSHIMORI and Shinji KIHARA

Department of Decommissioning and Waste Management
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 8, 2003)

As part of survey concerning radioactive inventory of radwastes arising from research institutes, an analytical scheme has been studied for verifying their nuclide composition based on calculation analysis and record, in consideration of their characteristics. In this study, radwastes are used as samples, which arise from research and testing reactors and post-irradiation examination facilities (PIE facilities).

Though separation procedures are simplified and rationalized, quantifiable values could be obtained with relative errors under 10% for almost all the samples containing nuclides like ^{59}Ni and ^{238}U of which concentrations are low. The recoveries of the aimed nuclides were high on the whole.

These show that the analytical scheme is useful for chemical separation of radwastes arising from research and testing reactors and PIE facilities.

Keywords: Radioactive Waste Disposal, Nuclide Composition, Institutes-waste, Waste Contaminated by Irradiated Fuel, Waste Contaminated by Activated Material, Research and Testing Reactors, PIE Facilities, Radioactive Inventory, Chemical Separation

⁺Department of Environmental Sciences

目次

1. 序論	1
1.1. 放射能インベントリー調査	1
1.2. 本報の目的とこれまでの検討	1
2. 核種組成比検証分析スキームの設定	3
2.1. 核種組成比の検証	3
2.2. 分析対象核種およびサンプリング対象施設の設定	3
2.2.1. 分析対象核種	3
2.2.2. サンプリング対象施設および分析対象試料	5
2.3. 分析スキームの設定	5
2.3.1. 発電所廃棄物の分析法	5
2.3.2. 核種組成比検証分析スキームの設定	5
2.3.3. 本分析スキームの特徴	6
3. 設定した分析スキームの妥当性評価	10
3.1. 妥当性評価の方針	10
3.2. ^{59}Ni および ^{63}Ni の分離測定法	10
3.2.1. ^{59}Ni および ^{63}Ni の分離精製方法	11
3.2.2. ^{59}Ni および ^{63}Ni の測定装置	11
3.2.3. ^{59}Ni および ^{63}Ni の結果と考察	11
3.3. ^{90}Sr の分離測定方法	11
3.3.1. ^{90}Sr の分離精製方法	12
3.3.2. ^{90}Sr の測定装置	12
3.3.3. ^{90}Sr の結果と考察	12
3.4. ^{238}U の分離測定法	16
3.4.1. ^{238}U の分離精製方法	16
3.4.2. ^{238}U の測定装置	17
3.4.3. ^{238}U の結果と考察	17
3.5. 定量分析のための供試量計算法	19
3.5.1. 供試量計算法の妥当性確認	19
3.5.2. 分離精製方法	19
3.5.3. 測定装置	20
3.5.4. 結果と考察	20
4. 総括と今後の展望	25
4.1. ^{59}Ni - ^{63}Ni 、 ^{90}Sr 、および ^{238}U 分離法	25
4.2. 定量分析のための供試量計算法	25
4.3. 今後の展望	25
謝辞	26
参考文献	26

付録	参考資料	27
A,1	^{99}Tc 分離法	29
A,2	^{238}U 分離法	32
A,3	プルトニウム-アメリシウム分離法	33
A,4	^{90}Sr 分離法	35
A,5	^{59}Ni - ^{63}Ni 分離法	37
A,6	測定結果	39
A,7	定量限界値の計算法	44

Contents

1. Introduction -----	1
1.1 Radioactive Inventory Survey -----	1
1.2 Purpose and Synopsis of the Study -----	1
2. Setting of Analytical Scheme for Nuclide Composition Verification-----	3
2.1 Verification of the Nuclide Composition -----	3
2.2 Nuclides and Facilities to be Investigated-----	3
2.2.1 Nuclides to be Analyzed -----	3
2.2.2 Facilities and Samples -----	5
2.3 Setting of Analytical Scheme -----	5
2.3.1 Analysis of Radioactive Wastes Arising from Nuclear Power Plants ---	5
2.3.2 Setting of Analytical Scheme for Nuclide Composition Verification----	5
2.3.3 Characteristics of Analytical Scheme-----	6
3. Evaluation of the Analytical Scheme-----	10
3.1 Policies of Evaluation-----	10
3.2 Separation and Determination Procedures for ^{59}Ni - ^{63}Ni -----	10
3.2.1 Purification Procedure of ^{59}Ni - ^{63}Ni -----	11
3.2.2 Instrumentation for ^{59}Ni - ^{63}Ni Analysis -----	11
3.2.3 Results and Discussion of ^{59}Ni - ^{63}Ni Analysis-----	11
3.3 Separation and Determination Procedures for ^{90}Sr -----	11
3.3.1 Purification Procedure of ^{90}Sr -----	12
3.3.2 Instrumentation for ^{90}Sr -----	12
3.3.3 Results and Discussion of ^{90}Sr -----	12
3.4 Separation and Determination Procedures for ^{238}U -----	16
3.4.1 Purification Procedure of ^{238}U -----	16
3.4.2 Instrumentation for ^{238}U -----	17
3.4.3 Results and Discussion of ^{90}Sr -----	17
3.5 Method for Sample Weight Estimation for Quantitative Analysis -----	19
3.5.1 Confirmation of Sample Weight Estimation-----	19
3.5.2 Purification Procedures -----	19
3.5.3 Instrumentations -----	20
3.5.4 Results and Discussion -----	20
4. Conclusion and Future Direction -----	25
4.1 Purification Procedures of ^{59}Ni - ^{63}Ni , ^{90}Sr and ^{238}U -----	25
4.2 Confirmation of Sample Weight Estimation -----	25
4.3 Future Directions -----	25
Acknowledgement -----	26
References -----	26

Appendix	27
A,1 Separation Scheme of ^{99}Tc	29
A,2 Separation Scheme of ^{238}U	32
A,3 Separation Scheme of Plutonium-Americium	33
A,4 Separation Scheme of ^{90}Sr	35
A,5 Separation Scheme of ^{59}Ni - ^{63}Ni	37
A,6 Analytical Results	39
A,7 Calculation for Limit of Determination	44

1. 序論

1.1. 放射能インベントリー調査

RI・研究所等廃棄物の処理処分 (Fig. 1.1) に係る検討^{[1]~[3]}にあたっては、想定される廃棄体に含まれる放射性核種の種類と放射エネルギー、すなわち放射能インベントリーを精確に把握する必要がある。放射能インベントリー調査により得られる核種組成比^[4]は、RI・研究所等廃棄物処分の安全性に影響を及ぼす重要な核種 (以下、「重要核種」という) の選定、廃棄体確認技術開発、処分施設の概念設計等における検討の際に重要な情報となる。

1.2 本報の目的とこれまでの検討

重要核種の選定は、原研東海研究所における廃棄物を対象として、以下に示す 2 つの段階により進めることとした。本検討の目的と全体計画を Fig. 1.2 に示す。

- 1) 発生記録および燃焼・放射化計算により核種組成比の算出を行う。
- 2) 得られた核種組成比を廃棄物の実測データにより検証し、重要核種を選定する。

1) の核種組成比の算出については、「研究所等廃棄物の埋設処分における安全評価上重要核種の選定 (その1)」^[4]で報告した。算出した核種組成比については、対象施設から発生した廃棄物の放射能濃度測定による検証が望まれる。しかしながら、RI・研究所等廃棄物の分析法については報告例がなく、具体的な分析法が定められていない。そこで本報では、核種組成比の検証を目的とした RI・研究所等廃棄物の分析スキーム (以下、「核種組成比検証分析スキーム」という) を新たに検討し、その分析法の妥当性評価を行うこととした。

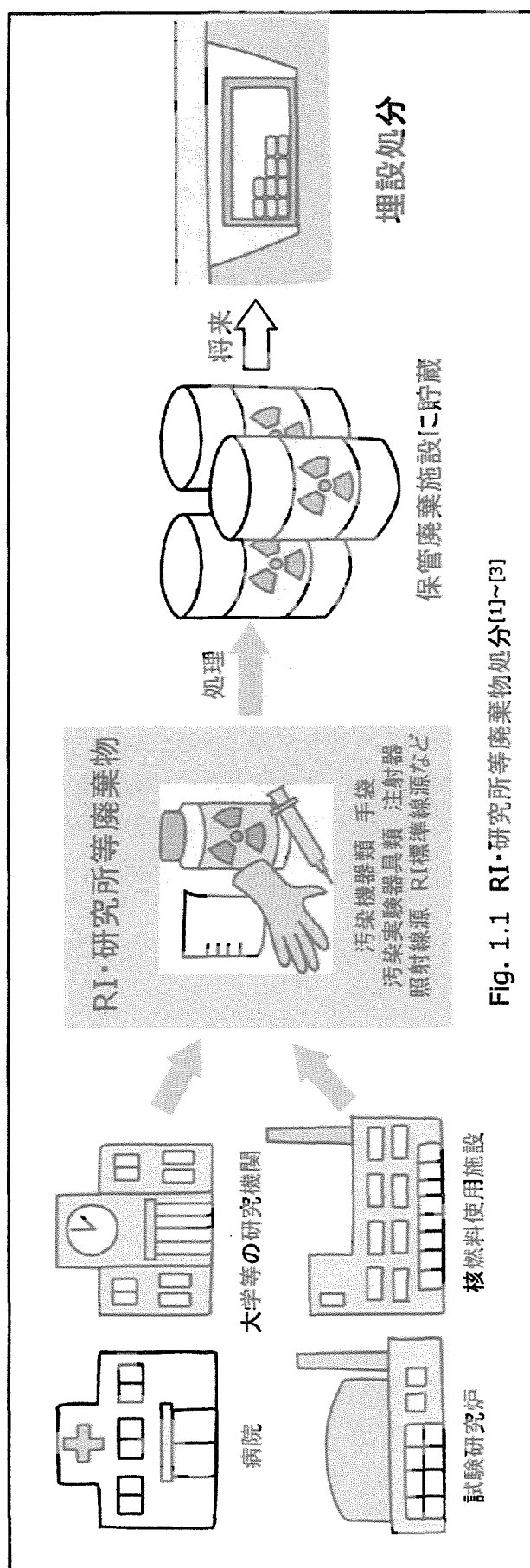


Fig. 1.1 RI・研究所等廃棄物処分[1]~[3]

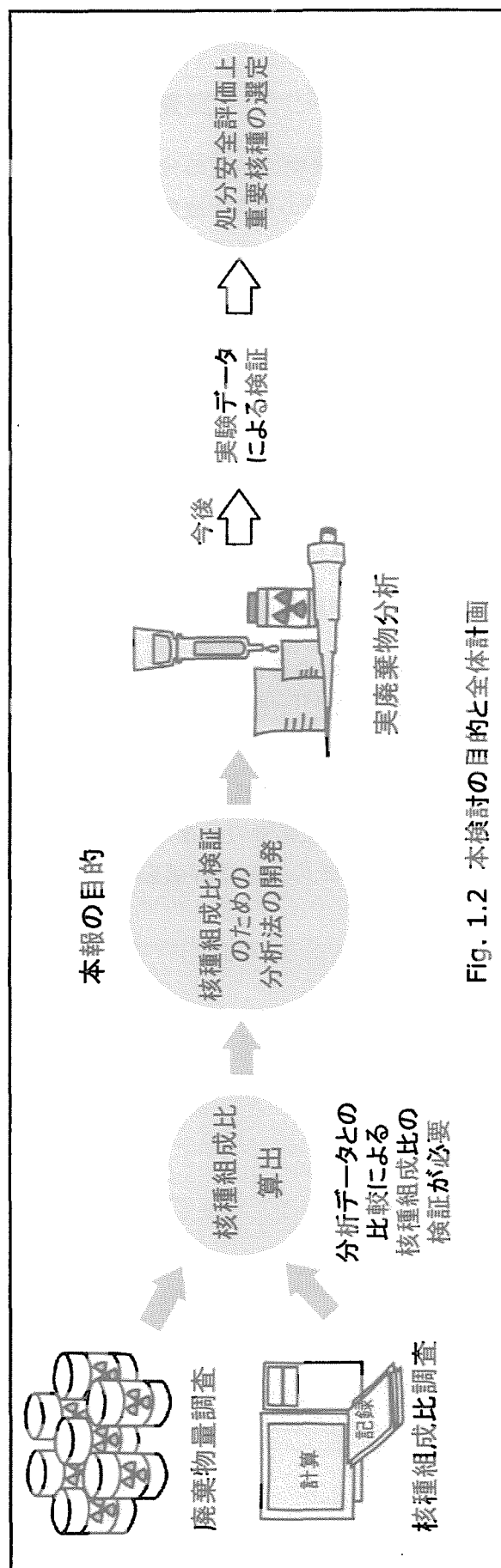


Fig. 1.2 本検討の目的と全体計画

2. 核種組成比検証分析スキームの設定

2.1 核種組成比の検証

実廃棄物分析による核種組成比の検証は、以下に示すプロセスにしたがって行うこととする。本報では、1)～3)について述べる。

- 1) 分析対象核種の設定
- 2) サンプルング対象施設、分析対象試料の検討
- 3) 分析法の検討
- 4) データの蓄積
- 5) Key 核種^{*1}と他の対象核種との組成比評価
- 6) 前報^[4]における核種組成比との比較

2.2 分析対象核種およびサンプルング対象施設の設定

2.2.1 分析対象核種

前報^[4]では、81 核種について核種組成比を評価した。本報では、これらの核種組成比を検証するため、一部の核種について分析することとし、その分析法の検討を行った。分析対象核種は、分析法の確立している発電所廃棄物^{*2}に含まれる核種^{*3}のうち、組成比が小さく、かつ分離測定が難しいものを除いて、Table 2.1 に示す核種を設定した。なお、²³⁸U については、発電所廃棄物の対象核種ではないが、組成比を確認するため、本分析の対象核種とした。

Table 2.1 分析対象核種

計測する放射線	核種				
γ線およびx線	⁵⁹ Ni	⁶⁰ Co	¹³⁷ Cs		
β線	³ H	¹⁴ C	⁶³ Ni	⁹⁰ Sr	⁹⁹ Tc
α線	²³⁸ U	²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am	²⁴⁴ Cm

*1 Key 核種 廃棄物に含まれる重要核種のうち、放射エネルギーが多く、測定が容易な核種(γ線放出核種)であるもの。発電所廃棄物では、難測定核種と Key 核種との相関関係を予め求めておき、廃棄体中の key 核種の非破壊測定結果から、難測定核種の放射能濃度の推定を行っている(スケールリングファクター法)。

*2 発電所廃棄物 原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物。

*3 発電所廃棄物に含まれる核種 発電所廃棄物の埋設にあたって、安全評価対象核種である ³H、¹⁴C、⁶⁰Co、⁵⁹Ni、⁶³Ni、⁹⁰Sr、⁹⁴Nb、⁹⁹Tc、¹²⁹I、¹³⁷Cs、全α核種についてのクロスチェック分析が行われており、これらの核種については、分析方法が確立されている。

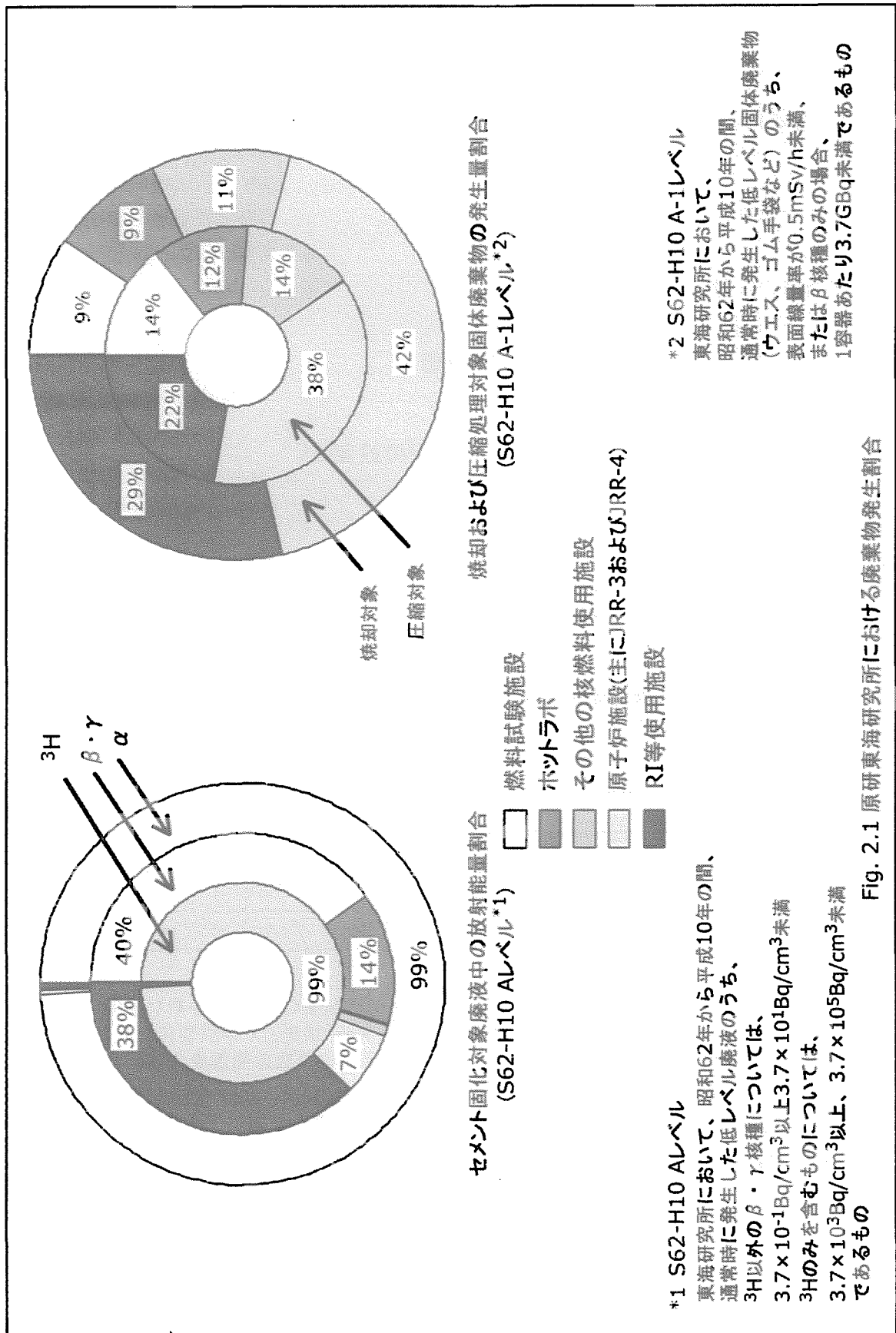


Fig. 2.1 原研東海研究所における廃棄物発生割合

2.2.2 サンプルング対象施設および分析対象試料

Fig. 2.1 に示すように、東海研究所で発生する廃棄物のうち、原子炉施設および照射後試験施設から発生するものは、ともに大きな割合を占めている。したがって、原子炉施設(JRR-3、JRR-4)および照射後試験施設(燃料試験施設、ホットラボ)をサンプルング対象施設として設定することにより、組成比の傾向を十分に表すことができると考えられる(Table 2.2 に示す)。試料の形態としては、試験条件による核種組成比の変動を考慮して、燃料および材料によって汚染された廃棄物(以下、「汚染廃棄物」という)を対象とした。

Table 2.2 サンプルング対象施設と試料の形態

	サンプルング対象施設	
	原子炉施設 (JRR-3、JRR-4)	照射後試験施設 (ホットラボ、燃料試験施設)
液体廃棄物	原子炉冷却水	タンク廃液 ^{*1}
固体廃棄物	イオン交換樹脂	ホットセルスミヤ濾紙 ^{*2}

*1 タンク廃液 各施設の運転により発生した廃液を一時的に保管するためのタンクから採取した廃液のこと。

*2 ホットセルスミヤ濾紙 ホットセル内の床、壁、装置等をスミヤ濾紙によって拭き取ったもの。

2.3 分析スキームの設定

2.3.1 発電所廃棄物の分析法

発電所廃棄物の分析法については、文部科学省受託研究として、財団法人日本分析センターから「放射性廃棄物処理処分に係る放射性核種の分析法に関する調査」の報告書^[6~11]が刊行されている。これらの報告書に示されている分析法は、発電所廃棄物中の放射能濃度が埋設基準に適合していることを確認するための手法として開発されたものである。その分析対象核種は、1)³H、¹⁴C、2)⁵⁹Ni、⁶³Ni、⁶⁰Co、⁹⁰Sr、⁹⁴Nb、¹³⁷Cs、3)⁹⁹Tc、¹²⁹I、4)プルトニウム、アメリシウム、キュリウムの4つの系統に分けられている。それぞれの系統における元素の分離精製は、逐次的に行われ効率化が図られている。分析系統図を Fig. 2.2 に示す。

2.3.2 核種組成比検証分析スキームの設定

発電所廃棄物の分析法では、一定基準値以下であることを確認することが主な目的である。一方、核種組成比検証分析では、key 核種と他の対象核種との組成比を求めることが目的であるため、全ての対象核種について定量値を得る必要がある。(Fig. 2.3)

逐次的に分離精製を行う発電所廃棄物の分析法を核種組成比検証分析に適用すると、組成比が大きく異なる核種を同系統で分離する場合には、分析に必要な試料の重量(以下「供試量」という)を組成比が小さい核種も検出される量に設定する必要がある。その結果、供試量が大きくなるとともに、分離にともなって発生する廃棄物が多量になること、扱う試料中の放射エネルギーが高くなることなどの問題が生じる。

2.3.3 本分析スキームの特徴

上述の問題点を考慮し、本検討では、全対象核種について定量値が得られ、かつ合理的な分析スキームを設定した。(Fig. 2.4)

本分析スキームの特徴は、核種組成比が大きく異なる場合が想定される ^{59}Ni - ^{63}Ni と ^{90}Sr を、別の分離系統とするとともに、 ^{238}U の分離法を新たに加えたことである。

発電所廃棄物では、一定量の供試量を用いて α 核種、ストロンチウム、ニッケルと逐次分離を行うのに対し、本スキームでは、 γ 線放出核種である ^{137}Cs および ^{60}Co を非破壊測定し、その測定結果と前報において評価した核種組成比 (Table 2.3) とから、測定目的核種ごとに放射エネルギーを推定する。相関のない燃料汚染源核種と材料汚染源核種は、別の分離系統としていることから、組成比の特徴に応じた供試量を設定が可能となる。このとき、燃料汚染源核種 (^{90}Sr 、 ^{99}Tc 、 ^{238}U 、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm) については ^{137}Cs との比を用い、材料汚染源核種 (^{59}Ni 、 ^{63}Ni) については ^{60}Co との比を用いることで精度の高いデータを取得することを目的とした。

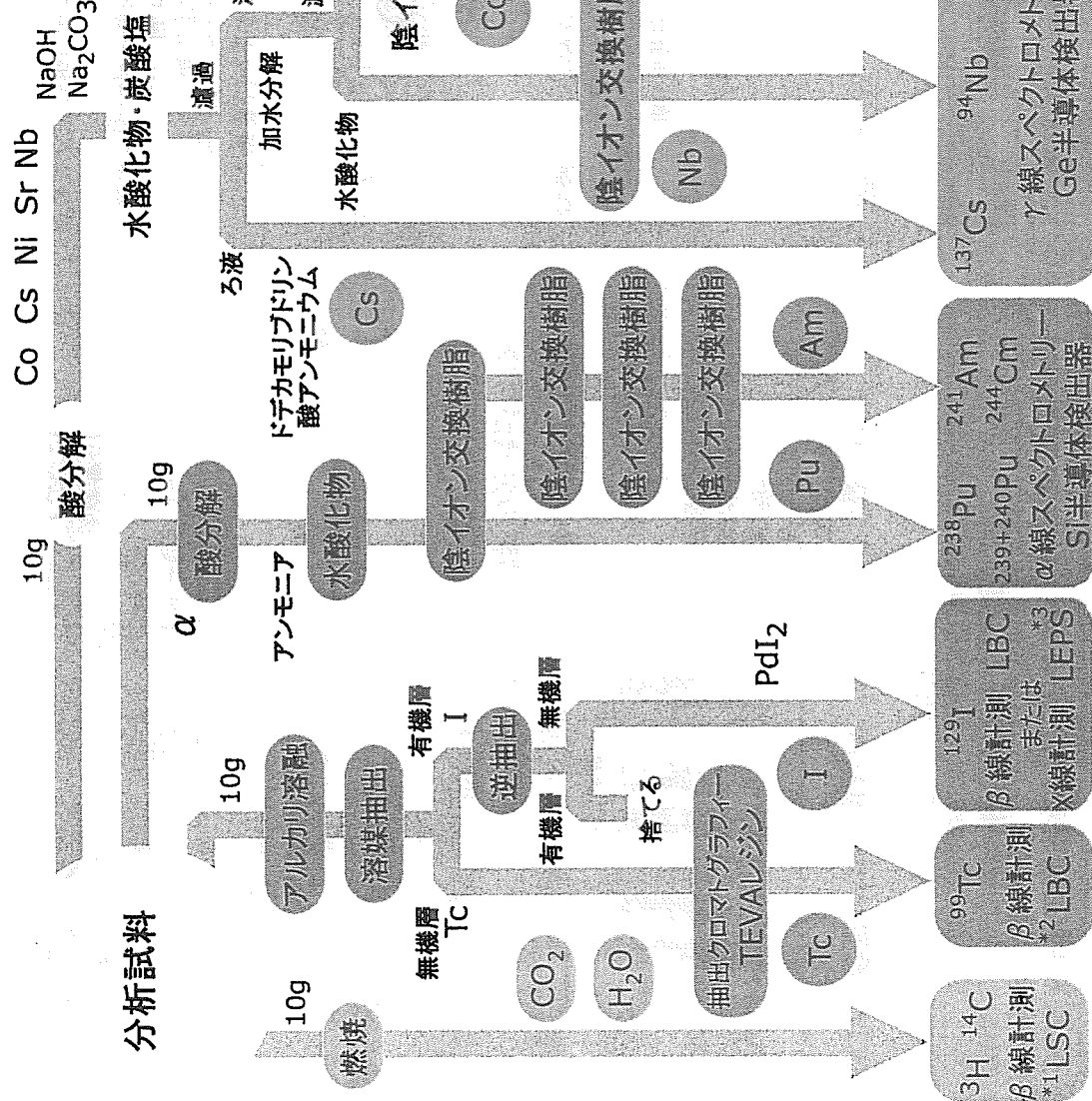
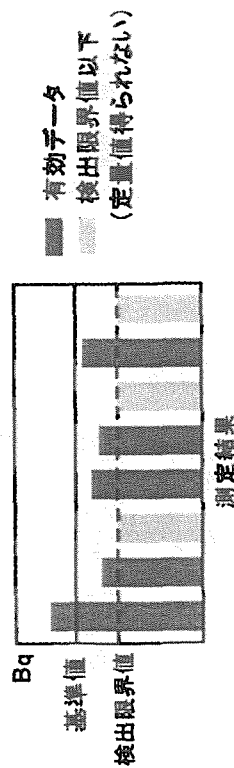


Fig. 2.2 発電所廃棄物分析法系統図[9]

発電所廃棄物分析

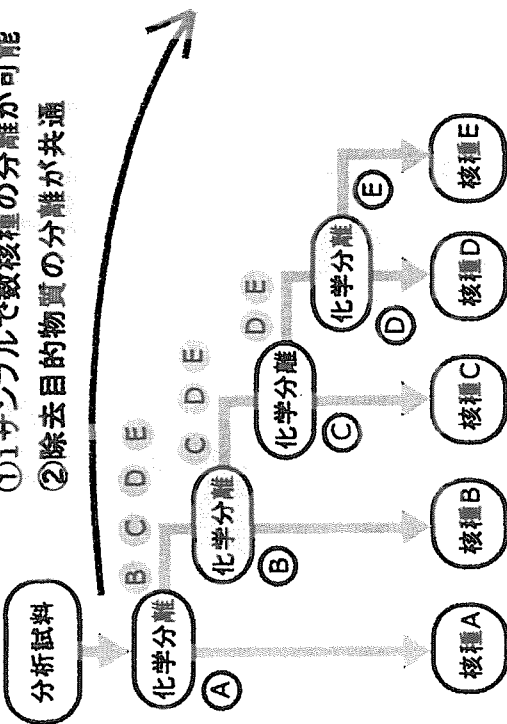
目的 一定の基準値以下であることを確認
一部の測定結果が検出下限値以下であつても問題とならない

供試量の設定 検出限界値 < 基準値 となる量を設定



分離法 逐次分離による効率化

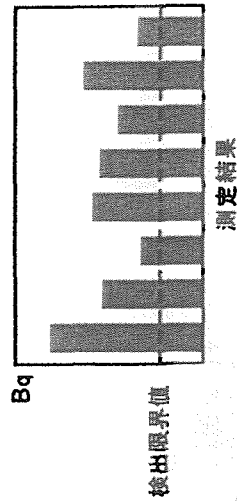
- ① 1 サンプルで数核種の分離が可能
- ② 除去目的物質の分離が共通



核種組成比検証分析

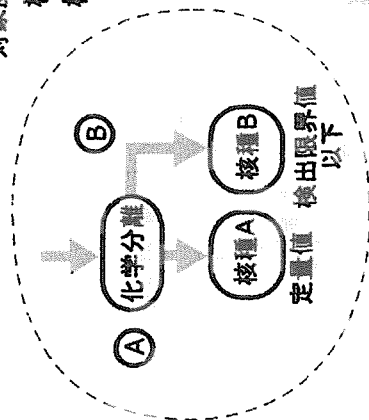
目的 key核種と他の対象核種との組成比を評価
すべての核種について定量値が必要

供試量の設定 全対象核種について定量値を得るために
組成比が小さい核種も検出される量に設定



分離法 逐次分離の適用

対象廃棄物中では
核種組成比が小さい核種
核種組成比が大きい核種
共存する系が想定される



- ① 組成比が大きい核種
- ② 組成比が小さい核種

問題点

- ① 供試量が多くなる
- ② 実験廃棄物が多量に発生
- ③ 試料の放射エネルギーが大きくなる

核種組成比分析に適用

Fig. 2.3 発電所廃棄物分析法と核種組成比検証分析法

Table 2.3 分析対象核種の組成比^[4]

核種名	原子炉施設		核燃料使用施設	
	汚染廃棄物	照射済燃料汚染廃棄物	照射済燃料汚染廃棄物	照射済燃料汚染廃棄物
³ H	2.5E+04	5.5E-03	2.0E-04	2.0E-04
¹⁴ C	7.4E-03	8.1E-06	5.5E-05	5.5E-05
⁶⁰ Co	1.0E+00 ^{*3}	1.3E-04	1.0E+00 ^{*5}	1.0E+00 ^{*5}
⁵⁹ Ni	1.1E-03	2.0E-08	3.8E-04	3.8E-04
⁶³ Ni	1.3E-01	2.8E-06	5.6E-02	5.6E-02
⁹⁰ Sr	1.8E-14	5.9E-01	1.1E-06	1.1E-06
⁹⁹ Tc	1.8E-07	1.3E-04	5.4E-08	5.4E-08
¹³⁷ Cs	7.7E-16	1.0E+00 ^{*4}	1.6E-06	1.6E-06
²³⁸ U	2.8E-10	3.6E-06	6.1E-12	6.1E-12
²³⁸ Pu	1.1E-10	2.1E-02	2.3E-08	2.3E-08
²³⁹ Pu	1.9E-08	3.6E-03	3.5E-09	3.5E-09
²⁴⁰ Pu	1.9E-08	3.6E-03	3.5E-09	3.5E-09
²⁴¹ Am	3.7E-10	2.3E-03	1.1E-09	1.1E-09
²⁴⁴ Cm	1.6E-15	3.7E-02	1.7E-07	1.7E-07

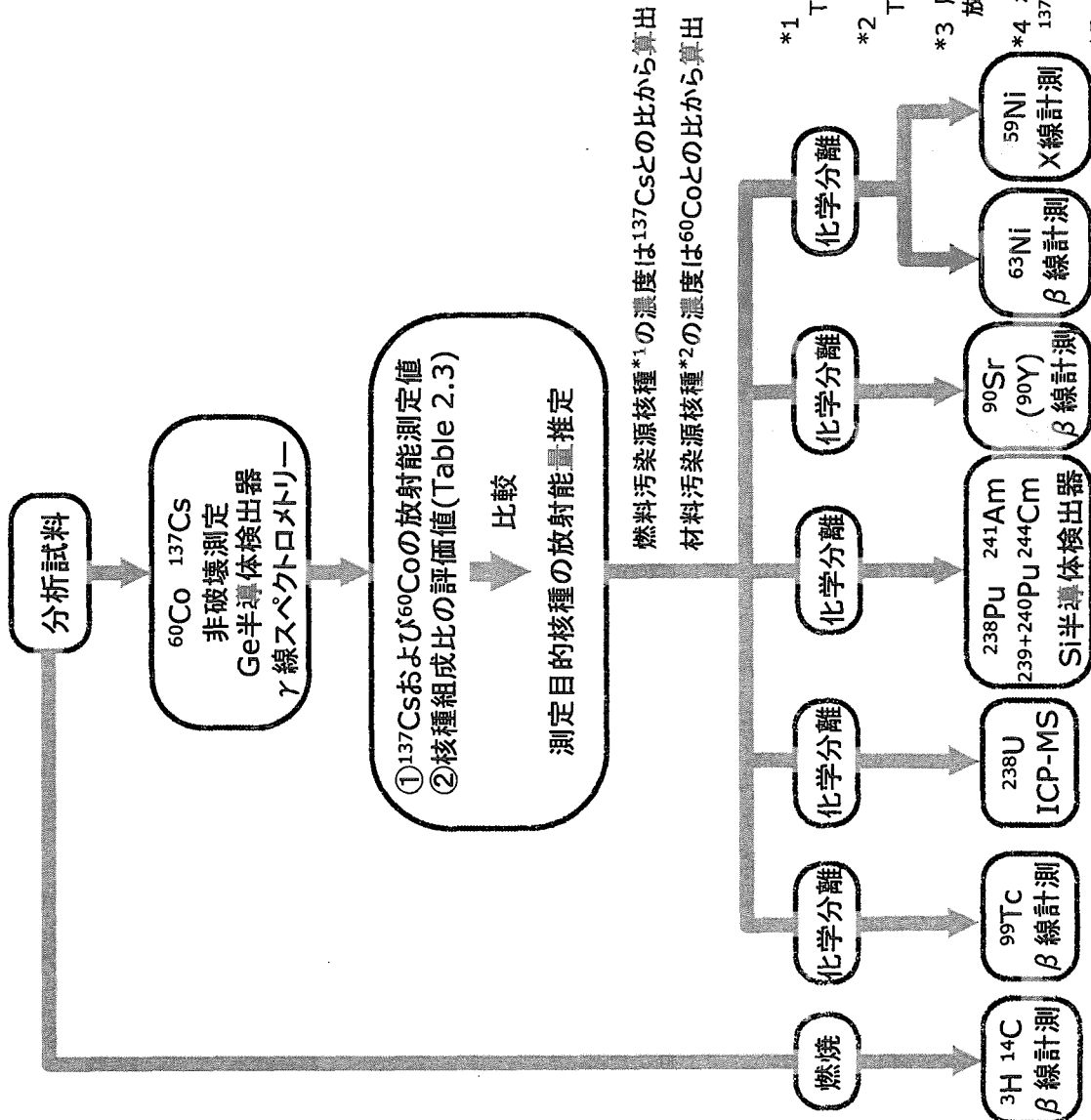


Fig. 2.4 設定した核種組成比検証分析スキーム

*1 燃料汚染源核種 ¹³⁷Csに代表される核分裂生成物など。

Table 2.3の核種のうち³H、¹⁴C、⁶⁰Co、⁵⁹Ni、⁶³Niを除いたもの

*2 材料汚染源核種 ⁶⁰Coに代表される放射化生成核種。

Table 2.3の核種では⁶⁰Co、⁵⁹Ni、⁶³Ni

*3 原子炉施設の汚染廃棄物については⁶⁰Coの放射能濃度を1.0として、他の核種の濃度を評価した

*4 核燃料取扱施設の照射済燃料汚染廃棄物については¹³⁷Csの放射能濃度を1.0として、他の核種の濃度を評価した

*5 核燃料取扱施設の照射済燃料汚染廃棄物については⁶⁰Coの放射能濃度を1.0として、他の核種の濃度を評価した

3. 設定した分析スキームの妥当性評価

3.1 妥当性評価の方針

本検討では、設定したスキームにおいて以下の項目について評価し、核種組成比検証分析スキームとして妥当であることを確認する。

- 1) 別の系統としたニッケルとストロンチウムのそれぞれの分離法について、また、新たに設定したウランの分離法について回収率、測定における妨害核種の影響等を検討することにより妥当性評価を行う。
- 2) 1)の結果をふまえ、Fig. 2.4 で設定したスキームに基づいて実廃棄物分析データを解析し、相対誤差を算出する。相対誤差 10%未満である場合を定量値であると考え、全対象核種について定量値が得られるスキームであるか評価を行う。

3.2 ^{59}Ni および ^{63}Ni の分離測定法

前章 (Fig. 2.2) で示したように、発電所廃棄物の分析法では ^{59}Ni 、 ^{63}Ni 、 ^{90}Sr は、 ^{137}Cs 、 ^{60}Co 、 ^{94}Nb とともに逐次的に分離が行われている。この分離法では、以下に示す方法によりそれぞれの元素ごとに精製される。

- 1) 試料溶液に炭酸ナトリウムを加え、炭酸塩を沈殿させ、 ^{137}Cs から分離する。上澄みの ^{137}Cs は、ドデカモリブドリン酸アンモニウムにより、さらに沈殿分離する。
- 2) 1)の炭酸塩を塩酸で溶解した後、加水分解により生成した水酸化ニオブをろ別する。沈殿を溶解し、陰イオン交換樹脂カラムに通すことによりニオブを精製する。ろ液を陰イオン交換樹脂カラムに通し、コバルトフラクションとニッケル・ストロンチウムフラクションを得る。
- 3) ニッケル・ストロンチウムフラクションを抽出クロマトグラフィー樹脂カラム (Ni レジン Eichrom 製) に通してストロンチウムと分離する。
- 4) ストロンチウムフラクションにシュウ酸を加え、得られるシュウ酸塩を灰化した後に硝酸に溶解して、抽出クロマトグラフィー樹脂カラム (Sr レジン Eichrom 製) に通すことにより、ストロンチウムを精製する。

^{59}Ni - ^{63}Ni と ^{90}Sr の組成比は、直接相関関係にはないので、 ^{90}Sr の放射エネルギーに対して ^{59}Ni あるいは ^{63}Ni の放射エネルギーが 10^3 以上小さい試料も想定される。このような試料について逐次分離を行うと、 ^{59}Ni - ^{63}Ni が検出限界値以下となり、定量値を得ることができない。

そこで 2.3 で設定したスキームでは、組成比が小さい ^{59}Ni の定量値を得るために、ニッケルを別の系統としたため、本スキームにけるニッケル分離法の妥当性評価を行うこととした。評価は、回収率測定、X 線スペクトロメトリー等により妨害核種の影響について検討することによって行った。

3.2.1 ^{59}Ni および ^{63}Ni の分離精製方法

原子炉施設のうち JRR-3 のイオン交換樹脂(3R1, 3R2)、また照射後試験施設のホットラボおよび燃料試験施設のホットセルスミヤ濾紙(HLS1, HLS2, NS1, NS2)を、硝酸、フッ酸、過塩素酸により分解し、分離用試料溶液とした。分離精製法を Fig. 3.1 に示す。回収率補正用担体として、安定 Ni^{2+} 2mg を添加し、さらに担体として Cs^+ 20mg、 Co^{2+} 10mg、 Fe^{3+} 10mg を添加した。水酸化ナトリウムおよび炭酸ナトリウムを加えてニッケルを共沈させ、上澄み中のセシウムと分離した。沈殿を 8M 塩酸 150ml で溶解し、陰イオン交換樹脂(Amberlite CG-400 Type I)カラムに通し、さらに 8M 塩酸 50ml を流してコバルト等を樹脂に吸着した。流出液は蒸発乾固して、1M 塩酸 5ml に溶解し、1M クエン酸水素二アンモニウム溶液 1ml を添加し、アンモニア水によって pH=8~9 に調整した。吸引濾過により析出物を除去し、抽出クロマトグラフィー樹脂カラム(Ni レジン)に通した。0.2M クエン酸水素二アンモニウム溶液 20ml を流してストロンチウム除去し、2.8M HNO_3 6ml によりニッケルを溶出した。得られた試料溶液を ^{59}Ni 用と ^{63}Ni 用に分けて、 ^{63}Ni については乳化シンチレーター(aquasol II)を加えて液体シンチレーションカウンター(LSC)により 100 分間測定を行った。 ^{59}Ni については電着を行い、薄窓型ゲルマニウム半導体検出器(LEPS)により 30,000 秒測定した。加えた担体の回収率は、原子吸光分析装置(AAS) 5100PC 型 PERKIN ELMER 社製を用いて測定した。

3.2.2 ^{59}Ni および ^{63}Ni の測定装置

^{63}Ni の β 線計測は、LSC(PACKARD 社製 TRI-CARB2550TR/LL)を用いた。計数効率、 ^{63}Ni 標準液 (IPL 製 7063)を調整して行った。

^{59}Ni の X 線スペクトロメトリーは、LEPS (ORTEC 社製 GLP-36360/13-P)を用いた。計数効率は、 ^{59}Ni 標準溶液(IPL 製 7059)を用いて、安定ニッケル重量が 0.5mg、1.5mg、2.0mg、2.5mg である電着線源を調製し、自己吸収を補正して求めた。

3.2.3 ^{59}Ni および ^{63}Ni の結果と考察

Table 3.1 に試料に加えた担体の回収率を示す。いずれの試料においても回収率は良好であり、本分離方法において、簡略化後も十分に試料溶液中のニッケルが回収されることが示された。

ホットセルスミヤ濾紙 HLS1 に本分離法を適用し、得られた ^{59}Ni の X 線スペクトルを Fig. 3.2 に示す。 ^{59}Ni の娘核種である Co の K_α 線(6.9KeV)以外のピークは認められないことから、 ^{59}Ni の計測にあたり、これを妨害する核種はなく、十分に分離精製されていることがわかった。

したがって、本分離法は、試料中に共存する妨害核種からニッケルを分離精製するのに妥当な分離法であることが実証された。

3.3 ^{90}Sr の分離測定方法

^{90}Sr の分離精製では、抽出クロマトグラフィー樹脂カラム(Sr レジン)を用いることにより、妨害核種が十分に除去される^[12]と考えられるため、Sr レジンのみを使用した分離法を検討することとした。

3.3.1 ^{90}Sr の分離精製方法

原子炉施設のうち JRR-3 のイオン交換樹(3R1)、また照射後試験施設のホットラボおよび燃料試験施設のホットセルスミヤ濾紙(HLS1, HLS2, NS1, NS2)を、硝酸、フッ酸、過塩素酸により分解し、分離用試料溶液とした。分離精製法を Fig. 3.3 に示す。回収率補正用担体として安定 Sr^{2+} 10mg を、担体として Ca^{2+} 150mg、 Co^{2+} 10mg、 Cs^{+} 20mg を添加した。水酸化ナトリウムおよび炭酸ナトリウムを加え、水酸化物および炭酸塩を沈殿させて上澄み中にセシウムを残し、遠心分離した。沈殿を 8M 硝酸 25ml により溶解し、抽出クロマトグラフィーカラム(Sr レジン)に通した。8M 硝酸 12.5ml、0.05M シュウ酸-3M 硝酸 12.5ml、8M 硝酸 12.5ml を流し、0.05M 硝酸 12.5ml でストロンチウムを溶出した(スカベンジング)。この試料溶液に Fe^{3+} 5mg Y^{3+} -50 μg 担体を添加し、酸性にして保存した。約 2 週間後、溶液中の ^{90}Sr から生成した ^{90}Y を、アンモニア水を添加して水酸化物に共沈させ(ミルクング)、低バックグラウンド β 線測定装置(LBC)測定用試料とした。測定時間は、 ^{90}Y の減衰を確認するために 60 分間を 9 サイクル行った。

3.3.2 ^{90}Sr の測定装置

^{90}Y の β 線計測は、LBC(Aloka 社製 LBC-471-Q)を用いた。 ^{90}Y の計数効率、 ^{90}Sr 標準溶液(日本アイソトープ協会製)を分離した試料と同時にミルクングし、得られた ^{90}Y の β 線を計測することにより求めた。回収率は、原子吸光分析装置(AAS) 5100PC 型 PERKIN ELMER 社製を用いて測定した。

3.3.3 ^{90}Sr の結果と考察

Table 3.2 に試料に加えた担体の回収率を示す。いずれも 65%以上であり、本分離法により、十分にストロンチウムを回収できることがわかった。また、 ^{90}Y の β 線計測において、ストロンチウムからミルクングされた ^{90}Y の減衰(半減期 64.1h)が、理論値の減衰曲線と一致することから、この沈殿には ^{90}Y のみが存在し、不純物による寄与はないものと考えられた (Fig. 3.4)。したがって、単一カラムにより簡略化した分離法においても、 ^{90}Sr は十分に精製できることがわかった。

3.2 および 3.3 の検討により、 ^{59}Ni - ^{63}Ni と ^{90}Sr とを別の系統で分離することにより、 ^{90}Sr の放射エネルギーに対して ^{59}Ni あるいは ^{63}Ni の放射エネルギーをそれぞれの精度を保ったまま、定量値を得るのに有効な分離法であることが明らかとなった。また、 ^{90}Sr を単一カラム分離することにより、他の核種の影響を除去することができ、さらに工程の簡略化が可能となった。

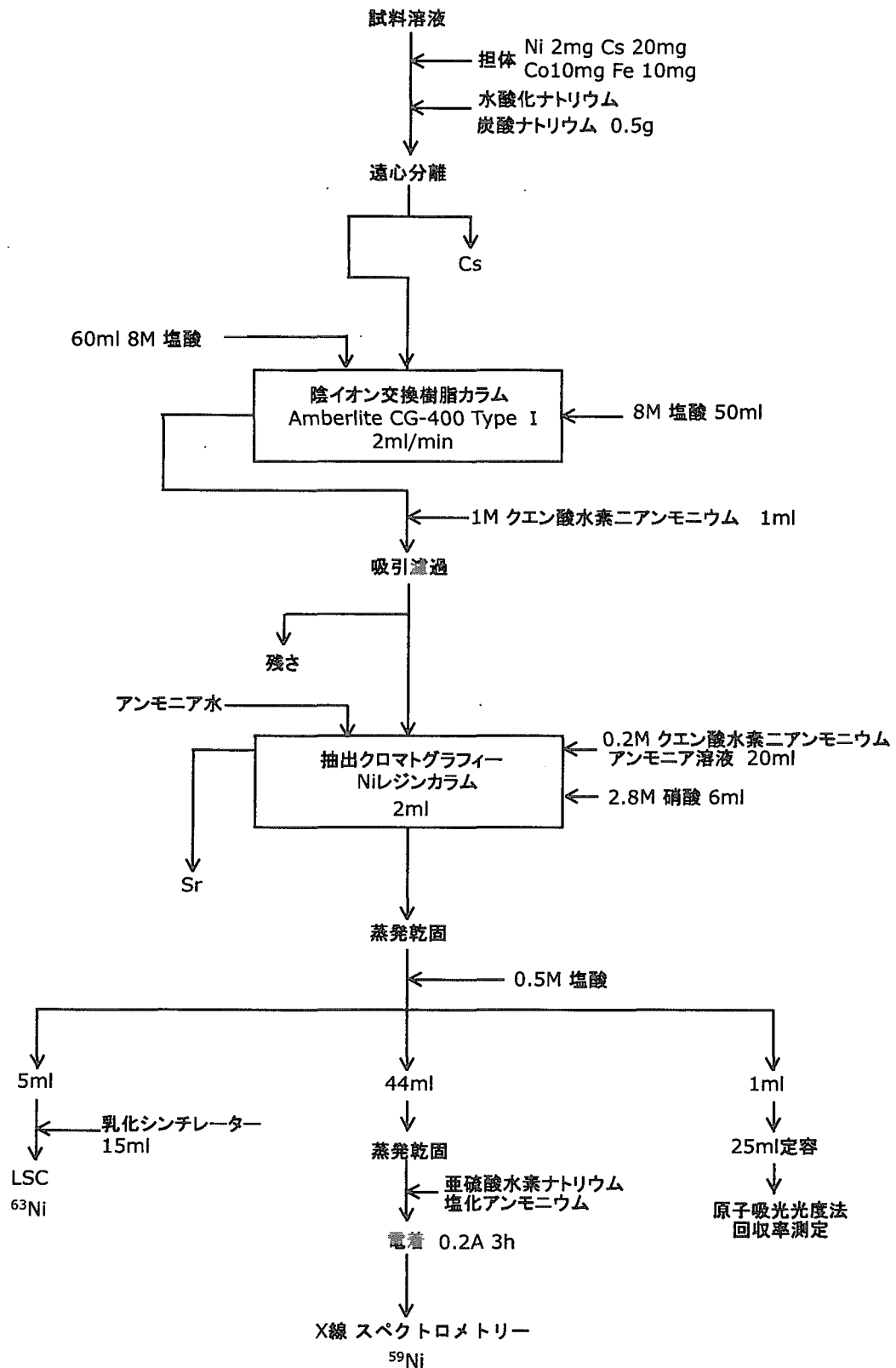


Fig. 3.1 ニッケルの分離フロー

Table 3.1 ニッケルの回収率

試料名	回収率(%)
3R1	100
3R2	99.7
HLS1	99.9
HLS2	100
NS1	95.8
NS2	98.0

平均 98.9%±1.7

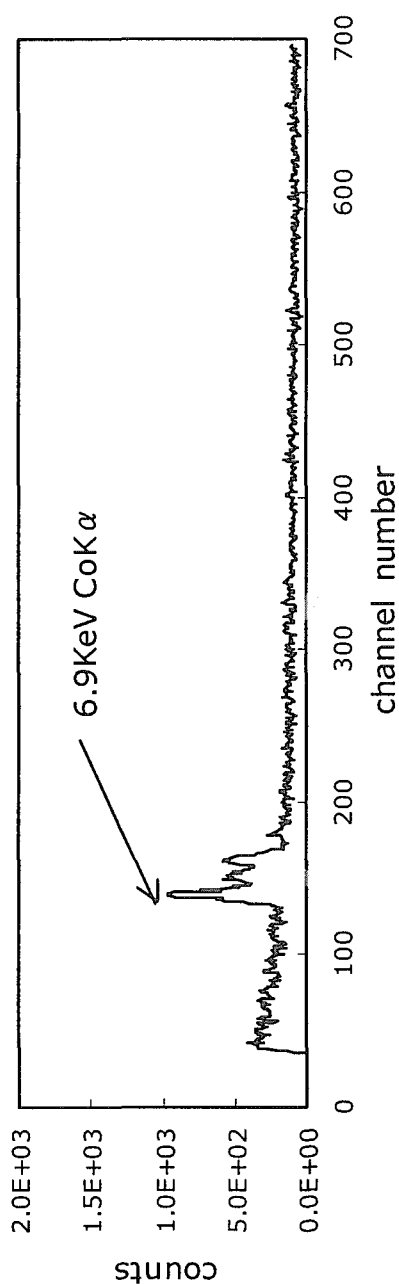
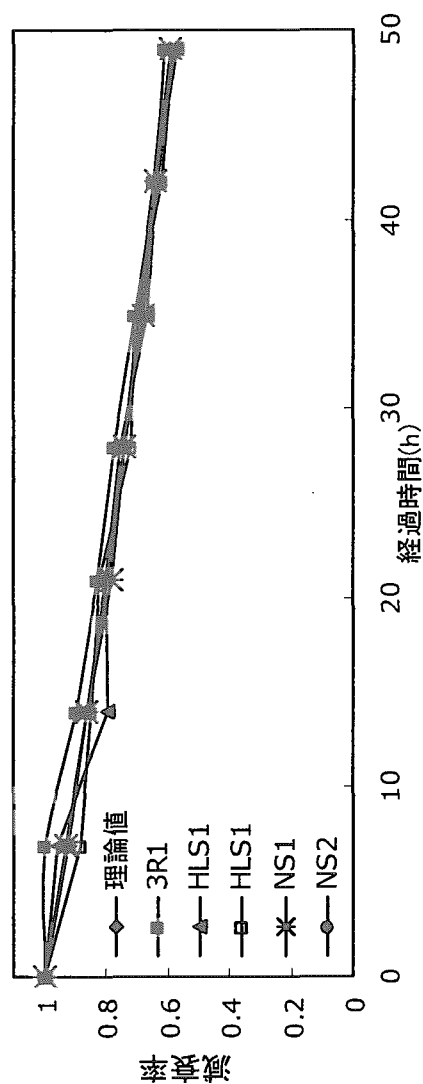
Fig. 3.2 試料HLS1における⁵⁹NiのX線スペクトル

Table 3.2 ストロニウム回収率

試料名	回収率(%)
3R1	65.0
HLS1	79.8
HLS1	97.7
NS1	84.6
NS2	66.8

平均 78.8%±13.5

Fig. 3.4 ⁹⁰Yの減衰曲線

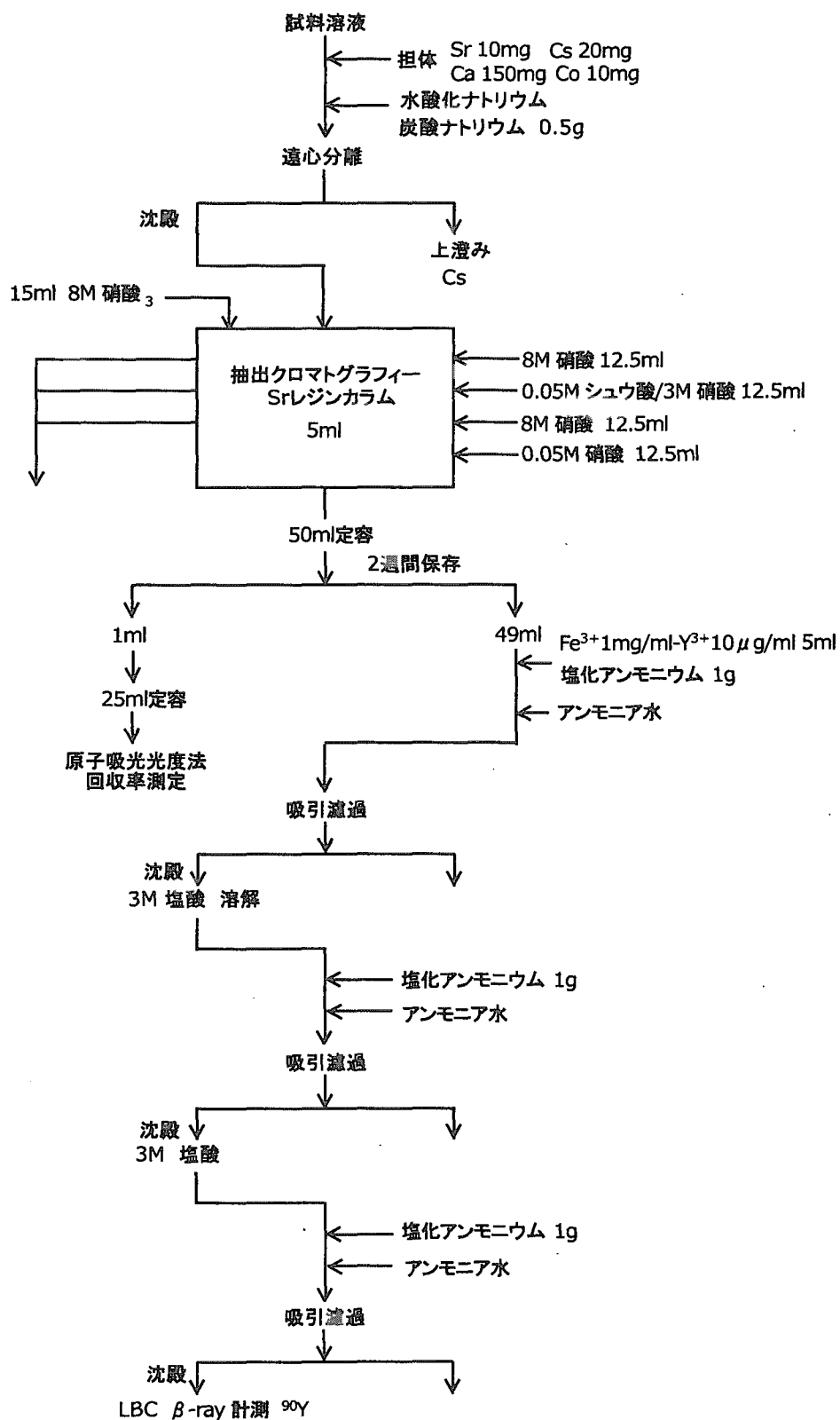


Fig. 3.3 ストロンチウムの分離フロー

3.4 ^{238}U の分離測定法

^{238}U 分析法は、土壌や地下水等の環境試料^[13]、使用済み燃料等について多くの報告例がある。これらの分析法では、イオン交換樹脂、溶媒抽出、抽出クロマトグラフィー等により分離精製が行われており、測定はシリコン半導体検出器による α 線スペクトロメトリーや、表面電離型質量分析装置 (TIMS)、ICP-MS といった質量分析により行われるのが一般的である。

核種組成比検証分析では、 ^{238}U の定量値を得る必要があり、対象とする試料中の ^{238}U 絶対量が、最大でも数 100ng ($\approx 10^{-3}\text{Bq}$) 程度であると予測されることから、 α 線スペクトロメトリーによる定量は困難な場合がある。

そこで本検討では、ICP-MS による同位体希釈分析を行い、 ^{238}U の定量を試みた。分離法は、Morgenstern らにより報告された、単一カラム抽出クロマトグラフィーによるウラン、プルトニウム、ネプツニウム、アメリシウムの分離法^[14]を参考とした。この分離法では、市販されている抽出クロマトグラフィー樹脂カラム (UTEVA レジン Eichrom 製) を用いて、使用済み燃料を想定した模擬試料中のウラン、ネプツニウム、プルトニウム、アメリシウムの逐次分離を行っており、それぞれのフラクションにおいて高い除染係数が得られている (Table 3.3)。したがって、この分離法を適用することにより、廃棄物中に存在すると予測される核種からのウラン分離が期待できる。

Table 3.3 UTEVA による除染係数^[14]

核種	DF in Am Fraction	DF in Pu Fraction	DF in Np Fraction	DF in U Fraction
Am	—	>1900	>1900	>1900
Pu	532	—	>2000	>2200
Np	>3000	53	—	>3000
U	>2000	>2000	>2000	—

3.4.1 ^{238}U の分離精製方法

スミヤ濾紙に ^{233}U をスパイクした模擬試料 (S-1, S-2) と、照射後試験施設のホットラボにおけるホットセルスミヤ濾紙 (HLS3, HLS4, HLS5) を硝酸、フッ酸、過塩素酸により分解し、分離用試料溶液とした。分離精製法を Fig. 3.5 に示す。得られた試料溶液に、回収率補正用および同位体希釈用スパイク ^{233}U (ORNL 製) 10ng を添加した。このとき、模擬試料 S-1 および S-2 については、 ^{242}Pu (NIST 4334G) 0.0317Bq、 ^{243}Am (IPL 7234) 0.0257Bq を添加し、プルトニウムおよびアメリシウムが分離可能であることを確認することとした。

分解により得られた試料溶液を蒸発乾固し、6M 硝酸-0.3% H_2O_2 10ml に溶解して UTEVA に通した。さらに 6M 硝酸-0.3% H_2O_2 15ml を流してアメリシウムを溶出し、2M 硝酸-0.002M アスコルビン酸-0.002M 塩酸ヒドロキシルアミン 15ml によりプルトニウムを 3 価に還元して溶離し、2M 硝酸-0.1M シュウ酸 15ml により Np を溶出した。最後に 0.007M $(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4$ 15ml を流してウランを溶出した。得られたウランフラクション溶液を ICP-MS により測定し、同位体希釈法

により定量した。なお、回収率は ^{233}U を検量線法により求めた。S-1 および、S-2 においては、さらにそれぞれのフラクション溶液を電着し、 α 線スペクトロメトリーを行った。

3.4.2 ^{238}U の測定装置

^{238}U の同位体希釈質量分析には、ICP-MS(YOKOGAWA HP4500)を用いた。測定条件は RF power 1.25kW、プラズマガス(Ar)流量 15L/min、補助ガス流量 1.0L/min とした。検出限界は 0.527ppt(以下の式にしたがって算出した)であった。模擬試料の α 線スペクトロメトリーは、表面障壁型シリコン半導体出器(SSD) EG & G ORTEC 社製 TU-017-450-100 有効面積 47mm^2 により、70,000 秒測定を行った。

検出限界

$$\text{D.L. (ppt)} = \frac{3\sigma \times 10,000}{(S-B)}$$

σ : ブランク溶液の標準偏差
 S: 10ppb 標準液の信号(カウント)
 B: ブランク溶液の信号(カウント)

3.4.3 ^{238}U の結果と考察

Table 3.4 に ^{233}U の回収率と ^{238}U の定量値を示す。加えた担体の回収率は、模擬試料および実試料のいずれの場合も 90%を超えており、本分離法によりウランは十分に回収可能であることがわかった。また、S-1 および S-2 において、Fig. 3.6 に示されるように、溶離した各フラクション溶液に妨害スペクトルの影響が認められないことから、本分離法によりウランが分離精製されていることを確認した。

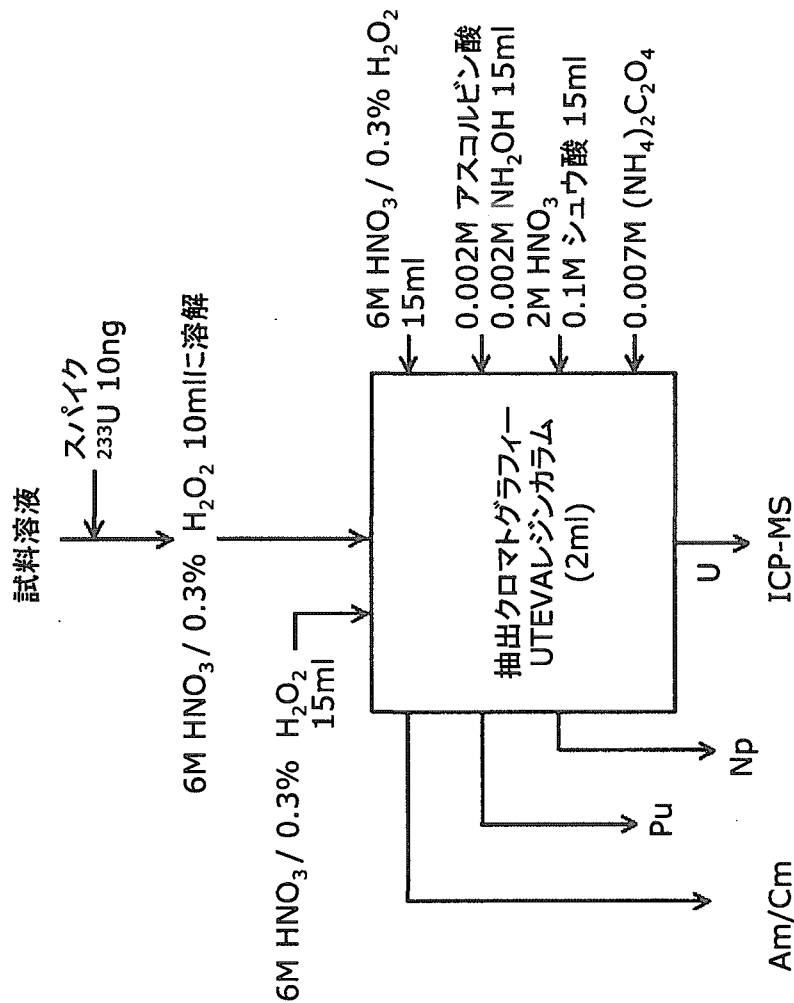


Fig. 3.5 ウランの分離精製フロー

Table 3.4 ^{233}U 回収率および ^{238}U の定量値

試料名	回収率(%)	^{238}U (g)
S-1	100	
S-2	100	
HLS3	100	9.92E-07
HLS4	94.4	1.45E-07
HLS5	91.3	1.36E-07

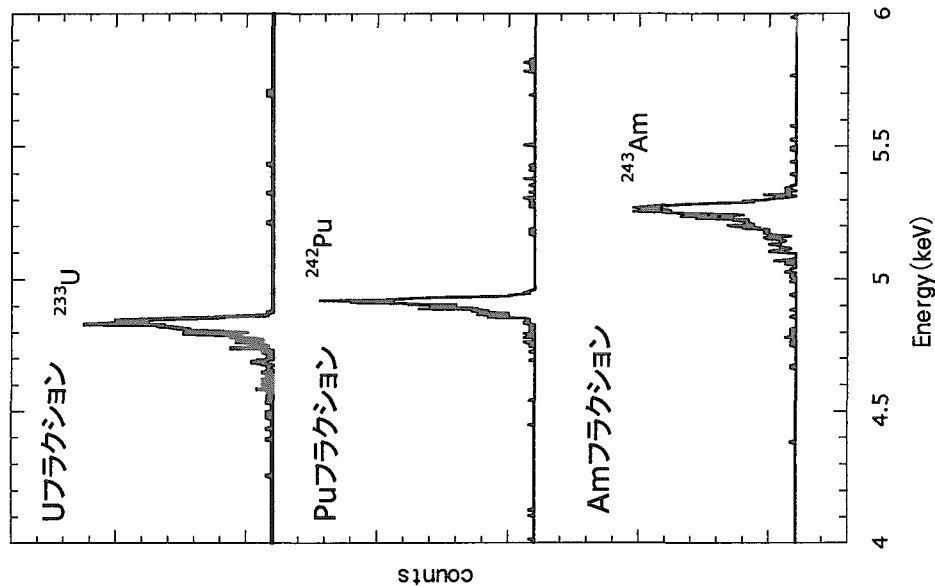


Fig. 3-6 Uフラクシオン、Puフラクシオン、Amフラクシオンの α 線スペクトロメトリー (S-1)

3.5 定量分析のための供試量計算法

本検討では、 ^{137}Cs および ^{60}Co の放射能濃度を γ 線スペクトロメトリーにより算出した結果と、核種組成比 (Table 2.3) とから、各分離系統において、定量値を得るのに必要十分な供試量を決定することとしている (Fig. 2.4)。そこで、この供試量計算法の妥当性評価を試みた。なお、 ^3H および ^{14}C については、化学形によっては揮発性となることがあり、試料中に留まらない場合があるなどの不確定因子を考慮する必要があるため、 ^{137}Cs 、あるいは ^{60}Co との相関を得るのが困難であると考えられる。したがって、 ^3H および ^{14}C の適切な供試量計算法は、今後検討を行うこととした。本報では、試料の形態により Fig. 3.7 中の表 (供試量) のように設定し、分析を行った。

3.5.1 供試量計算法の妥当性確認

供試量の計算方法における妥当性確認は、以下に示す手順にしたがって行うこととした。分析対象試料は、ホットラボのスミヤ濾紙とした。

- 1) Ge 半導体検出器により試料を非破壊測定し、 ^{137}Cs および ^{60}Co の放射エネルギーを算出する。
- 2) ^{137}Cs および ^{60}Co の放射エネルギーと核種組成比 (Table 2.3) とから、対象核種ごとに放射エネルギーを算出する。燃料汚染源核種である核分裂生成物や TRU 核種等は、 ^{137}Cs の放射エネルギーと、Table 2.3 の組成比とからそれぞれの放射エネルギーを算出する。 ^{59}Ni や ^{63}Ni といった材料汚染源核種は、 ^{60}Co の放射エネルギーと Table 2.3 の組成比とから放射エネルギーを算出する。
- 3) 推定した放射エネルギーと核種ごとの定量限界値 (理論値) とを比較し、供試量を計算する。
- 4) 系統ごとに分離測定を行い、相対誤差を計算する。評価基準としては、相対誤差 10% 未満で定量値が得られる場合妥当であるとする。

3.5.2 分離精製方法

1) ^{99}Tc

試料を水酸化ナトリウムによるアルカリ溶融し、回収率補正用スパイクとして $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 約 100kBq、 Fe^{3+} 担体を 100mg 添加した。ピロ亜硫酸カリウムを 1g 加えてテクネチウムを還元し、水酸化ナトリウムにより pH=9 として、水酸化鉄に共沈させた。得られた沈殿を遠心分離し、塩酸により溶解した。過酸化水素 10ml を添加してテクネチウムを酸化し 7 価とした。再び水酸化ナトリウムを加えて pH=9 に調整し、水酸化鉄を沈殿させ、上澄み中のテクネチウムと分離し、1M 硝酸により pH=1 に調整し、抽出クロマトグラフィー樹脂カラム (TEVA レジン Eichrom 製) に通した。0.1M 硝酸 100ml で洗浄し、1M 硝酸 15ml によりテクネチウムを溶出した。得られた溶出液を電着して、LBC 測定用試料とした。回収率は $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の γ 線を計測することにより求めた。 (Fig. 3.8)

2) プルトニウムおよびアメリシウム

硝酸、フッ酸、過塩素酸によって試料を分解溶液化し、回収率補正用スパイク ^{242}Pu および ^{243}Am を 0.05Bq 添加して、8M 硝酸 20ml で溶解した。 NaNO_2 を 0.03M となるよう添加し、プ

プルトニウムを4価に調整し、陰イオン交換樹脂(Dowex 1×8)に通した。8M 硝酸 100ml 流してアメリシウムを溶出し、10M 塩酸 50ml によりトリウムを除去した。最後に塩酸-NH₄I 混合溶液 50ml を流しプルトニウムを3価に還元してカラムから溶出した。溶出液は電着により SSD 測定用試料として調製し、70,000 秒測定を行った。一方、陰イオン交換樹脂から溶出したアメリシウムフラクションを蒸発乾固し、2M 塩酸 10ml に溶解して、陽イオン交換樹脂(BIO-RAD 50W×8)に通した。2M 塩酸 150ml により洗浄し、6M 塩酸 150ml を流してアメリシウムを溶出した。さらにこの溶液を蒸発乾固し、2M NH₄SCN 20ml に溶解した後、抽出クロマトグラフィー樹脂カラム(TEVA レジン Eichrom 製)に通した。2M NH₄SCN 20ml によりカラムを洗浄し、0.25M 塩酸 20ml によりアメリシウムを溶出した。得られたアメリシウムフラクション溶液は、プルトニウムと同様に表面障壁型シリコン半導体出器(SSD)測定用試料を調整し、70,000 秒測定を行った。(Fig. 3.9)

3.5.3 測定装置

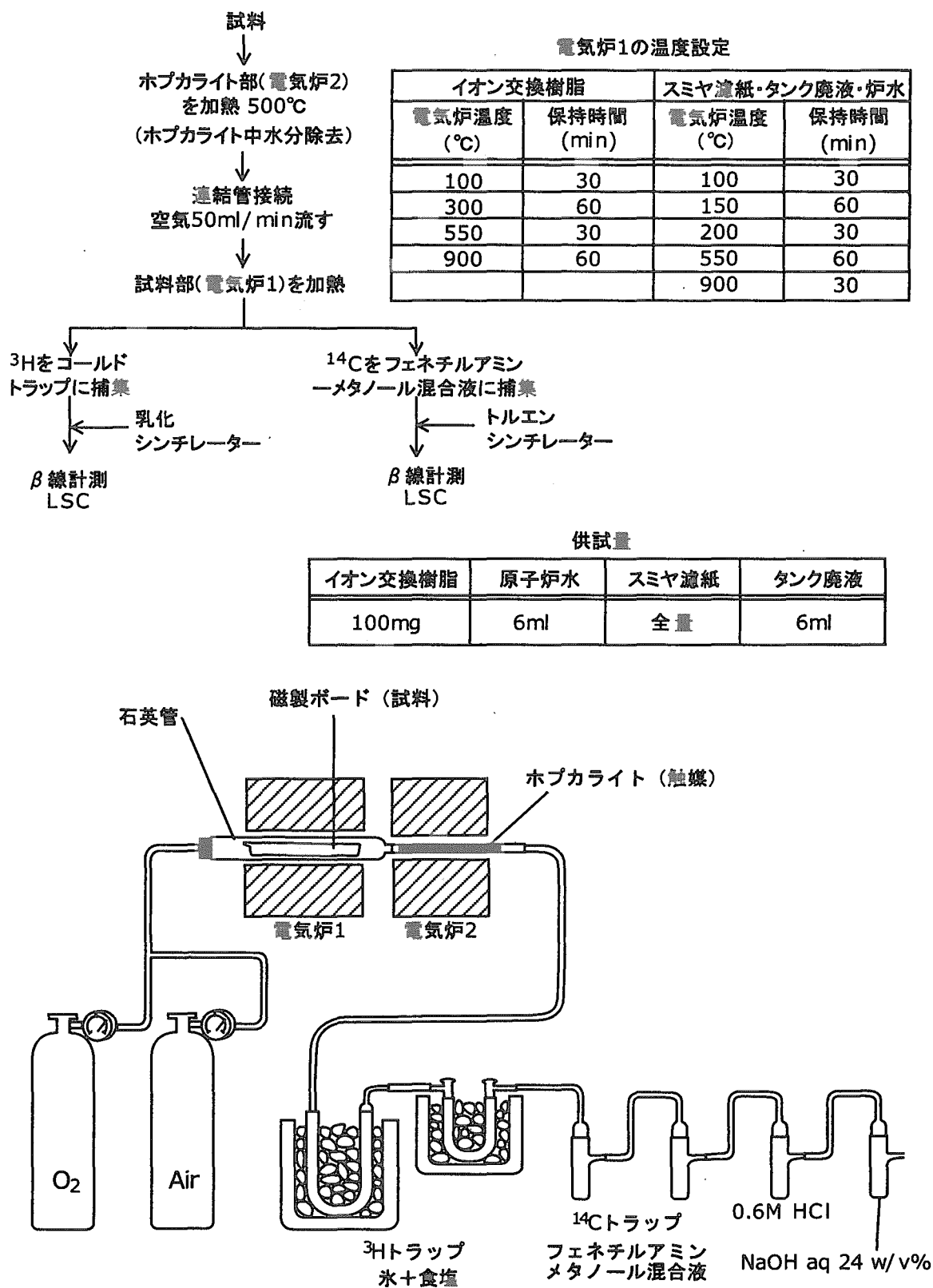
¹³⁷Cs および ⁶⁰Co はゲルマニウム半導体検出器(ORTEC 社製 GEM-20180-P)により 70,000 秒測定した。エネルギー校正は ⁶⁰Co、¹³⁷Cs 等を含む混合γ線源(日本アイソトープ協会製)によって行った。⁹⁹Tc の測定は ⁹⁰Sr(⁹⁰Y)と同様に低バックグラウンドベータ線測定装置(LBC)Aloka 社製 LBC-471-Q を用いた。⁹⁹Tc の計数効率、⁹⁹Tc 標準溶液(日本アイソトープ協会製)により求めた。プルトニウムおよびアメリシウムの測定は、²³⁸U と同様に SSD(EG & G ORTEC 社製 TU-017-450-100 有効面積 47mm²)を用いた。

なお、⁵⁹Ni、⁶³Ni、⁹⁰Sr および ²³⁸U については、3.2、3.3、3.4 で妥当性を確認した分離法に従い分析を行った。

3.5.4 結果と考察

Table 3.5 に材料の放射化により生成する核種である ⁵⁹Ni および ⁶³Ni の分析結果を示す。結果より、⁶⁰Co の放射能濃度に基づく予測値と近い値であることが示された。また、この予測値を用いることにより、必要十分な供試量を算出することが可能となり、相対誤差 10%以下で定量値を得ることができた(7. 参考資料-測定結果参照)。Table 3.6 に照射済燃料から生成する核種である、⁹⁰Sr、²³⁸Pu、²³⁹⁺²⁴⁰Pu、²⁴¹Am、²⁴⁴Cm、⁹⁹Tc および ²³⁸U の分析結果を示す。結果より、いずれの核種についても、その放射能濃度は、¹³⁷Cs の放射能濃度から算出した予測値と近い値であることが確認された。また、⁵⁹Ni および ⁶³Ni 同様に、相対誤差 10%以下で定量値を得ることができた。しかしながら、²³⁹⁺²⁴⁰Pu、²⁴¹Am、²⁴⁴Cm においては、組成比が 10 倍程度大きい ²³⁸Pu と同系統で分離精製を行うため、相対誤差が大きくなった。

以上の結果より、¹³⁷Cs および ⁶⁰Co の非破壊測定結果と、核種組成比(Table 2.3)とから、それぞれ分離精製に用いる供試量を算出することにより、定量値が得られることを実証した。

Fig. 3.7 ^3H と ^{14}C の分析(燃焼法)

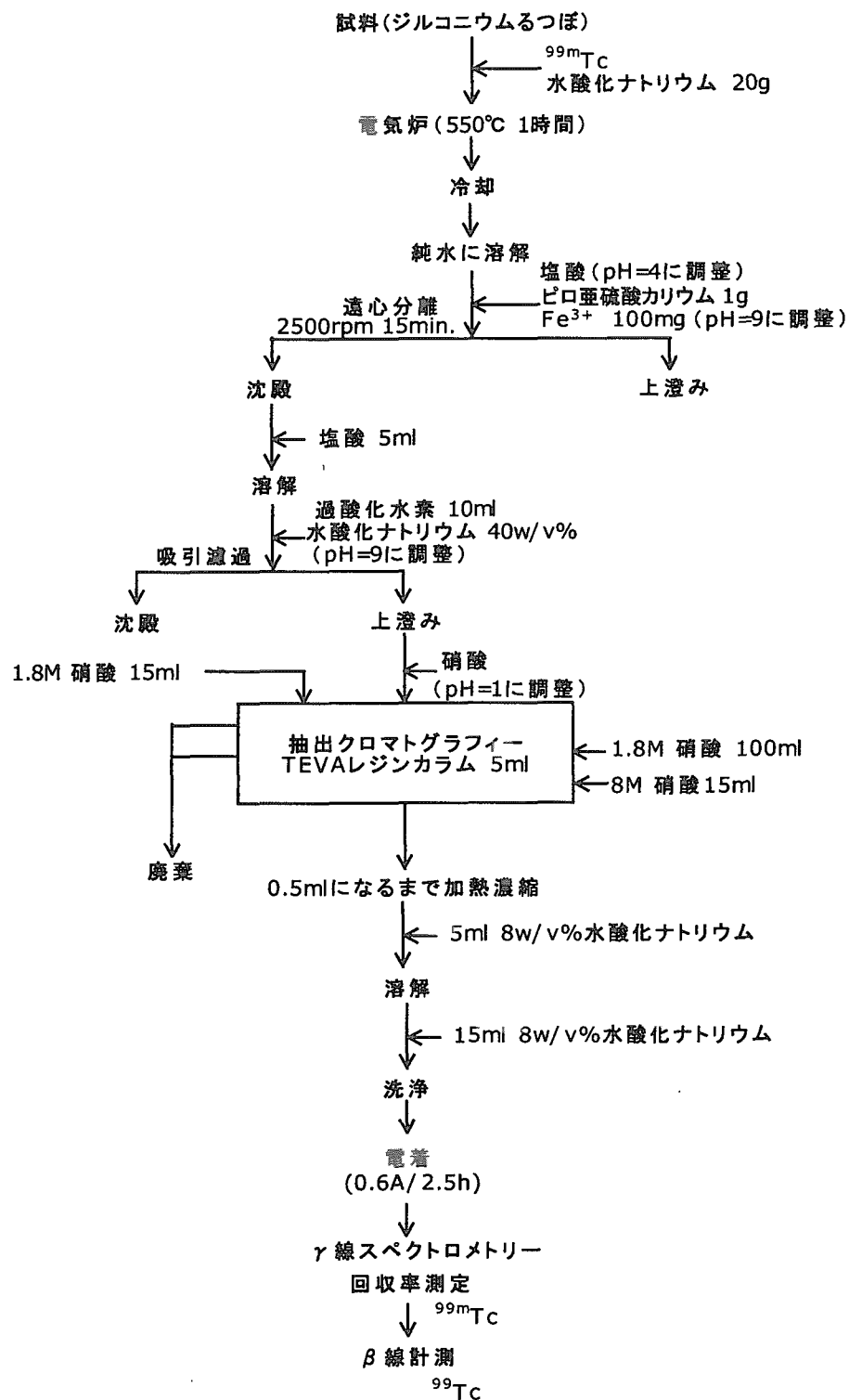


Fig. 3.8 ^{99}Tc の分離精製フロー

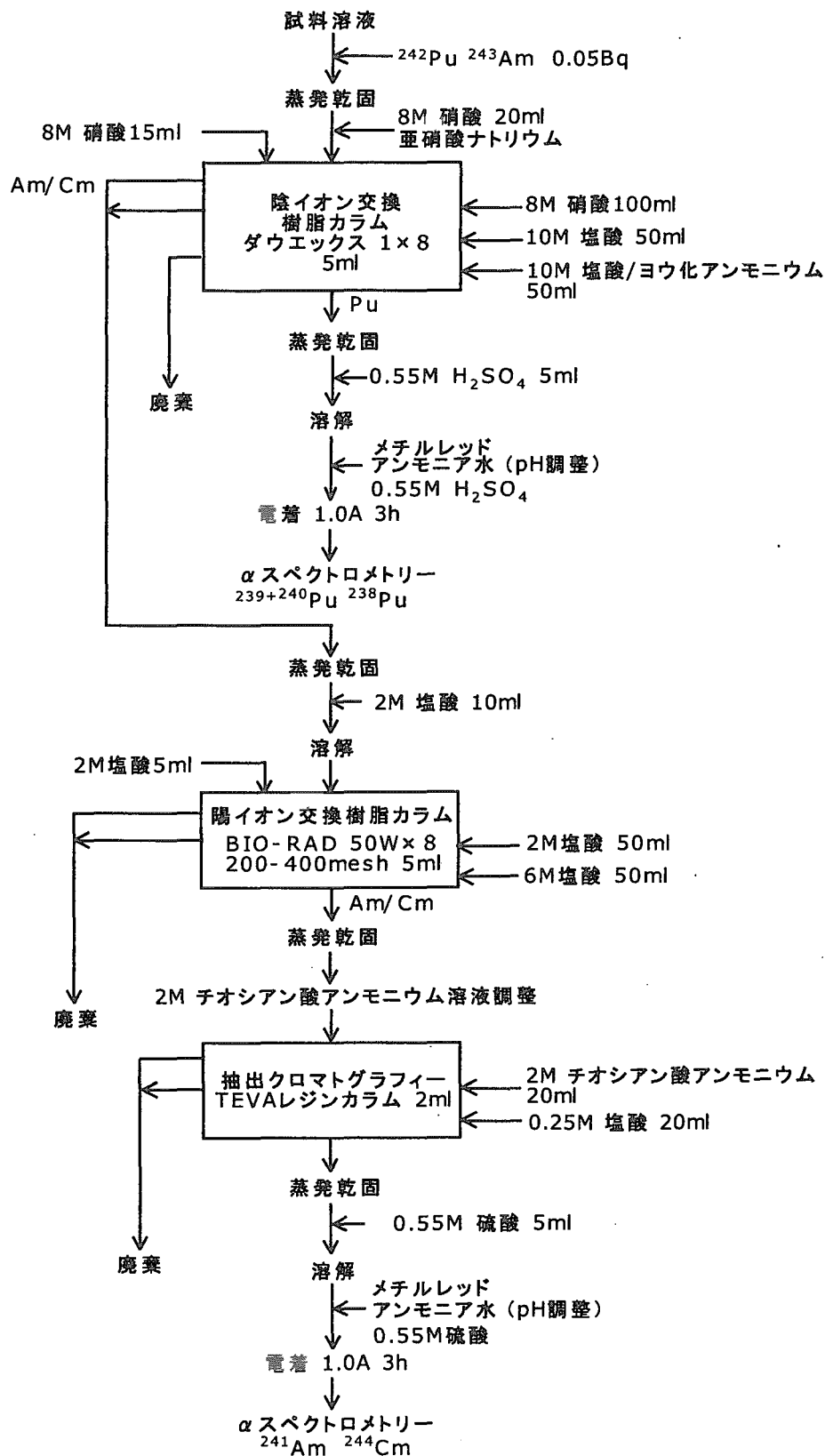


Fig. 3.9 プルトニウムおよびアメリシウムの分離精製フロー

Table 3.5 材料の放射化によって生成する核種

核種	^{60}Co 放射能 (Bq)	予測濃度 (Bq/cm ²)	定量限界放射能 (Bq)	測定濃度 (Bq/cm ²)	相対誤差 (%)
^{59}Ni -1	8.17E+03	6.32E-01	4.05E-02	2.74E-01	2.9E+00
^{59}Ni -2	2.60E+03	2.02E-01	4.05E-02	7.53E-02	5.6E+00
^{59}Ni -3	2.18E+03	1.69E-01	4.05E-02	1.26E-01	3.1E+00
^{63}Ni -1	8.17E+03	9.32E+01	1.31E-01	1.36E+02	1.5E+00
^{63}Ni -2	2.60E+03	2.97E+01	1.31E-01	3.55E+01	3.1E+00
^{63}Ni -3	2.18E+03	2.48E+01	1.31E-01	1.14E+02	1.7E+00

* ホットラボのスミヤ濾紙を試料とした

Table 3.6 照射済燃料から生成する核種

核種	^{137}Cs 放射能 (Bq)	予測濃度 (Bq/cm ²)	定量限界放射能 (Bq)	測定濃度 (Bq/cm ²)	相対誤差 (%)
^{90}Sr -1	1.88E+03	2.26E+02	1.19E-01	1.80E+02	9.1E-01
^{90}Sr -2	7.03E+01	8.46E+00	1.19E-01	1.05E+01	2.3E+00
^{90}Sr -3	3.44E+02	4.14E+01	1.19E-01	6.48E+01	9.7E-01
^{238}Pu -1	1.88E+03	8.05E+00	7.46E-03	1.32E+01	3.5E+00
^{238}Pu -2	7.03E+01	3.01E-01	7.46E-03	8.01E-01	5.6E+00
^{238}Pu -3	3.44E+02	1.47E+00	7.46E-03	4.80E-01	6.9E+00
$^{239+240}\text{Pu}$ -1	1.88E+03	4.98E+00	7.46E-03	3.47E+00	4.0E+00
$^{239+240}\text{Pu}$ -2	7.03E+01	1.86E-01	7.46E-03	2.60E-01	8.7E+00
$^{239+240}\text{Pu}$ -3	1.17E+02	3.09E-01	7.46E-03	2.29E-01	9.9E+00
^{241}Am -1	1.88E+03	8.82E-01	7.46E-03	2.62E+00	9.1E+00
^{241}Am -2	7.03E+01	3.30E-02	7.46E-03	2.28E-01	8.6E+00
^{241}Am -3	3.44E+02	1.61E-01	7.46E-03	6.77E-01	5.4E+00
^{244}Cm -1	1.88E+03	1.42E+01	7.46E-03	5.45E+00	8.4E+00
^{244}Cm -2	7.03E+01	5.31E-01	7.46E-03	4.32E-01	6.7E+00
^{244}Cm -3	3.44E+02	2.60E+00	7.46E-03	4.43E+00	3.8E+00
^{99}Tc -1	6.66E+02	1.76E-02	1.70E-02	3.41E-02	4.9E+00
^{99}Tc -2	6.66E+02	1.77E-02	1.70E-02	2.14E-02	6.6E+00
^{99}Tc -3	5.21E+02	1.38E-02	1.70E-02	5.26E-02	6.9E+00
^{238}U -1	1.96E+03	1.44E-03	8.29E-06	1.04E-03	1.1E-01
^{238}U -2	1.34E+03	9.80E-04	8.29E-06	1.75E-03	2.2E-01
^{238}U -3	1.03E+03	7.56E-04	8.29E-06	3.51E-04	5.2E-01

* ホットラボのスミヤ濾紙を試料とした

4. 総括と今後の展望

RI・研究所等廃棄物の分析法を新たに検討し、これに基づいて実廃棄物の放射能濃度測定を行い、その分析法の妥当性評価を行った。

4.1 ^{59}Ni - ^{63}Ni 、 ^{90}Sr および ^{238}U 分離法

発電所廃棄物の分析法では、組成比が小さいため定量が困難であった ^{59}Ni についても定量が可能となるように分析スキームを設定した。また、 ^{238}U 分析についての分離法を検討した。本スキームにおけるそれぞれの分離法について妥当性評価を行った結果、以下のことが明らかとなった。

- 1) 本分析スキームのニッケル分離法は、回収率が 95% 以上であり、試料溶液中のニッケルが十分に回収できることがわかった。また、 ^{59}Ni の X 線スペクトロメトリーにより、妨害核種からニッケルが分離精製されていることを確認した。
- 2) ストロンチウムの分離法において、回収率がいずれも 65% 以上であることから分離工程の妥当性を確認した。また、 β 線計数値の減衰が ^{90}Y の減衰曲線と一致することから、単一カラムによる分離法においても、 ^{90}Sr が十分に分離精製されることがわかった。
- 3) ウラン分離法に関しては、回収率は 91% 以上であり、十分にウランの回収できることがわかった。カラムから溶離した各フラクション溶液には、妨害スペクトルが検出されなかったことから、本方法によりウランが分離精製されていることを確認した。

4.2 定量分析のための供試量計算法

材料の放射化により生成する核種である ^{59}Ni および ^{63}Ni 、また照射済燃料から生成する核種である ^{90}Sr 、 ^{238}Pu 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm 、 ^{99}Tc および ^{238}U の分析結果は、 ^{60}Co あるいは ^{137}Cs の放射能濃度からの予測値と近い値であった。また、この予測値を用いて供試量を決定することにより、相対誤差 10% 以下で定量値を得ることができた。したがって、本分析スキームにより、核種組成比の検証に有効なデータを取得することが可能となった。

4.3 今後の展望

今後は本スキームにより対象核種の分析を進め、核種組成比の検証を行っていく予定である。また、RI・研究所等廃棄物処分における廃棄体確認のための放射能測定法への応用も期待できる。

謝辞

分析を進めるにあたり、分離測定法、データ解析法をご指導頂きました、森本隆夫氏(日本分析センター)、津吹忠弘氏(日本分析センター)、伴場滋氏(日本分析センター)、また分析試料を提供して下さいました、田中純利氏(研究炉部)、松本征一郎氏(ホット試験室)、飯田省三氏(ホット試験室)、神永敬久氏(ホット試験室)、金井塚文雄氏(ホット試験室)、秋野仁志氏(保健物理部)、星慎太郎氏(保健物理部)、星川俊介氏(保健物理部)に大変感謝いたします。(後で、査読者の名前も入れる)

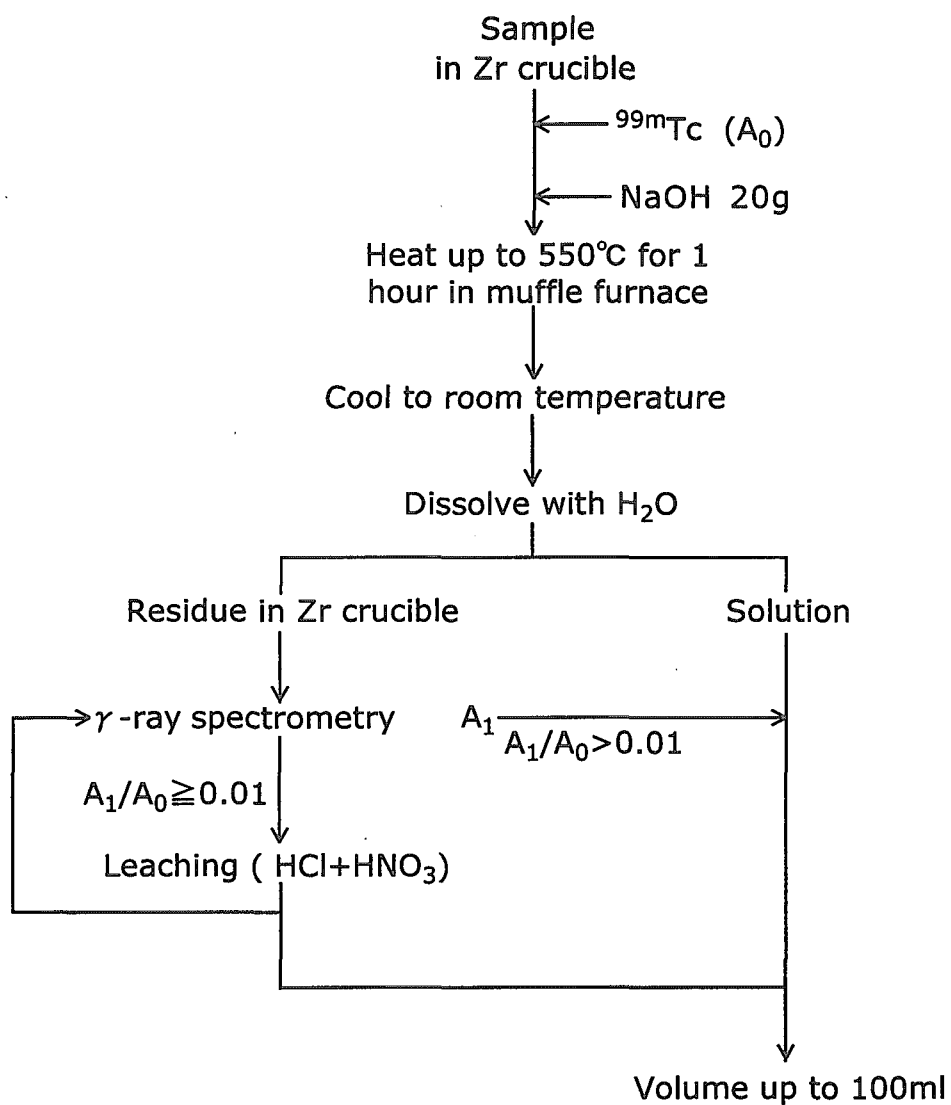
参考文献

- [1] 原子力委員会バックエンド対策専門部会, RI・研究所等廃棄物の処理処分の基本的な考え方について(1998)
- [2] 日本原子力研究所, 原研における低レベル放射性廃棄物長期対策(中間報告)(2002)
- [3] 坂井 章浩, 吉森 道郎, 大越 実 他, RI・研究所等廃棄物の浅地中処分施設の概念設計, JAERI-Tech, 2001-018 (2001)
- [4] 坂井 章浩, 吉森 道郎, 阿部 昌義, 研究所等廃棄物の埋設処分における安全評価上重要核種の選定(その1), JAERI-Tech, 2000-012 (2000)
- [5] 日本原燃株式会社, 六ヶ所低レベル放射性廃棄物埋設センター廃棄物埋設始事業変更許可申請書(1997)
- [6] 科学技術庁委託 財団法人 日本分析センター, アスファルト固化体分析法(1990)
- [7] 科学技術庁委託 財団法人 日本分析センター, 廃樹脂プラスチック固化体分析法(1991)
- [8] 科学技術庁委託 財団法人 日本分析センター, 金属雑固体分析法(1996)
- [9] 科学技術庁委託 財団法人 日本分析センター, 焼却灰、保温剤、コンクリート、液体フィルター、雑固体分析法(1998)
- [10] 科学技術庁委託 財団法人 日本分析センター, 溶融体分析法(1999)
- [11] 科学技術庁委託 財団法人 日本分析センター, 放射性核種分析手法信頼性実証試験成果報告書(1999)
- [12] E. P. Horwitz et al., Solvent Extraction & Ion Exchange, **10**, 313(1992)
- [13] 文部科学省, 放射能測定法シリーズ ウラン分析法(2002)
- [14] A. Morgenstern et al., Radiochim. Acta, **90**, 81 (2002)

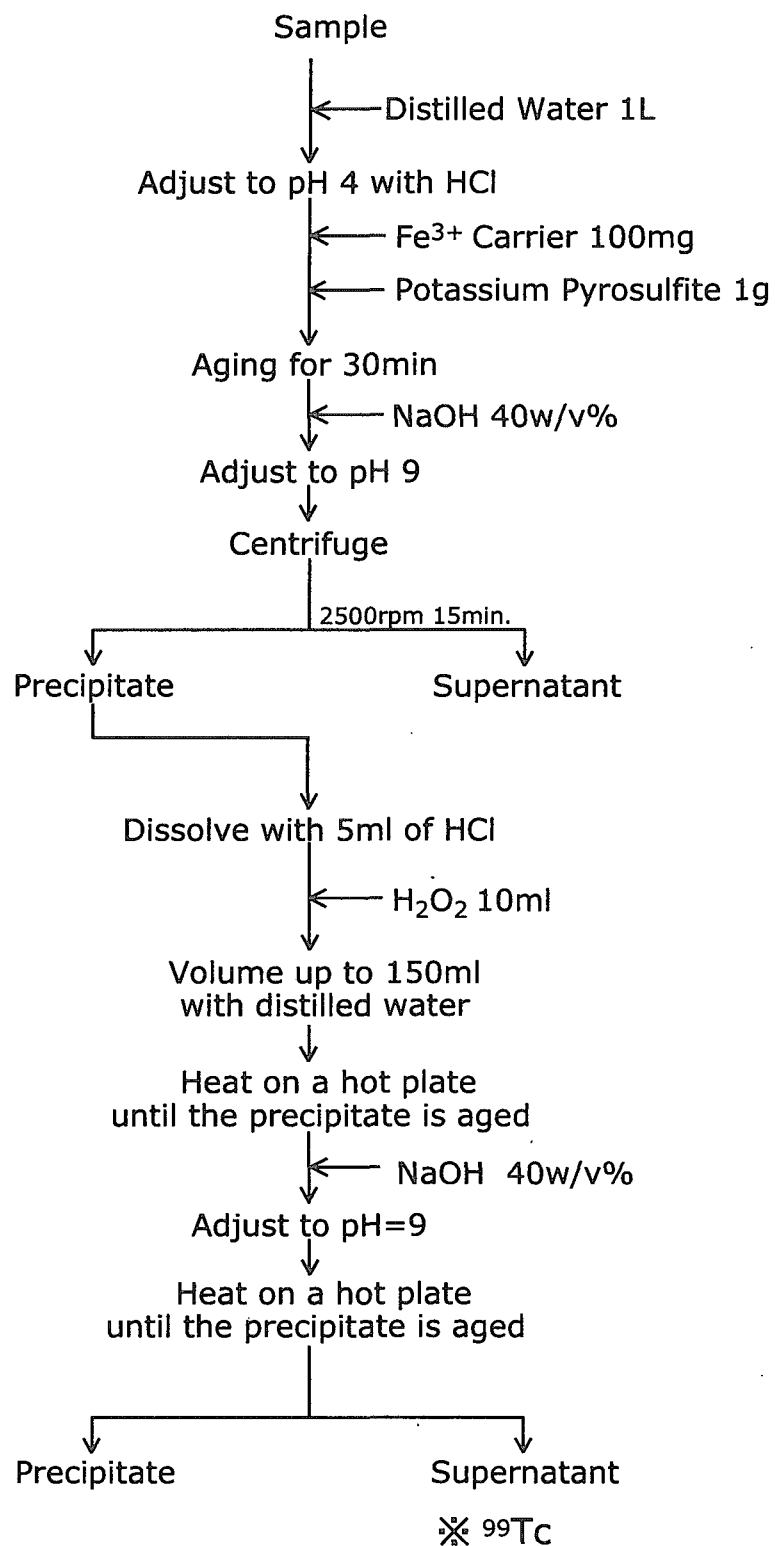
付録 参考資料

A,1 Separation Scheme of ^{99}Tc

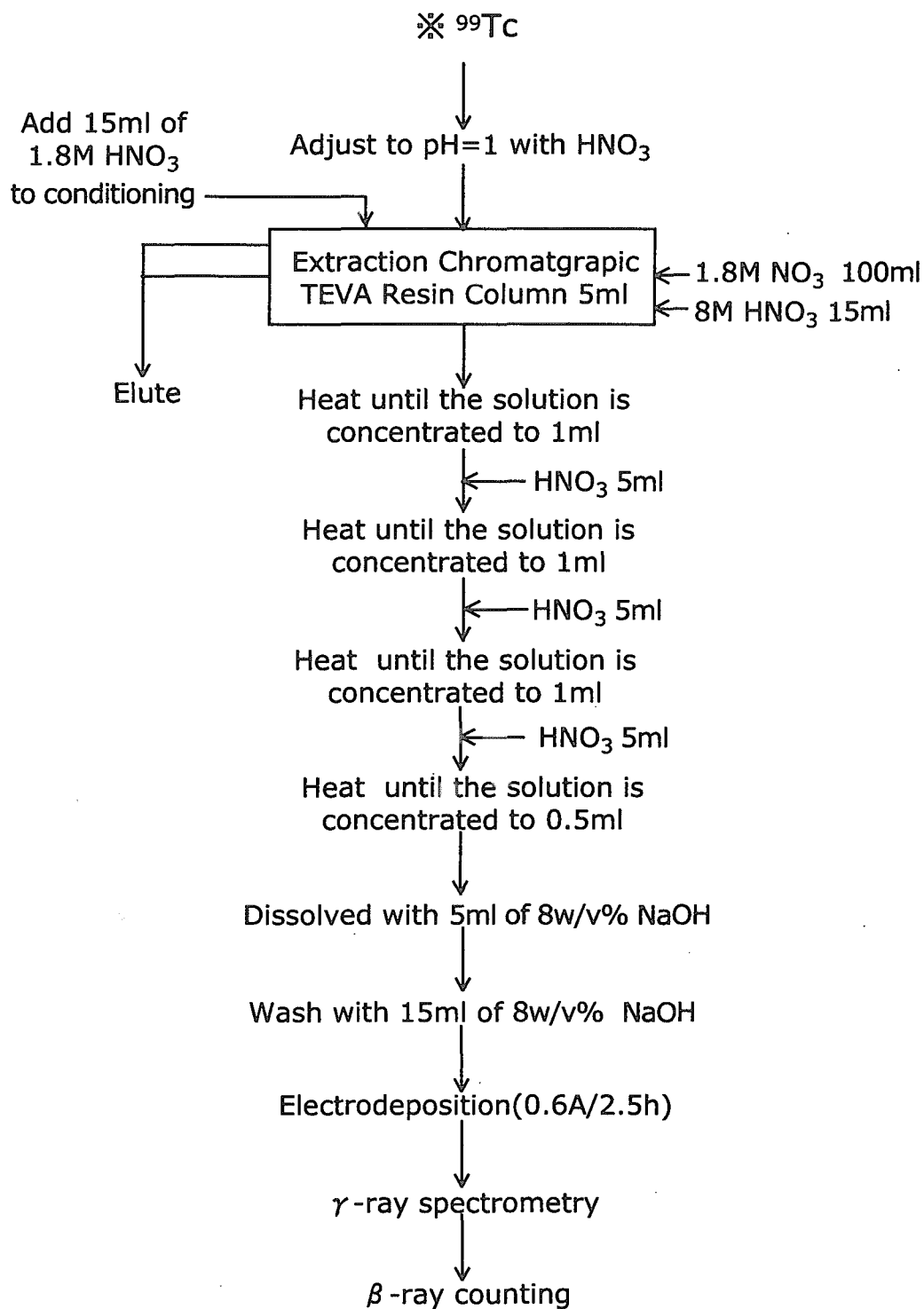
NaOH Fusion for ^{99}Tc Analysis



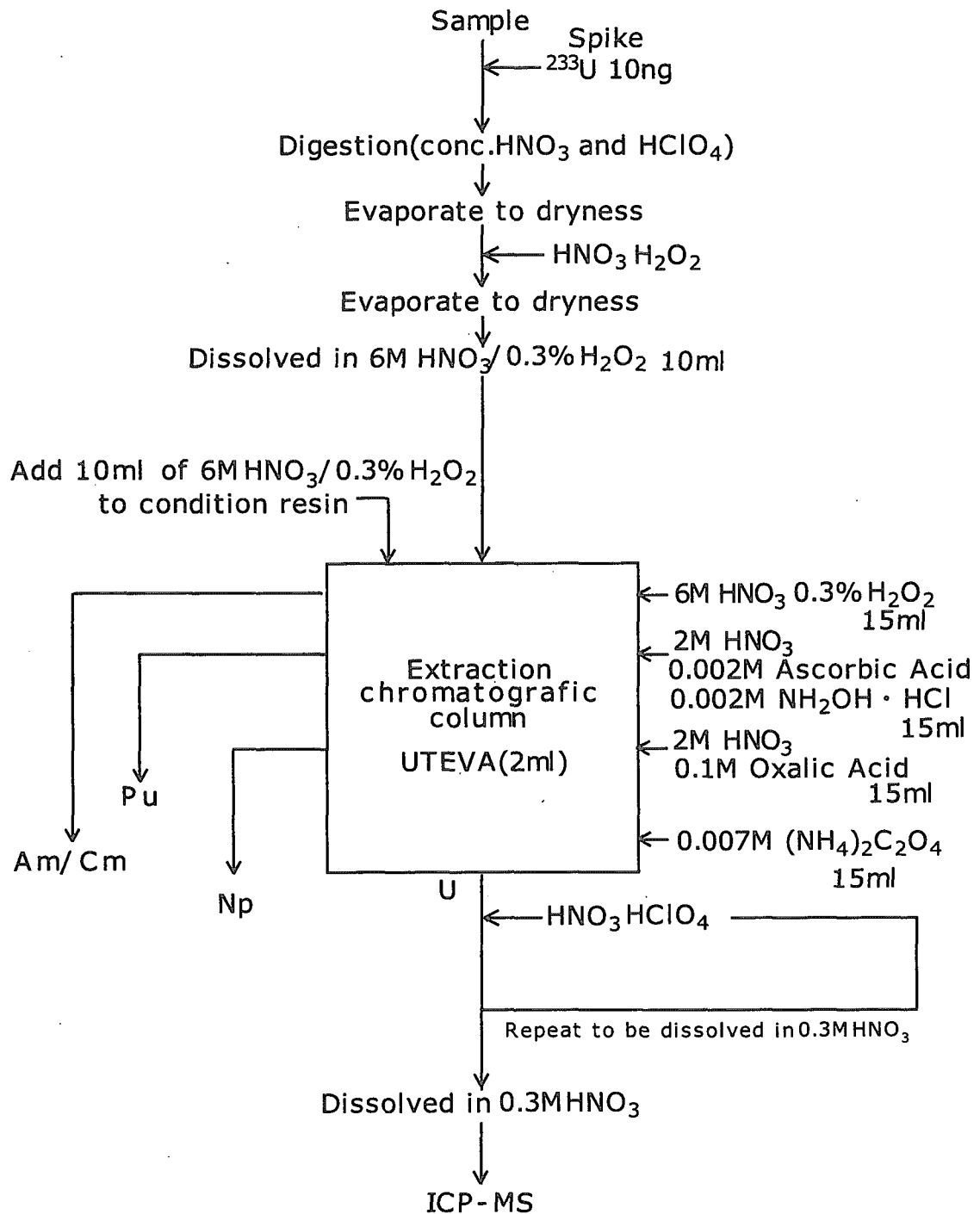
Separation Scheme of ^{99}Tc (1/2)



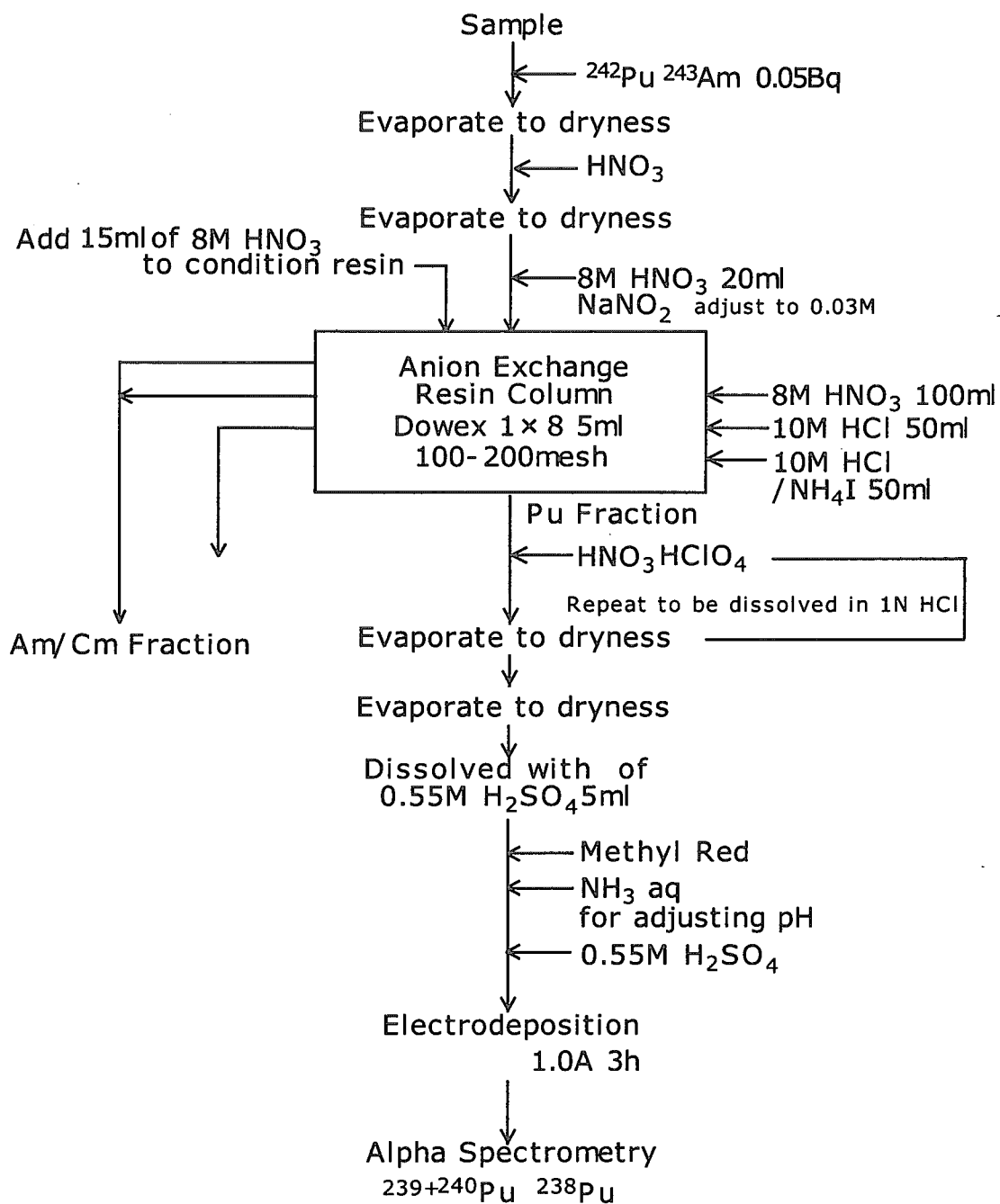
Separation Scheme of ^{99}Tc (2/2)



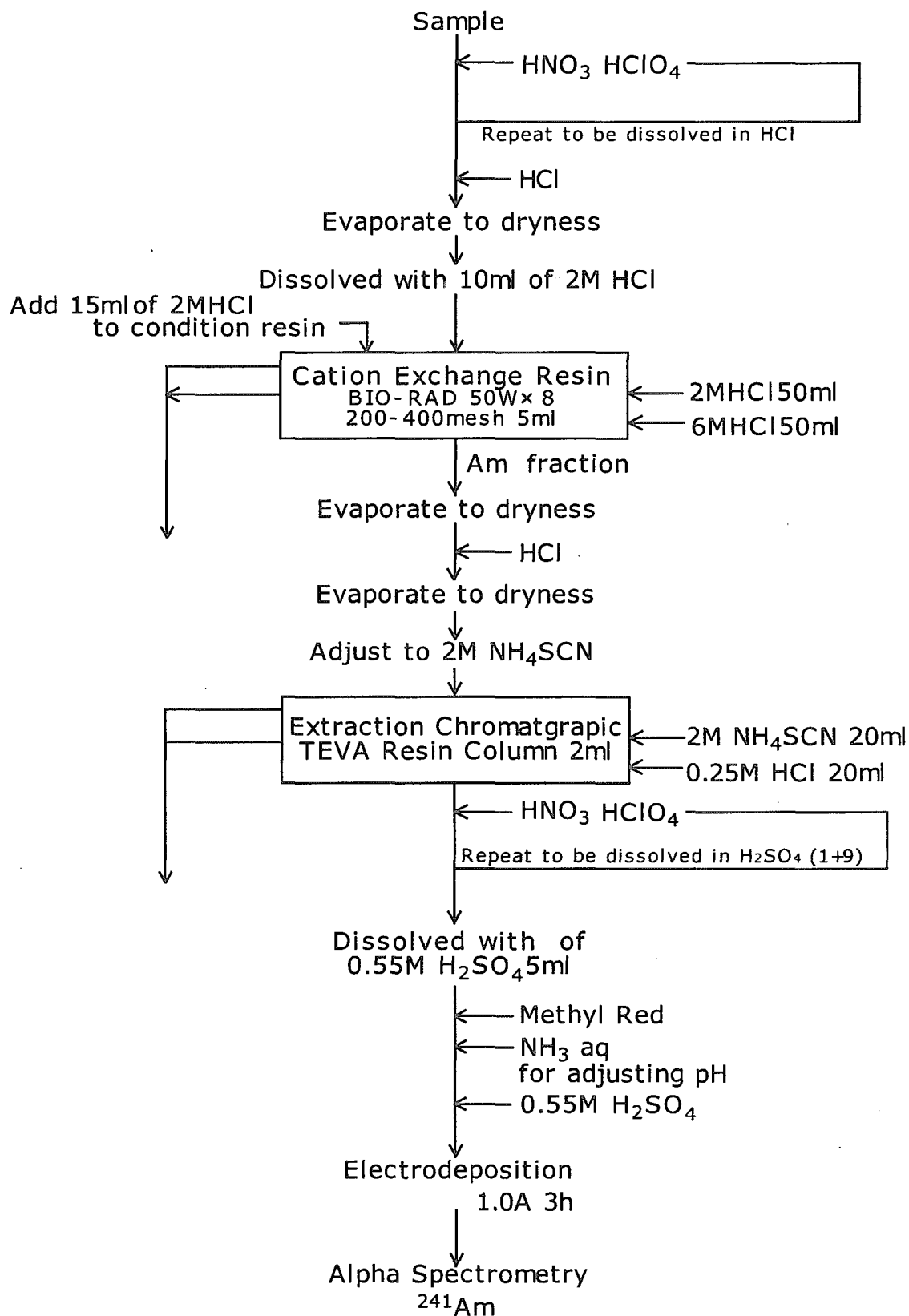
A,2 Separation Scheme for Uranium



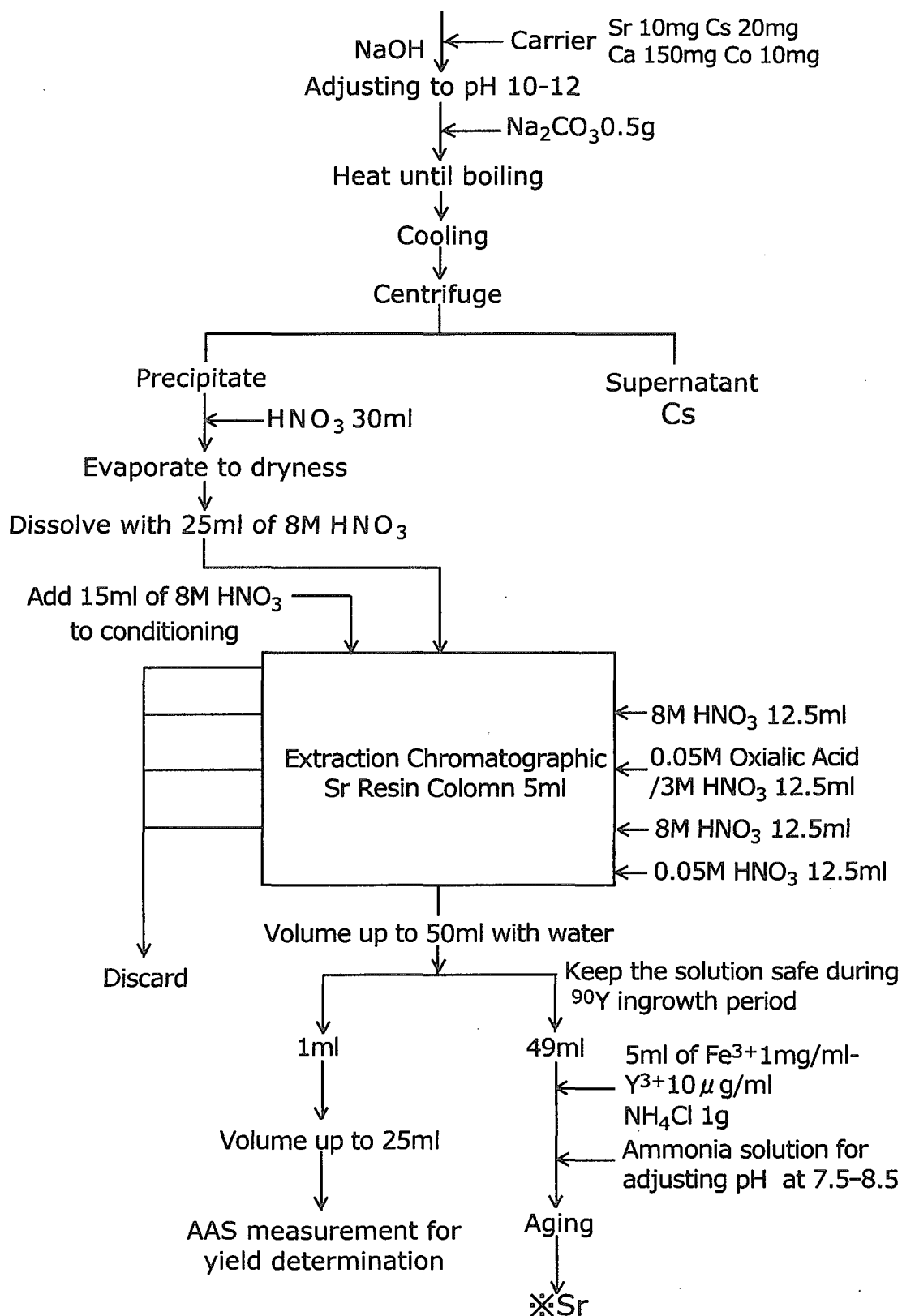
A,3 Separation Scheme of plutonium and Americium/Curium (1/2)



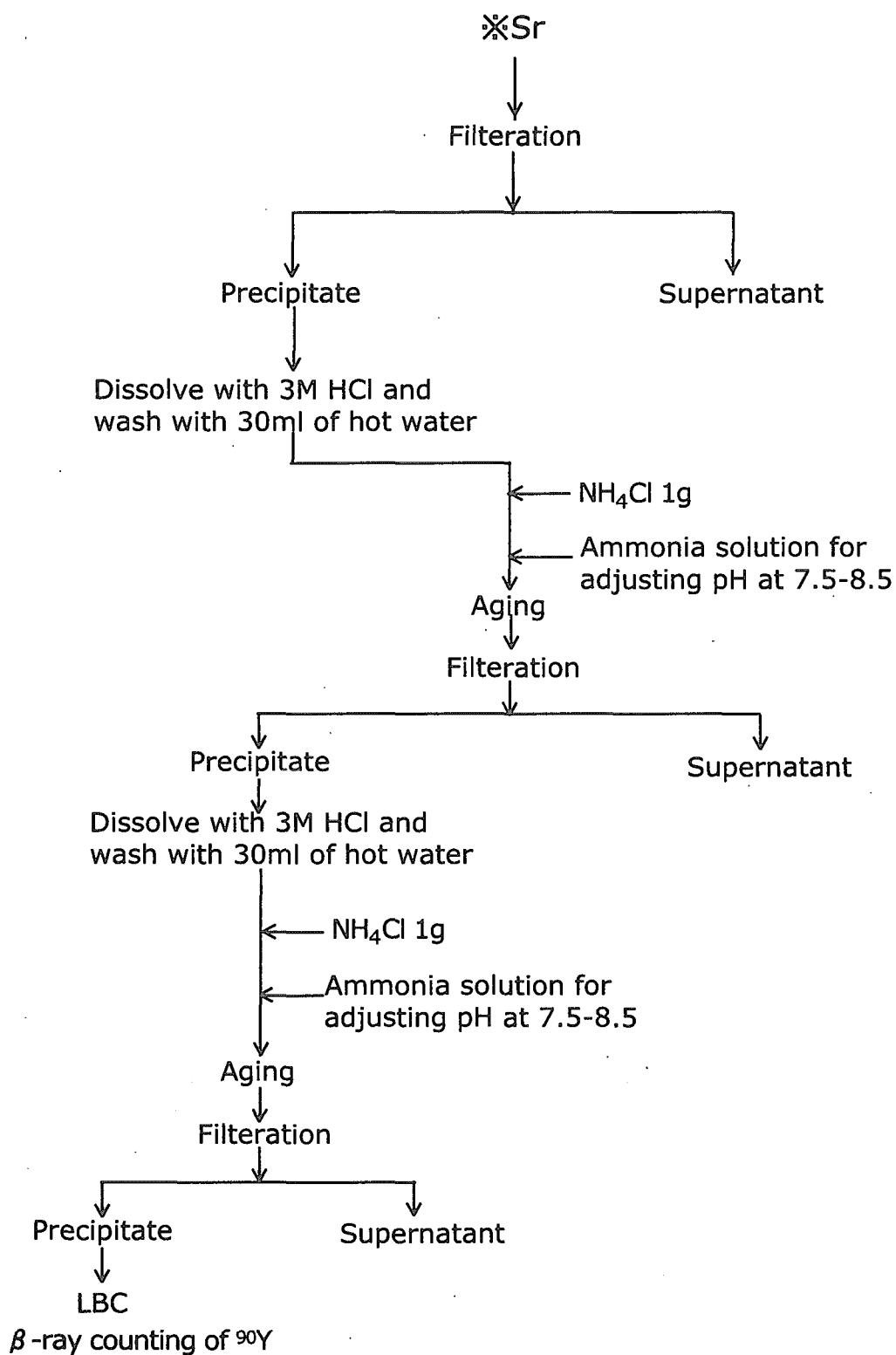
Separation Scheme of plutonium and Americium/Curium (2/ 2)



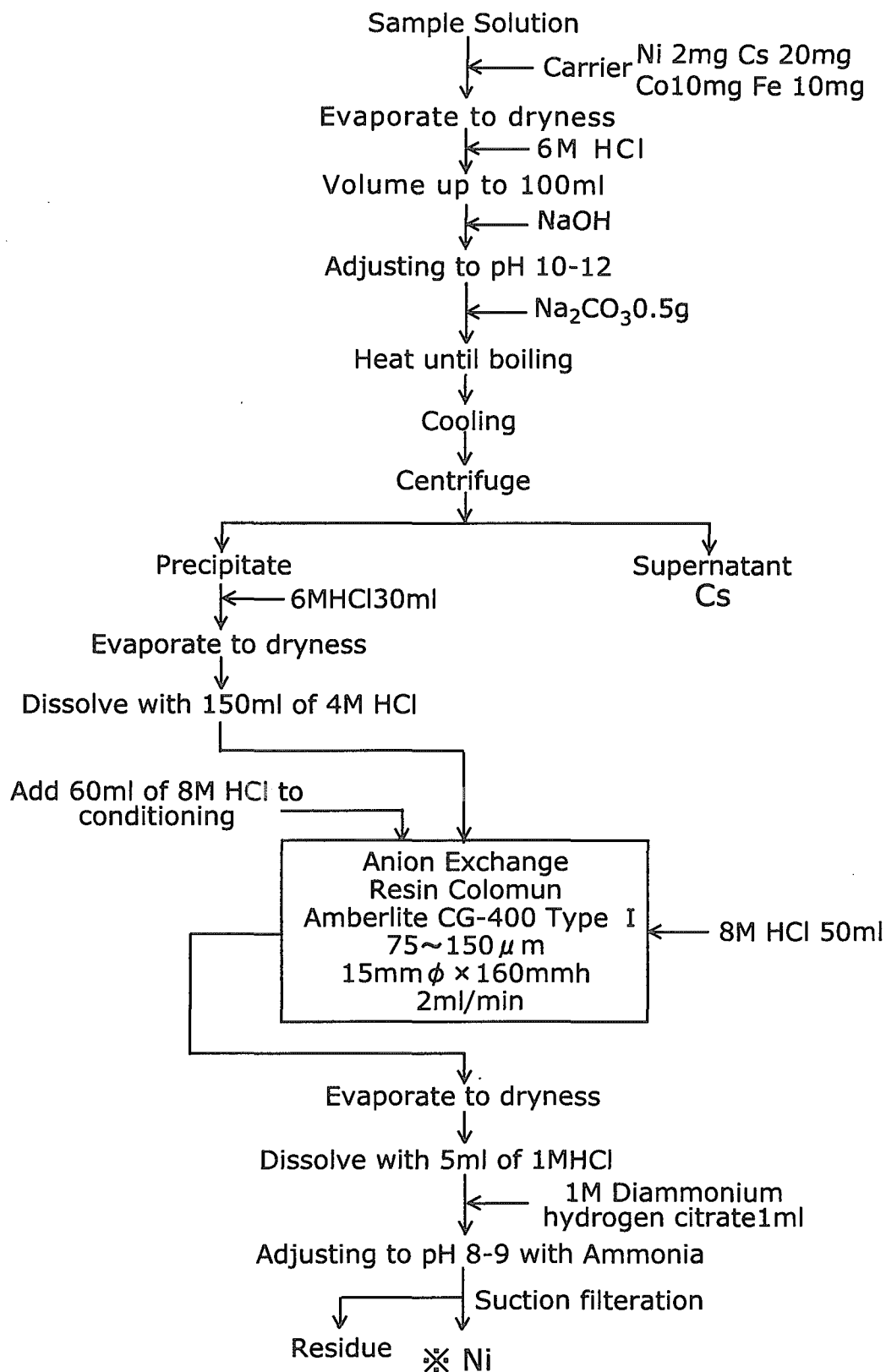
A,4 Separation Scheme of Strontium (1/2)



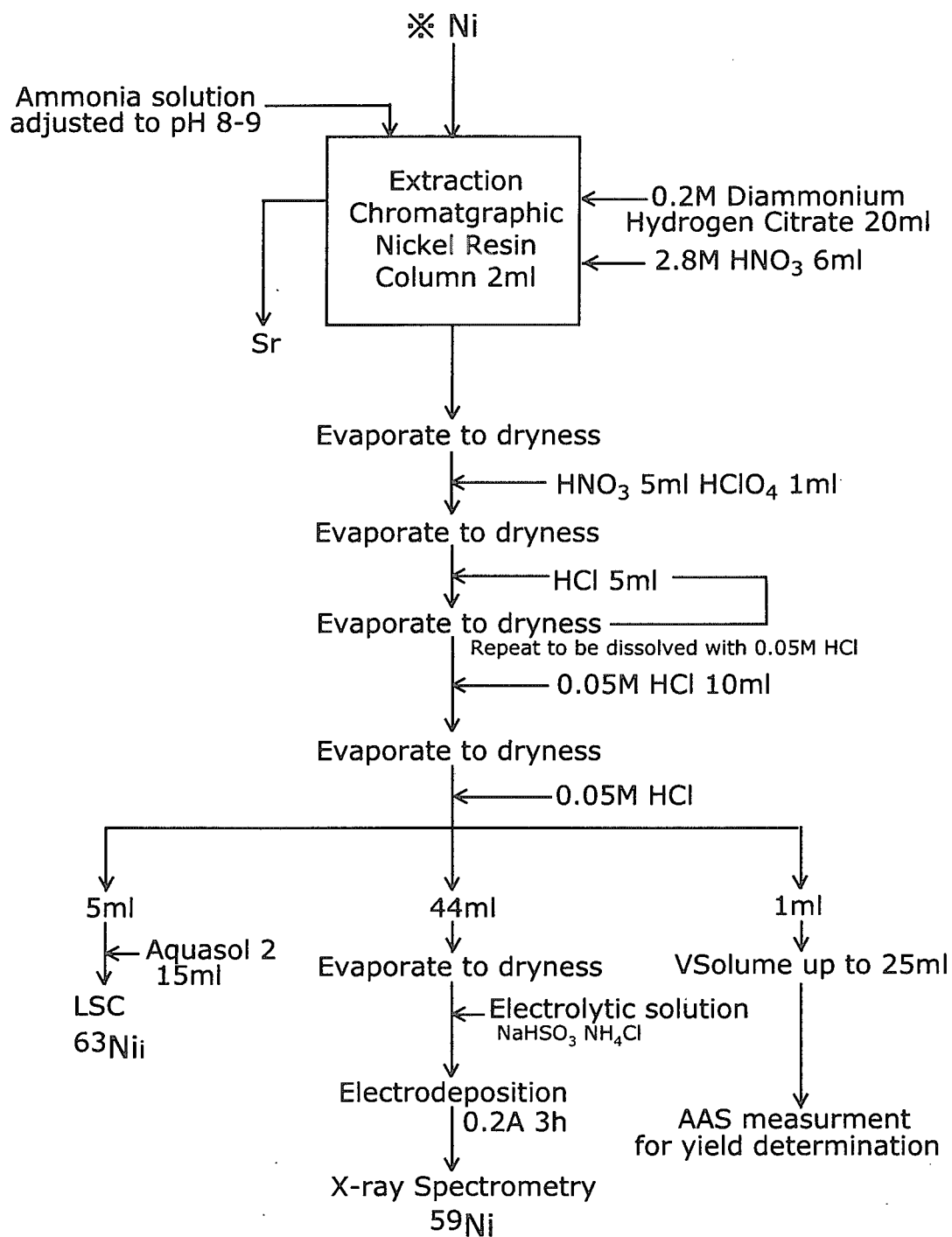
Separation Scheme of Strontium (2/2)



A,5 Separation Scheme of Nickel (1/2)



Separation Scheme of Nickel (2/2)



A,6 測定結果(1/5) 材料の放射化によって生成する核種

核種	⁶⁰ Co(液体試料は濃度)	⁶⁰ Coに対する核種組成比	予測値 (Bq)	予測濃度 (Bq/ml, Bq/g, Bq/cm ²)	酸分解後試料溶液 100ml定容 (Bq/ml)	分析供試量 酸分解溶液 100ml中 分取量(ml)	予測分析放射能 (Bq)	定量限界放射能 (Bq)	定量値 (Bq/ml, Bq/g, Bq/cm ²)	相対誤差 (%)	予測濃度 / 定量値	試料の性状 S:スミヤ L:廃液 R:樹脂
⁵⁹ Ni	8.17E+03	3.8E-04	3.10E+00	6.32E-01	3.10E-02	10	2.73E-01	4.05E-02	2.74E-01	2.9	0.43	S
	2.60E+03	3.8E-04	9.89E-01	2.02E-01	9.89E-03	10	8.71E-02	4.05E-02	7.53E-02	5.6	0.37	S
	2.18E+03	3.8E-04	8.27E-01	1.69E-01	8.27E-03	10	7.28E-02	4.05E-02	1.26E-01	3.1	0.75	S
	2.37E+02	3.8E-04	9.01E-02	1.84E-02	9.01E-04	10	7.93E-03	4.05E-02	6.49E-03	3.5	0.35	S
	2.53E+03	3.8E-04	9.60E-01	1.92E-01	9.60E-03	30	2.53E-01	4.05E-02	5.97E-02	3.9	0.31	R
	1.86E+03	3.8E-04	7.06E-01	1.41E-01	7.06E-03	30	1.86E-01	4.05E-02	4.46E-02	4.2	0.32	R
	8.17E+03	5.6E-02	4.57E+02	9.32E+01	4.57E+00	10	4.57E+00	1.31E-01	1.36E+02	1.5	1.46	S
⁶³ Ni	2.60E+03	5.6E-02	1.46E+02	2.97E+01	1.46E+00	10	1.46E+00	1.31E-01	3.55E+01	3.1	1.19	S
	2.18E+03	5.6E-02	1.22E+02	2.48E+01	1.22E+00	10	1.22E+00	1.31E-01	1.14E+02	1.7	4.61	S
	2.37E+02	5.6E-02	1.33E+01	2.71E+00	1.33E-01	10	1.33E-01	1.31E-01	1.57E+01	5.3	5.81	S
	8.84E-01	5.6E-02	4.95E-02	1.01E-02	4.95E-04	30	1.49E-03	1.31E-01	1.70E+00	2.7	168.22	S
	3.27E+00	5.6E-02	1.83E-01	3.73E-02	1.83E-03	30	5.49E-03	1.31E-01	5.76E-01	5.3	15.43	S
	1.55E+01	5.6E-02	8.69E-01	1.77E-01	8.69E-03	16	1.39E-01	1.31E-01	1.33E+00	0.2	7.50	S
	1.06E+02	5.6E-02	5.93E+00	1.21E+00	5.93E-02	10	5.93E-01	1.31E-01	6.00E+00	0.0	4.97	S
	1.58E+02	5.6E-02	8.83E+00	1.80E+00	8.83E-02	10	8.83E-01	1.31E-01	4.37E-01	0.3	0.24	S
	9.08E-03	5.6E-02	5.09E-04	5.09E-04	5.09E-04	300	1.53E-01	1.31E-01	2.49E-04	44.7	0.49	L
	2.53E+03	5.6E-02	1.41E+02	2.83E+01	1.41E+00	30	4.24E+01	1.31E-01	2.83E+01	2.1	1.00	R
	4.61E-03	5.6E-02	2.58E-04	2.58E-04	2.58E-04	1473	3.80E-01	1.31E-01	5.49E-04	5.6	2.13	L
	1.86E+03	5.6E-02	1.04E+02	2.08E+01	1.04E+00	30	3.12E+01	1.31E-01	2.8E+01	2.0	1.36	R

測定結果(2/5) 照射済燃料から生成する核種 その1

核種	^{137}Cs (液体試料は濃度)	^{137}Cs に対する核種組成比	予測値 (Bq)	予測濃度 (Bq/ml, Bq/g, Bq/cm ²)	酸分解後試料溶液 100ml定容 (Bq/ml)	分析供試量 酸分解溶液 100ml中 分取量(ml)	予測分析放射能 (Bq)	定量限界放射能 (Bq)	定量値(Bq/ml, Bq/g, Bq/cm ²)	相対誤差 (%)	予測濃度/定量値	試料の性状 S:スミヤ L:廃液 R:樹脂
^{90}Sr	1.88E+03	5.9E-01	1.11E+03	2.26E+02	1.11E+01	10.00	1.11E+02	1.19E-01	1.80E+02	0.9	0.80	S
	7.035E+01	5.9E-01	4.15E+01	8.46E+00	4.15E-01	10.00	4.15E+00	1.19E-01	1.05E+01	2.3	1.24	S
	3.443E+02	5.9E-01	2.03E+02	4.14E+01	2.03E+00	10.00	2.03E+01	1.19E-01	6.48E+01	1.0	1.57	S
	1.168E+02	5.9E-01	6.89E+01	1.40E+01	6.89E-01	10.00	6.89E+00	1.19E-01	5.64E+00	3.5	0.40	S
	1.36E+00	5.9E-01	8.00E-01	1.63E-01	8.00E-03	40.00	3.20E-01	1.19E-01	9.48E-02	7.8	0.58	S
	1.781E+02	5.9E-01	1.05E+02	2.14E+01	1.05E+00	60.00	6.30E+01	1.19E-01	6.19E+00	0.9	0.29	S
	7.993E+02	5.9E-01	4.72E+02	9.61E+01	4.72E+00	30.00	1.41E+02	1.19E-01	3.51E+01	0.7	0.36	S
	4.467E+01	5.9E-01	2.64E+01	5.27E+00	2.64E-01	30.00	7.91E+00	1.19E-01	6.02E+00	2.2	1.14	R
	3.228E+01	5.9E-01	1.90E+01	3.81E+00	1.90E-01	10.00	1.90E+00	1.19E-01	3.92E+00	2.8	1.03	R
	4.059E+02	5.9E-01	2.39E+02	4.88E+01	2.39E+02	1.00	2.39E+02	1.19E-01	1.06E+01	0.0	0.22	S
	1.060E+00	5.9E-01	6.26E-01	1.28E-01	6.26E-01	10.00	6.26E+00	1.19E-01	8.96E-02	4.9	0.70	S
	1.3E+01	5.9E-01	7.54E+00	7.54E+00	7.54E+00	0.50	3.77E+00	1.19E-01	5.13E+00	2.1	0.68	L
	1.613E+03	5.9E-01	9.52E+02	1.94E+02	9.52E+00	0.50	4.76E+00	1.19E-01	4.07E+01	0.0	0.21	S
	9.0E+03	5.9E-01	5.30E+03	1.08E+03	5.30E+01	0.50	2.65E+01	1.19E-01	5.96E+02	1.6	0.55	S
	6.0E+03	5.9E-01	3.54E+03	7.22E+02	3.54E+01	0.50	1.77E+01	1.19E-01	5.18E+01	1.0	0.07	S

測定結果(3/5) 照射済燃料から生成する核種 その2

核種	137Cs(液体 試料は濃度)	137Csに対する 核種組成比	予測値 (Bq)	予測濃度 (Bq/ml, Bq/g, Bq/cm ²)	酸分解後 試料溶液 100ml定容	分析供試量 酸分解溶液 100ml中 分取量(ml)	予測分析 放射能 (Bq)	定量限界 放射能 (Bq)	定量値(Bq/ml, Bq/g, Bq/cm ²)	相対誤差 (%)	予測濃度 /定量値	試料の性状 S:スラ L:腐液 R:樹脂
²³⁸ Pu	1.881E+03	2.1E-02	3.95E+01	8.05E+00	3.95E-01	1.00	1.98E-01	7.46E-03	1.32E+01	3.5	1.64	S
	7.035E+01	2.1E-02	1.48E+00	3.01E-01	1.48E-02	1.00	7.39E-03	7.46E-03	8.01E-01	5.6	2.66	S
	3.443E+02	2.1E-02	7.23E+00	1.47E+00	7.23E-02	1.00	3.62E-02	7.46E-03	4.80E-01	6.9	0.33	S
	1.168E+02	2.1E-02	2.45E+00	5.00E-01	2.45E-02	1.00	1.23E-02	7.46E-03	6.52E-01	6.5	1.30	S
	1.357E+00	2.1E-02	2.85E-02	5.81E-03	2.85E-04	10.00	1.42E-03	7.46E-03	3.49E-02	8.9	6.00	S
	1.781E+02	2.1E-02	3.74E+00	7.62E-01	3.74E-02	1.00	1.87E-02	7.46E-03	1.78E+00	5.7	2.33	S
	7.993E+02	2.1E-02	1.68E+01	3.42E+00	1.68E-01	1.00	8.39E-02	7.46E-03	6.14E+00	4.9	1.79	S
	4.467E+01	2.1E-02	9.38E-01	1.88E-01	9.38E-03	1.00	4.69E-03	7.46E-03	9.21E-02	9.5	0.49	R
	3.228E+01	2.1E-02	6.78E-01	1.36E-01	6.78E-03	10.00	3.39E-02	7.46E-03	9.78E-02	5.3	0.72	R
	4.059E+02	2.1E-02	8.52E+00	1.74E+00	8.52E+00	0.50	2.13E+00	7.46E-03	7.26E-02	4.6	0.04	S
	1.060E+00	2.1E-02	2.23E-02	4.54E-03	2.23E-02	10.00	1.11E-01	7.46E-03	1.13E-03	4.3	0.25	S
	1.278E+01	2.1E-02	2.68E-01	5.47E-02	2.68E-01	0.50	6.71E-02	7.46E-03	4.89E-02	8.1	0.89	S
	1.613E+03	2.1E-02	3.39E+01	6.90E+00	3.39E-01	0.50	8.47E-02	7.46E-03	6.47E+00	6.0	0.94	S
	8.989E+03	2.1E-02	1.89E+02	3.85E+01	1.89E+00	0.50	4.72E-01	7.46E-03	5.72E+01	9.3	1.49	S
	6.008E+03	2.1E-02	1.26E+02	2.57E+01	1.26E+00	0.20	1.26E-01	7.46E-03	9.35E+02	8.6	36.36	S
	1.881E+03	1.3E-02	2.45E+01	4.98E+00	2.45E-01	1.00	1.22E-01	7.46E-03	3.47E+00	4.0	0.70	S
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	7.035E+01	1.3E-02	9.15E-01	1.86E-01	9.15E-03	1.00	4.57E-03	7.46E-03	2.60E-01	8.7	1.40	S
	3.443E+02	1.3E-02	4.48E+00	9.12E-01	4.48E-02	1.00	2.24E-02	7.46E-03	1.55E-01	11.2	0.17	S
	1.168E+02	1.3E-02	1.52E+00	3.09E-01	1.52E-02	1.00	7.59E-03	7.46E-03	2.29E-01	9.9	0.74	S
	1.357E+00	1.3E-02	1.76E-02	3.59E-03	1.76E-04	10.00	8.82E-04	7.46E-03	6.38E-01	4.5	177.41	S
	1.781E+02	1.3E-02	2.32E+00	4.72E-01	2.32E-02	1.00	1.16E-02	7.46E-03	1.12E+00	6.4	2.38	S
	7.993E+02	1.3E-02	1.04E+01	2.12E+00	1.04E-01	1.00	5.20E-02	7.46E-03	1.31E+00	6.1	0.62	S
	4.467E+01	1.3E-02	5.81E-01	1.16E-01	5.81E-03	1.00	2.90E-03	7.46E-03	2.76E-01	5.9	2.38	R
	3.228E+01	1.3E-02	4.20E-01	8.39E-02	4.20E-03	10.00	2.10E-02	7.46E-03	1.07E-01	5.2	1.27	R
	4.059E+02	1.3E-02	5.28E+00	1.08E+00	5.28E-02	0.50	1.32E-02	7.46E-03	2.04E-02	9.4	0.02	S
	1.060E+00	1.3E-02	1.38E-02	2.81E-03	1.38E-04	10.00	6.89E-04	7.46E-03	2.22E-04	8.8	0.08	S
	1.278E+01	1.3E-02	1.66E-01	3.39E-02	1.66E-03	0.50	4.15E-04	7.46E-03	8.94E-03	15.7	0.26	S
	1.613E+03	1.3E-02	2.10E+01	4.27E+00	2.10E-01	0.50	5.24E-02	7.46E-03	1.39E+00	8.7	0.33	S
	8.989E+03	1.3E-02	1.17E+02	2.38E+01	1.17E+00	0.50	2.92E-01	7.46E-03	8.34E+00	10.0	0.35	S
	6.008E+03	1.3E-02	7.81E+01	1.59E+01	7.81E-01	0.20	7.81E-02	7.46E-03	1.08E+02	9.7	6.80	S

測定結果(4/5) 照射済燃料から生成する核種 その3

核種	137Cs(液体 試料は濃度)	¹³⁷ Csに対する 核種組成比	予測値 (Bq)	予測濃度 (Bq/ml, Bq/g, Bq/cm ²)	酸分解後 試料溶液 100ml定容 (Bq/ml)	分析供試量 酸分解溶液 100ml中 分取量(ml)	予測分析 放射能 (Bq)	定量限界 放射能 (Bq)	定量値(Bq/ml, Bq/g, Bq/cm ²)	相対誤差 (%)	予測濃度 /定量値	試料の性状 S:スミヤ L:廃液 R:樹脂
²⁴¹ Am	1.881E+03	2.3E-03	4.33E+00	8.82E-01	4.33E-02	1.00	4.33E-02	7.46E-03	2.62E+00	9.1	2.97	S
	7.035E+01	2.3E-03	1.62E-01	3.30E-02	1.62E-03	1.00	1.62E-03	7.46E-03	2.28E-01	8.6	6.90	S
	3.443E+02	2.3E-03	7.92E-01	1.61E-01	7.92E-03	1.00	7.92E-03	7.46E-03	6.77E-01	5.4	4.19	S
	1.168E+02	2.3E-03	2.69E-01	5.47E-02	2.69E-03	1.00	2.69E-03	7.46E-03	1.59E-01	5.8	2.91	S
	1.357E+00	2.3E-03	3.12E-03	6.36E-04	3.12E-05	10.00	3.12E-04	7.46E-03	6.47E-03	8.8	10.17	S
	1.781E+02	2.3E-03	4.10E-01	8.35E-02	4.10E-03	1.00	4.10E-03	7.46E-03	2.86E-01	8.1	3.43	S
	7.993E+02	2.3E-03	1.84E+00	3.75E-01	1.84E-02	1.00	1.84E-02	7.46E-03	1.66E+00	4.9	4.44	S
	4.467E+01	2.3E-03	1.03E-01	2.05E-02	1.03E-03	1.00	1.03E-03	7.46E-03	5.72E-02	7.7	2.78	R
	3.228E+01	2.3E-03	7.42E-02	1.48E-02	7.42E-04	10.00	7.42E-03	7.46E-03	5.17E-02	5.5	3.48	R
	4.059E+02	2.3E-03	9.34E-01	1.90E-01	9.34E-03	0.50	4.67E-03	7.46E-03	3.29E-02	8.2	0.17	S
	1.060E+00	2.3E-03	2.44E-03	4.97E-04	2.44E-05	10.00	2.44E-04	7.46E-03	1.99E-03	7.4	4.00	S
	1.278E+01	2.3E-03	2.94E-02	5.99E-03	2.94E-04	0.50	1.47E-04	7.46E-03	6.60E-02	0.1	11.02	S
	1.613E+03	2.3E-03	3.71E+00	7.56E-01	3.71E-02	0.50	1.86E-02	7.46E-03	2.25E+00	0.1	2.98	S
	8.989E+03	2.3E-03	2.07E+01	4.21E+00	2.07E-01	0.50	1.03E-01	7.46E-03	5.17E+00	0.1	1.23	S
	6.008E+03	2.3E-03	1.38E+01	2.82E+00	1.38E-01	0.20	2.76E-02	7.46E-03	1.19E+01	0.2	4.24	S
	1.881E+03	3.7E-02	6.96E+01	1.42E+01	6.96E-01	1.00	6.96E-01	7.46E-03	5.45E+00	8.4	0.38	S
²⁴⁴ Cm	7.035E+01	3.7E-02	2.60E+00	5.31E-01	2.60E-02	1.00	2.60E-02	7.46E-03	4.32E-01	6.7	0.81	S
	3.443E+02	3.7E-02	1.27E+01	2.60E+00	1.27E-01	1.00	1.27E-01	7.46E-03	4.43E+00	3.8	1.71	S
	1.168E+02	3.7E-02	4.32E+00	8.81E-01	4.32E-02	1.00	4.32E-02	7.46E-03	2.88E-01	4.6	0.33	S
	1.357E+00	3.7E-02	5.02E-02	1.02E-02	5.02E-04	10.00	5.02E-03	7.46E-03	1.64E-02	5.7	1.61	S
	1.781E+02	3.7E-02	6.59E+00	1.34E+00	6.59E-02	1.00	6.59E-02	7.46E-03	7.33E-01	5.8	0.55	S
	7.993E+02	3.7E-02	2.96E+01	6.03E+00	2.96E-01	1.00	2.96E-01	7.46E-03	5.11E+00	4.2	0.85	S
	4.467E+01	3.7E-02	1.65E+00	3.31E-01	1.65E-02	1.00	1.65E-02	7.46E-03	3.11E-01	3.6	0.94	R
	3.228E+01	3.7E-02	1.19E+00	2.39E-01	1.19E-02	10.00	1.19E-01	7.46E-03	3.76E-01	3.6	1.57	R
	4.059E+02	3.7E-02	1.50E+01	3.06E+00	1.50E-01	0.50	7.51E-02	7.46E-03	5.44E-02	6.9	0.02	S
	1.060E+00	3.7E-02	3.92E-02	8.00E-03	3.92E-04	10.00	3.92E-03	7.46E-03	1.88E-03	7.5	0.23	S
	1.278E+01	3.7E-02	4.73E-01	9.64E-02	4.73E-03	0.50	2.36E-03	7.46E-03	1.20E-01	0.1	1.24	S
	1.613E+03	3.7E-02	5.97E+01	1.22E+01	5.97E-01	0.50	2.98E-01	7.46E-03	8.31E+00	0.1	0.68	S
	8.989E+03	3.7E-02	3.33E+02	6.78E+01	3.33E+00	0.50	1.66E+00	7.46E-03	3.09E+01	0.1	0.46	S
	6.008E+03	3.7E-02	2.22E+02	4.53E+01	2.22E+00	0.20	4.45E-01	7.46E-03	3.2E+01	0.1	0.71	S

測定結果(5/5) 照射済燃料から生成する核種その 4

核種	137Cs(液体 試料は濃度)	¹³⁷ Csに対する 核種組成比	予測値 (Bq)	予測濃度 (Bq/ml, Bq/g, Bq/cm ²)	酸分解後 試料溶液 100ml定容 (Bq/ml)	分析供試量 酸分解溶液 100ml中 分取量(ml)	予測分析 放射能 (Bq)	定量限界 放射能 (Bq)	定量値(Bq/ml, Bq/g, Bq/cm ²)	相対誤差 (%)	予測濃度 /定量値	試料の性状 S:スミヤ L:廃液 R:樹脂
⁹⁹ Tc	6.657E+02	1.3E-04	8.65E-02	1.76E-02	8.65E-04	30.00	2.60E-02	1.70E-02	3.405E-02	4.9	1.93	S
	6.092E+02	1.3E-04	7.92E-02	1.61E-02	7.92E-04	30.00	2.38E-02	1.70E-02	2.038E-01	1.6	12.63	S
	6.664E+02	1.3E-04	8.66E-02	1.77E-02	8.66E-04	30.00	2.60E-02	1.70E-02	2.138E-02	6.6	1.21	S
	5.209E+02	1.3E-04	6.77E-02	1.38E-02	6.77E-04	70.00	4.74E-02	1.70E-02	5.262E-02	6.9	3.81	S
	1.963E+03	3.6E-06	7.07E-03	1.44E-03	7.07E-05	100.00	7.07E-03	8.29E-06	1.045E-03	0.1	0.73	S
²³⁸ U	1.336E+03	3.6E-06	4.81E-03	9.80E-04	4.81E-05	100.00	4.81E-03	8.29E-06	1.751E-03	0.2	1.79	S
	1.031E+03	3.6E-06	3.71E-03	7.56E-04	3.71E-05	100.00	3.71E-03	8.29E-06	3.505E-04	0.5	0.46	S
	7.935E+03	3.6E-06	2.86E-02	5.82E-03	2.86E-04	100.00	2.86E-02	8.29E-06	2.492E-05	0.2	0.004	S
	2.416E+03	3.6E-06	8.70E-03	1.77E-03	8.70E-05	100.00	8.70E-03	8.29E-06	6.179E-04	0.4	0.35	S
	5.901E+03	3.6E-06	2.12E-02	4.33E-03	2.12E-04	100.00	2.12E-02	8.29E-06	2.148E-03	0.1	0.50	S

* ²³⁸Uについては、定量限界質量を放射能の換算した値³Hおよび¹⁴C

核種	定量値 (Bq/ml, Bq/g)	相対誤差(%)	試料名
³ H	1.4E+03	5.7E-02	炉水14-3
	1.2E+00	2.3E+00	炉水14-4
	8.5E+02	3.4E-02	炉水13-3
	1.2E+00	9.8E-01	炉水13-4
	1.4E+02	6.3E-01	樹脂13
¹⁴ C	1.5E+02	5.8E-01	樹脂14
	1.9E-01	6.6E-01	炉水14-3
	9.7E-02	3.5E+00	炉水13-3
	2.2E+03	1.4E-01	樹脂13
	2.3E+03	1.2E-01	樹脂14

A.7 定量限界値の計算法

本検討では、相対誤差10%となる値(放射能あるいは質量)を定量限界値とし、測定結果の表中における定量限界値は、以下の計算によって算出した。

1) ^{99}Tc における定量限界値の計算

$$\text{net-cpm} = \frac{N_g - N_b}{t}$$

$$\text{net-cpm誤差} = \sqrt{\left(\frac{\sqrt{N_g}}{t}\right)^2 + \left(\frac{\sqrt{N_b}}{t}\right)^2}$$

$$\text{放射能(Bq)} = \frac{N_g - N_b}{t \varepsilon} \times \frac{1}{60}$$

$$\text{相対誤差(\%)} = 100 \times \sqrt{\left(\frac{E_\varepsilon}{\varepsilon}\right)^2 + \frac{N_g + N_b}{(N_g - N_b)^2}}$$

N_g グロスカウント

N_b バックグラウンドカウント=360

t 測定時間=1200(min)

ε 計数効率=0.265

E_ε 計数効率誤差=0.00141

相対誤差が10%となる放射能量 0.0170Bq

2) ^{238}U における定量限界値の計算

$$\text{質量(g)} = \left(\frac{N_{238} - N_b}{N_{233}} \times A_s^{233} - A_s^{238} \right) \times \frac{238}{A_b}$$

$$\text{質量誤差} = \frac{\sqrt{N_{238} + N_b}}{N_{233}} \times A_s^{233} \times \frac{238}{A_b}$$

$$\text{相対誤差(\%)} = 100 \times \frac{\frac{\sqrt{N_{238} + N_b}}{N_{233}} \times A_s^{233} \times \frac{238}{A_b}}{\left(\frac{N_{238} - N_b}{N_{233}} \times A_s^{233} - A_s^{238} \right) \times \frac{238}{A_b}}$$

A_s^{233} スパイク中 ^{233}U のatm数

A_s^{238} スパイク中 ^{238}U のatm数

N_{238} ^{238}U カウント数

N_{233} ^{233}U カウント数

N_b バックグラウンドカウント数

A_b アボガドロ数

相対誤差が10%となる放射能量 6.664E-10 g

3) プルトニウムおよびアメリシウム(α 線スペクトロメトリー)における定量限界値の計算

$$\text{放射能(Bq)} = \frac{N_s}{N_t} \times A_t$$

A_t 担体の放射能=0.05(Bq)

N_s グロスカウント

N_t 回収率補正用担体グロスカウント=770

t 測定時間=70,000(sec)

$$\text{相対誤差(\%)} = 100 \times \sqrt{\frac{1}{N_t} + \frac{1}{N_s}}$$

相対誤差が10%となる放射能量 0.00746Bq

4) ^{90}Sr における定量限界値の計算

$$\text{net-cps} = \left(\frac{N_g}{t} - \frac{N_b}{t} \right) \times \frac{1}{F_Y}$$

$$\text{net-cps誤差} = \frac{1}{F_Y} \times \sqrt{\left(\frac{\sqrt{N_g}}{t} \right)^2 + \left(\frac{\sqrt{N_b}}{t} \right)^2}$$

$$\text{放射能(Bq)} = \frac{N_g - N_b}{t \varepsilon} \times \frac{1}{F_Y}$$

$$\text{相対誤差(\%)} = 100 \times \sqrt{\left(\frac{E_\varepsilon}{\varepsilon} \right)^2 + \frac{N_g + N_b}{(N_g - N_b)^2}}$$

N_g グロスカウント

N_b バックグラウンドカウント=16

t 測定時間=3600(sec)

ε 計数効率=0.3225

E_ε 計数効率誤差=0.00141

F_Y Y生成率=0.913

相対誤差が10%となる放射能量 0.1189Bq

5) ^{59}Ni における定量限界値の計算の計算

$$\text{net-cps} = \frac{N_g - N_b}{t}$$

$$\text{net-cps誤差} = \sqrt{\left(\frac{\sqrt{N_g}}{t}\right)^2 + \left(\frac{\sqrt{N_b}}{t}\right)^2}$$

$$\text{放射能(Bq)} = \frac{N_g - N_b}{t \varepsilon}$$

$$\text{相対誤差(\%)} = 100 \times \frac{\sqrt{N_g + N_b}}{N_g - N_b}$$

N_b バックグラウンドカウント=569

t 測定時間=70,000(sec)

N_g グロスカウント

ε 計数効率=0.138

相対誤差が10%となる放射能量 0.04048 Bq

6) ^{63}Ni における定量限界値の計算の計算

$$\text{net-cpm} = \frac{N_g - N_b}{t}$$

$$\text{net-cpm誤差} = \sqrt{\left(\frac{\sqrt{N_g}}{t}\right)^2 + \left(\frac{\sqrt{N_b}}{t}\right)^2}$$

$$\text{放射能(Bq)} = \frac{N_g - N_b}{60t \varepsilon}$$

$$\text{相対誤差(\%)} = 100 \times \frac{\sqrt{N_g + N_b}}{N_g - N_b}$$

N_g グロスカウント

N_b バックグラウンドカウント=968

t 測定時間=100(min)

ε 計数効率=0.629

相対誤差が10%となる放射能量 0.1306 Bq

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光強度	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バ	b
バール	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

$$1 \text{ Å} = 0.1 \text{ nm} = 10^{-10} \text{ m}$$

$$1 \text{ b} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$$

$$1 \text{ bar} = 0.1 \text{ MPa} = 10^5 \text{ Pa}$$

$$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{ m/s}^2$$

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$$

$$1 \text{ rad} = 1 \text{ cGy} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ rem} = 1 \text{ cSv} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局1985年刊行による。ただし, 1 eVおよび1 uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表す場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令ではbar, barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N (=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa} \cdot \text{s} (\text{N} \cdot \text{s/m}^2) = 10 \text{ P (ポアズ)} (\text{g}/(\text{cm} \cdot \text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^6 \text{ St (ストークス)} (\text{cm}^2/\text{s})$$

圧力	MPa (=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg (Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻²
	6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal (計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸
	1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1

$$1 \text{ cal} = 4.18605 \text{ J (計量法)}$$

$$= 4.184 \text{ J (熱化学)}$$

$$= 4.1855 \text{ J (15°C)}$$

$$= 4.1868 \text{ J (国際蒸気表)}$$

$$\text{仕事率 } 1 \text{ PS (仏馬力)}$$

$$= 75 \text{ kgf} \cdot \text{m/s}$$

$$= 735.499 \text{ W}$$

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹
	3.7 × 10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

(86年12月26日現在)

R1・研究所等廃棄物の埋設処分における安全評価上重要核種の選定（その2）
―原子炉施設および照射後試験施設から発生した廃棄物の核種分析手法の検討―