

JNC TJ6400 2001-015

流 動 媒 体 处 理 の 調 査

(核燃料サイクル開発機構 人形峠環境技術センター)

(契約業務報告書)

2 0 0 2 年 3 月

川崎重工業株式会社

この資料は、核燃料サイクル機構内における検討を目的としている機構内資料です。については複製、転載、引用等を行なわないよう、また、第三者への開示または内容漏洩がないように管理して下さい。また、今回の開示目的以外のことには使用しないように注意して下さい。

本資料についての問い合わせは、下記に願います。

708-0698 岡山県苫田郡上齋原村 1550

核燃料サイクル開発機構 人形峠環境技術センター

環境保全技術開発部 管理課

JNC TJ6400 2001-015
2002年3月

流動媒体処理の調査

千代 亮*、東 達弘*、山崎 誠一郎*

要 旨

転換施設に固有であるウラン等を含有するアルミナに対する処理技術として溶融塩電解法をあげることができる。その適用性を検討する上で不足している熱力学データを取得する必要があり、起電力測定試験を行った。

研究の結果、ウランの酸化還元電位はアルミニウムのそれと近い値を示し、また、溶融塩中でアルミニウム濃度がウラン濃度に比べ非常に高いことからウランを電解回収する際、アルミニウムと一緒に回収する可能性が大きく、回収後蒸留処理等の後処理が必要なことが示唆された。

一方、アルミナはフッ化物溶融塩に溶解するものの、同じく溶融塩中に溶解したフッ化ウランを酸化ウランに酸化させることができた。酸化ウランはフッ化物溶融塩中に溶解せず沈殿するため、物理的にウランを分離回収することが可能であることがわかった。

本報告書は川崎重工業（株）が核燃料サイクル開発機構との契約により実施した業務成果に関するものである。

サイクル機構担当部課室および担当者：人形峠環境技術センター 施設管理部 転換施設処理課

梅津 浩、天本 一平

*川崎重工業（株）パワープラント事業部 開発部 核燃料リサイクルグループ

目次

1. まえがき	1
2. 研究内容	2
2.1目的	2
2.2検討内容	2
2.3実施期間	2
2.4研究工程	3
3. 試験内容	4
3.1 サイクリックボルタンメトリー	4
4. 平衡電位測定試験	8
4.1平衡電位測定試験による活量係数導出理論	8
4.2起電力測定試験	10
4.2.1試料	10
4.2.2実験装置	11
4.2.3試験方法	12
4.2.4試験条件	13
4.2.5試験結果	13
4.2.6考察	14
5. 酸化ウラン回収へのアプローチ	25
6. あとがき	29

1. まえがき

人形峠事業所に置ける製錬転換プロセスからは、ウランや微量の FP、TRU を含んだアルミナ（使用済み流動媒体及びオフガス処理用吸着剤）が発生する。これらの放射性物質を含むアルミナは現在保管されており、今後の施設整理縮小に備え、処理が必要になる。しかしながら、これら転換施設に固有であるウラン等を含有するアルミナに対する処理技術はなく現在、合理的な技術を選択すべく、調査、基礎試験が進められている。

本件は、処理技術として溶融塩電解法の適用性を検討する上で不足している熱力学的データ（フッ化物溶融塩中の活量係数）の取得を行うことを目的とするものである。

昨年度はウラン模擬物質を用いてフッ化物溶融塩（氷晶石系溶融塩）中の熱力学的データを取得する技術を確証したが、本年度は天然ウランを使用し電位測定試験を行った。

2. 研究内容

2.1 目的

フッ化物中のウランフッ化物の活量係数を取得することを目的とする。

2.2 検討内容

フッ化ウランを用いて平衡電位測定試験等を行い、フッ化物中のウランフッ化物の活量係数を取得する。

(1) サイクリックボルタンメトリー試験

サイクリックボルタンメトリー試験を実施して、 $\text{NaF}\cdot\text{AlF}_3\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\cdot\text{UF}_4$ 系での溶融塩中のウランの化合物形態に関する電気化学的知見を取得する。

(2) 平衡電位測定試験

ウラン模擬物質を用いた試験の結果に基づいて選定した試験条件の下で、 $\text{NaF}\cdot\text{AlF}_3\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\cdot\text{UF}_4$ 系にて UF_4 濃度をパラメータとした平衡電位測定試験を実施し、平衡電位及び活量係数を取得する。

2.3 実施期間

平成 12 年 11 月 1 日 ~ 平成 14 年 3 月 15 日

2.4 研究工程

項目	平成 12 年		平成 13 年		
	11月	12月	1月	2月	3月
試験準備					
材料手配					
活量係数測定試 験					
サイクリック ボルタンメトリー					
報告書作成					(3/15)納入

3. 試験内容

3.1 サイクリックボルタンメトリー

電極電位をある範囲で自動的に往復させれば、その範囲に E_0 をもつ酸化還元対の反応電流が測定でき、電気化学的情報が得られる。サイクリックボルタンメトリーは基本的に図 3.1 のような装置構成となる。

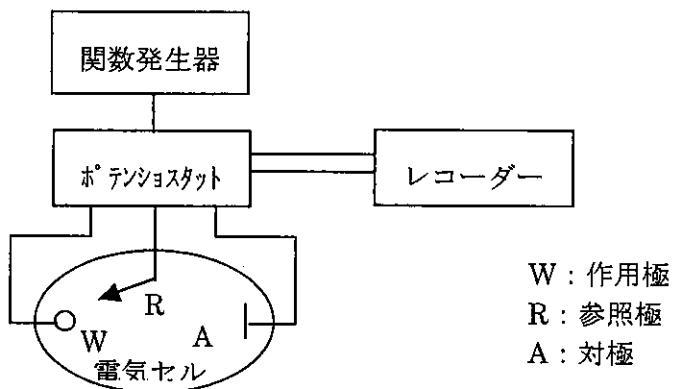


図 3.1 サイクリックボルタンメトリー装置概念図

(1) 試験条件

電気セルの構成図を図 3.2 に示す。ここで参照極は起電力測定試験にも使用している Al/AlF₃ 極（図 4.5 参照）を、作用極及び対極は $\phi 1\text{mm}$ の W 線を用いた。測定装置には、ソフトウェアにより自動解析ができる北斗電工（株）製の HZ-3000（図 3.3 参照）を使用した。また試験条件を表 3.1 に示す。走査速度は 100mV/s~10mV/s まで行い、傾向を確認した。また、装置外観を図 3.3 に示す。

表 3.1 試験条件

項目		条件
塩	NaF	120g
	AlF ₃	80g
	Al ₂ O ₃	24g
添加物	UF ₄	0.01 (mol 分率)
溶融塩温度		約 1000°C
走査範囲		-1.0V～1.0V
走査速度		100mV/s

(2) サイクリックボルタモグラフ

得られたサイクリックボルタモグラフのうち、代表的なものとして走査速度 100mV/s の結果を図 3.4 に示す。電極電位を負側に走査していくと還元反応を示すピークが 2 つ現れる。

電流値の大きなものは濃度の高さから行って Al³⁺ + 3e⁻ → Al のピークと思われ、それよりも貴側に存在するピークは U⁴⁺ + e⁻ → U³⁺ と予想できる。

この系では U³⁺ + 3e⁻ → U のピークは見られない。おそらく電位が近く、Al のピークに隠れているものと思われる。

このことから、U を Al よりも先に電解還元し、U 単独を回収することは難しく、仮に電解還元を行っても、Al と U を同時に析出させる可能性があることが推察される。

作用極：Wワイヤー $\phi 1\text{mm}$

参照極：BN管（細孔あり）、液体Al、Taワイヤー

対極：Wワイヤー $\phi 1\text{mm}$

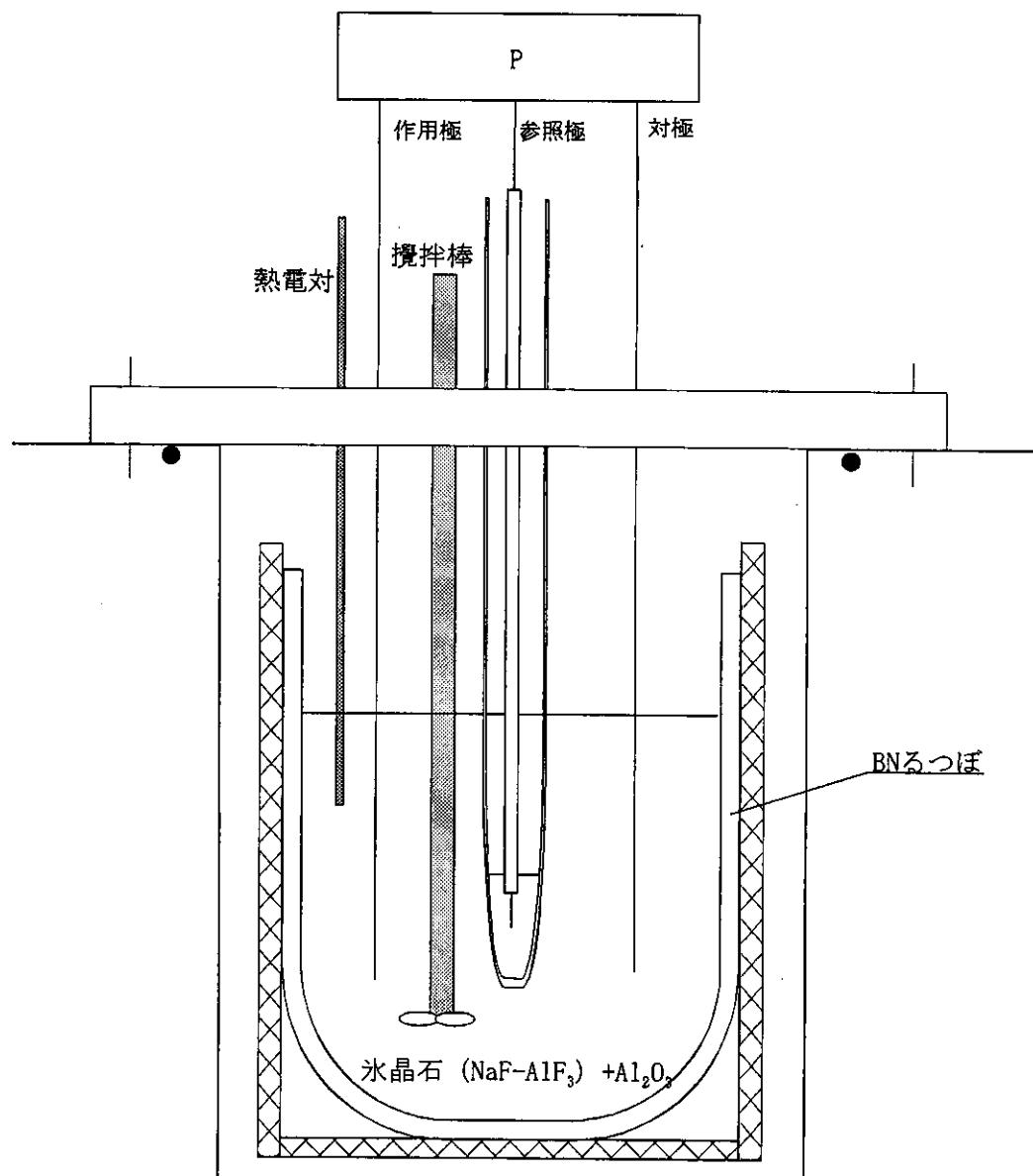


図 3.2 電気化学セル概念図

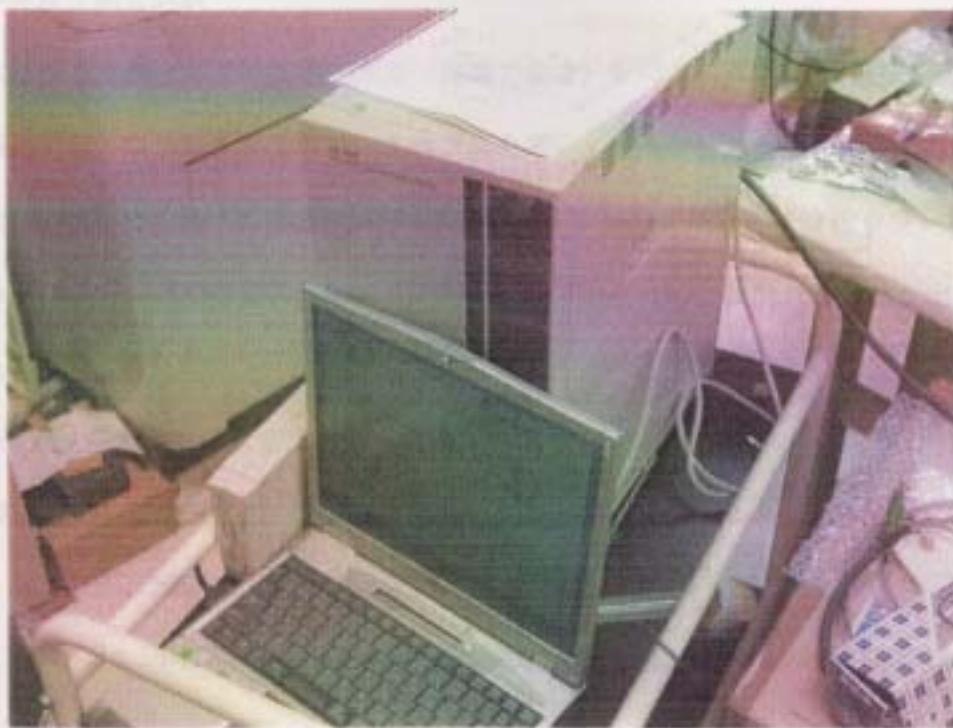


図 3.3 サイクリック測定装置外観

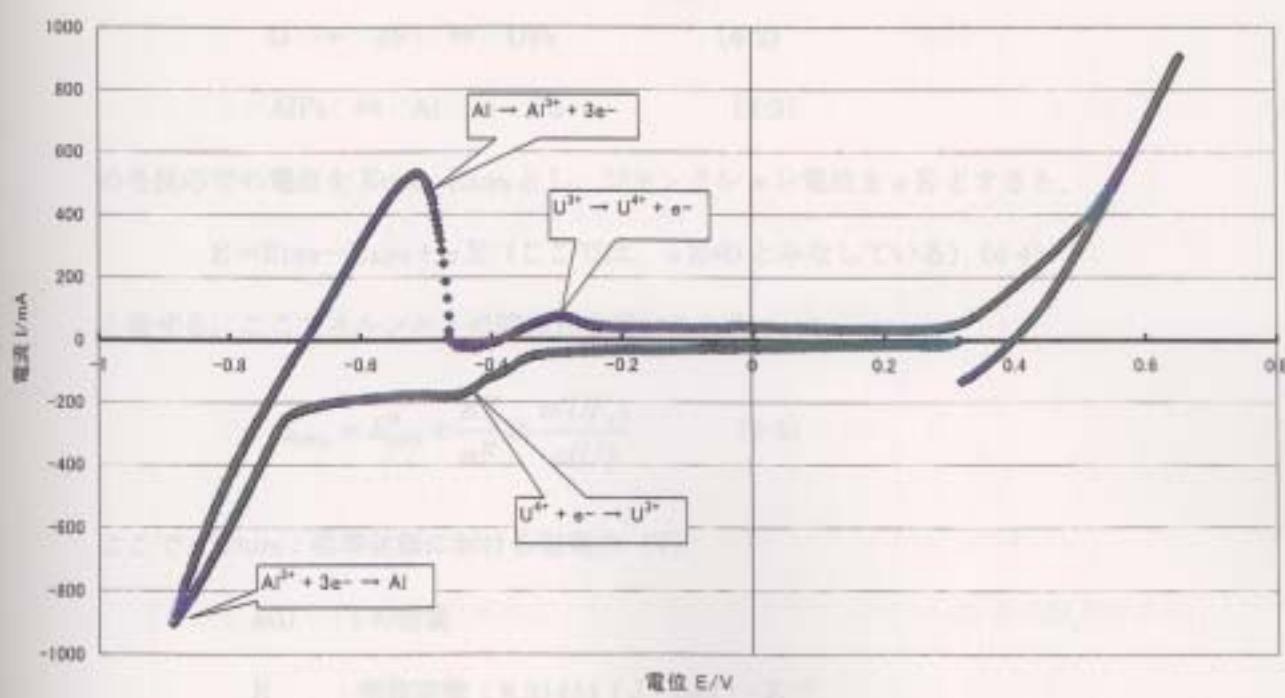


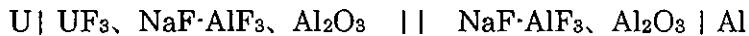
図 3.4 サイクリックボルタモグラフ

4. 平衡電位測定試験

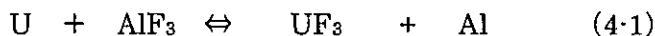
氷晶石系溶融塩中で平衡電位測定（起電力測定）を行うことにより、UF₃の活量係数を導出する。ウラン金属及びフッ化ウランを用い、氷晶石溶融塩中に添加し、起電力測定試験を行った。以下に試験の詳細を記述する。なお処理対象のフッ化ウランは UF₄であるが、ウラン析出の還元反応は U(III)→U(0)であるため、検討対象のフッ化ウランは UF₃とする。

4.1 平衡電位測定試験による活量係数導出理論

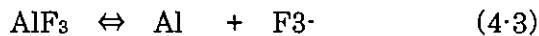
溶融塩中の活量係数は、次に示すセルの起電力により求める。



ここで、|| : BN 膜（細孔で代用）である。両端の U、Al 間の起電力 E は、次の反応による。



ここで、各々の単極反応は、



の各反応での電位を E_{UF3}、E_{AlF3} とし、ジャンクション電位を σE とすると、

$$E = E_{UF_3} - E_{AlF_3} + \sigma E \quad (\text{ここでは、}\sigma E=0\text{ とみなしている}) \quad (4 \cdot 4)$$

と表せる。ここでネルンストの関係式を用いると E_{UF3} は、

$$E_{UF_3} = E_{UF_3}^0 + \frac{RT}{nF} \ln \frac{a(UF_3)}{a(U)} \quad (4 \cdot 5)$$

ここで、E_{UF3}⁰ : 標準状態における起電力 (V)

a(i) : i の活量

R : 気体定数 ; 8.31451 (J · mol⁻¹ · K⁻¹)

T : 絶対温度 (K)

F : ファラデー定数 ; 9.64853×10^4 (J · mol⁻¹ · V⁻¹)

n : 電荷数 (3価の物では、n=3)

$E^0_{UF_3}$ は、 UF_3 の標準生成自由エネルギー $\Delta G_f^0(UF_3)$ から計算でき、

$$E^0_{UF_3} = \Delta G_f^0(UF_3) / 3F \quad (4-6)$$

$\Delta G_f^0(UF_3)$ には、熱力学データの文献値から計算した過冷却液体状態の標準生成自由エネルギーを用いる。

(4-5) 式の右辺第2項で、純金属の活量は1なので $a(M)=1$ となり、さらに、

$$a = \gamma \cdot X \quad (4-7)$$

ここで、 γ : 活量係数、X : 濃度 (モル分率)

(4-5) 式を変形すると、

$$E_{UF_3} = E_{UF_3}^0 + \frac{RT}{3F} \ln \{X(UF_3) \times \gamma(UF_3)\} \quad (4-8)$$

一方、共晶塩中の UF_3 の生成自由エネルギーは、

$$\Delta G^0(UF_3) = 3F \cdot E^0_{UF_3} \quad (4-9)$$

と表すことができ、(4-8) 式は、

$$E_{UF_3} = \frac{G^0(UF_3)}{3F} + \frac{RT}{3F} \ln X(UF_3) + \frac{RT}{3F} \ln \gamma(UF_3) \quad (4-10)$$

となる。この式を、 $\ln \gamma(UF_3)$ について整理すると、活量係数は

$$\ln \gamma(UF_3) = \frac{1}{RT} (\Delta G(UF_3) - \Delta G_f^0(UF_3)) \quad (4-11)$$

ここで $\Delta G(UF_3) = 3F(E + E_{AIF_3} - \delta E) - RT \ln X(UF_3)$ である。

で表すことができる。よって試験により、起電力 E と UF_3 濃度から活量係数が求められる。

4.2 起電力測定試験

本試験に採用した起電力測定 (EMF 法 : Electron Motive Force) は二つの電極間で電解質濃度を変え、その電極間の起電力を測定し、活量を求める方法である。以下に試験に必要な部材及び試料について述べる

4.2.1 試料

溶融塩や金属を用いた実験を行う場合、溶融塩や液体金属中の不純物（特に水分と酸素）が影響を及ぼすことはよく知られている。このため、実験に用いる溶融塩や液体金属は事前に十分な精製処理を行うとともに実験中も外気と遮断しておく必要がある。

本実験に用いた試料は試薬については主に水分を、金属については主に表面の酸化物を除去するために炉内を Ar 霧囲気に置換し以下の処理を行った。

(1) NaF、AlF₃ 塩（氷晶石塩）

（株）高純度科学研究所製の塩（mol 比、NaF : AlF₃ = 3:1）600°Cで 16 時間真空乾燥して用いた。氷晶石(Na₃AlF₆)は純度が高いものを入手することが困難であったため、NaF と AlF₃ を上記比率にて混合、加熱溶融することにより対応した。

(2) 金属

Al、Ta については以下のものを入手し、使用前にやすりもしくはサンドペーパーにて研磨し、表層の酸化膜を除去した状態で使用した。

金属	入手先	純度	形状
Al	（株）高純度科学研究所	99.99%	約 φ3~5 ショット
Ta	（株）高純度科学研究所	99.9%	φ1mm ワイヤー

(3) るつぼ及び電極管

るつぼ及び電極管材料は $\text{NaF}\cdot\text{AlF}_3\cdot\text{Al}_2\text{O}_3$ 溶系に耐食性を有すると考えられる窒化ホウ素 (BN : (株)昭和电工製ショウセラム UHS-FL、純度 99.5%) を用いた。

4.2.2 実験装置

実験装置の構成はスエジロック及びフランジでバウンダリを構成した電気化学セルと外部の測定装置からなる。装置系統図を図 4.1 に示す。

(1) 電気化学測定セル

使用した電気化学測定セル（以下電気セル）の概念図を図 4.2 に示す。また外観写真を図 4.3 に示す。電気セルは Inconel 製の炉心管内に設置し、O リングにてシールした。O リング周辺には水冷を施している。

$\text{NaF}\cdot\text{AlF}_3$ 、および Al_2O_3 を装荷する BN 製るつぼは均温を保つため、金属容器（ステンレス容器）内に収め、炉心管内に挿入した。るつぼの外観写真を図 4.4 に示す。

上部のフランジは中心に攪拌装置をとりつけ、その周囲に各種電極、熱電対および UF_3 添加用のアルミナ管を設置した。攪拌用インペラにはタンタル (Ta) を用い、電気的な絶縁を考慮してアルミナ製ロッドをステンレス製シャフトに接続して直流モーターで駆動した。熱電対はステンレスシースの K 型熱電対を BN 管で被覆して用いた。また実験時に電気セル内部の雰囲気を一定に保つため、ポンベより Ar ガス導入し、ドラフトへ排出できる構造とした。フランジ底部にはステンレス製輻射熱遮蔽板を取り付け、熱損失の低減化を図った。

(2) 電極

実験に用いた参照電極の構造を図 4.5 に示す。各電極用のリードとしては、溶融金属中への溶解度が低く、塩による腐食を受けにくく、1,000°C程度の高温に耐えうるものが望ましい。本実験では、以上の観点および加工性から Ta を選択した。

① 参照極

参照極には Al 液体電極を用いた。Al は窒化ホウ素 (BN) で作られた管に装荷した。水晶石塩は管の細孔を通って電極に接している。外観写真を図 4.6 に示す。管を薄くでき、隔膜として作用できれば、細孔は必要なくなるが現状では製作が難しい。また Ta リード線の絶縁にも BN を用いた。Al 液体電極は水晶石系の溶融塩には多くの研究者に採用されている。文献によれば Al 液体電極の安定性は 3~5mV の範囲内である⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾。

② 対極

対極は金属 U 電極である。Ta 線をリード線として用いるが、接続部の抵抗をできるだけ小さくするため、スポット溶接にて接続したものを使用した。また、入手した表面が酸化されていて黒色化していたためやすりで表面を金属光沢が生じるまで研磨した。外観写真を図 4.7 に示す。

(3) 計測装置

起電力の測定は㈱アドバンテストのエレクトロメーター TR-8652 を用いて行った。起電力は Windows PC に接続した DARWIN DA100 データロガーにて記録を行った

4.2.3 試験方法

電解セル内への不純物（特に水分と酸素）の持込を最小限とするため、溶融塩と直接接する、るつぼ、電極管はあらかじめ 300°C にて真空乾燥を行った。また実験

に用いた NaF、AlF₃、Al₂O₃、各種金属は 4.2.1 項で述べたような処理を施したものを使用した。

所定の温度に昇温した後、塩の溶融を確認し、攪拌棒、電極管、熱電対を浸漬させた。UF₄ の添加はポテンショメーターの電位変化がある程度落ち着いたことを確認した後行った。

4.2.4 試験条件

試験条件を以下に示す。NaF、AlF₃ は mol 比にして 3:1、Al₂O₃ は重量濃度で 10% をそれぞれ装荷し攪拌後、加熱溶融し、溶融塩とした。試験条件を表 4.1 に示す。

表 4.1 試験条件

項目	条件	
塩	NaF	120g
	AlF ₃	80g
	Al ₂ O ₃	22g
添加物	UF ₄	0.001~0.01 (mol 分率)
雰囲気	酸素濃度	<0.5ppm
	水分濃度	<1ppm
試験温度	約 1,000°C	

4.2.5 試験結果

(1) ウラン投入試料

随時添加していくフッ化ウラン (UF₄) は真空加熱することで、自由水並びに分子水を除去した。形状がパウダーであるため、添加時の飛散を防止するため、あらかじ

め溶融塩に閉じこめる形状とした。

ルツボ内に所定量の塩とフッ化ウランを装荷し、1100°Cで1時間加熱し、固化した溶融塩を適当な寸法に破碎した。図4.8に破碎後の試料の写真を示す。破碎後のウランを含んだ塩中には黒色の物質が多数観察された。写真より黒色部は主にるっぽ底部に沈殿していたと考えられる。

(2) 起電力測定試験

溶融塩中にフッ化ウランを随時添加し、フッ化ウラン濃度をパラメータとし平衡起電力を測定した。起電力測定において数時間にわたって数mV程度の変化しかないものは平衡に達したと判断した。表4.2にフッ化ウラン濃度ごとの測定平衡起電力:Eを示す。

また図4.9には横軸にUF₄濃度の対数表示をとり、参照電極に対する平衡起電力Eとの関係を見た。添加したUF₄の濃度が高くなるにつれ、起電力は貴側へ移行する傾向が見られた。

表4.2 起電力測定結果

UF ₄ 投入量 (mol分率)	E (V)	溶融塩温度 (°C)
0.004	0.01	1018
0.009	0.18	1017
0.012	0.25	1019
0.017	0.57	1019

4.2.6 考察

(1) フッ化ウランの酸化

4.2.5章にて作成したウラン試料には、多数の黒色物質が観察された。この化学種

を同定するため、黒色の部分、塩の部分（白色部分）を XRD（X 線回折）分析にかけた。結果を表 4.3 に示す。（添付資料－1，2）

表 4.3 XRD 分析結果

分析	存在するもの	存在する可能性のあるもの
黒色部分	Na_3AlF_6 UO_2	NaAlO_2
塩（白色部分）	AlF_3 Al_2O_3	UF_4 UO_2

表より黒色部は主に UO_2 であることがわかる。つまり投入した UF_4 が UO_2 に酸化されていることがわかった。全量酸化されているのではなく、塩中に UF_4 の存在可能性が示されている。しかし、その信頼度（ピークの高さ）から判断して、投入した UF_4 の多くは酸化されているものと判断できる。

(2) ウラン電極の酸化

電位試験終了後、塩中で冷却固化した電極 U を回収し（図 4.10 参照）、XRD 分析を行った。

表 4.4 U 電極の XRD 分析

分析	存在するもの	存在する可能性のあるもの
U 電極	UO_2 Na_3AlF_6	UO_2 U

外観はかなり黒色化していて酸化が進んでいると予想された、分析の結果、信頼性（ピーグの高さ）から判断して、大部分が酸化されていることが分かった。

(3) 起電力測定試験

投入した UF_4 の酸化、U 電極の酸化等考慮すると、得られた電位の値自体、評価することは難しい。得られた結果から、図 4.11 に示すように活量係数を推算していくと、 γ の値が非常に大きくなり、

$$a = X \times \gamma > 1$$

というあり得ない結果を導き出してしまう。

ただ、塩に封入したウラン試料を投入すると、電位は貴な方向へシフトしていくことから、多くの UF_4 は酸化されるが、全てが UO_2 に酸化されるわけではないということが確認できた。

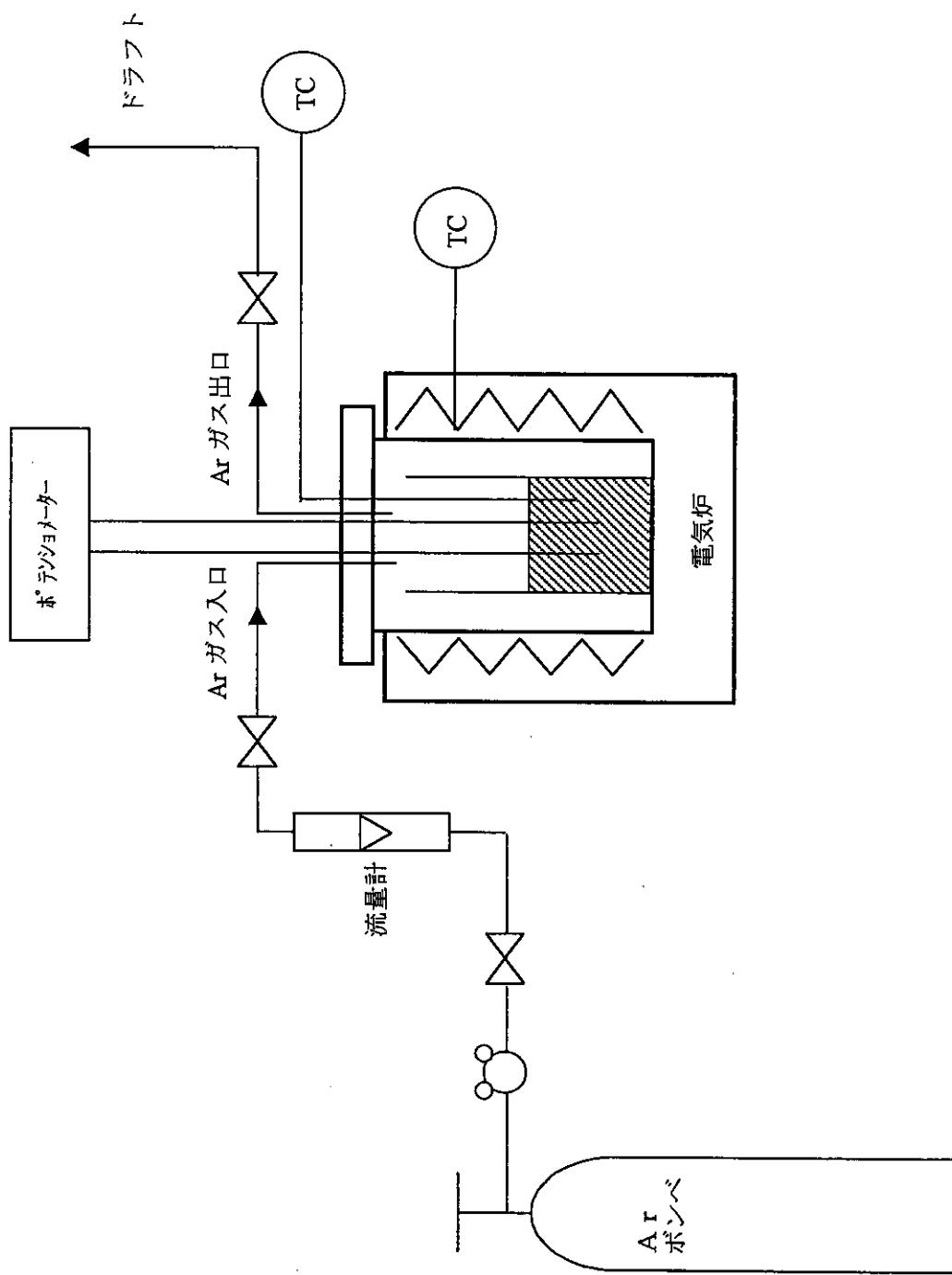


図 4.1 装置系統図

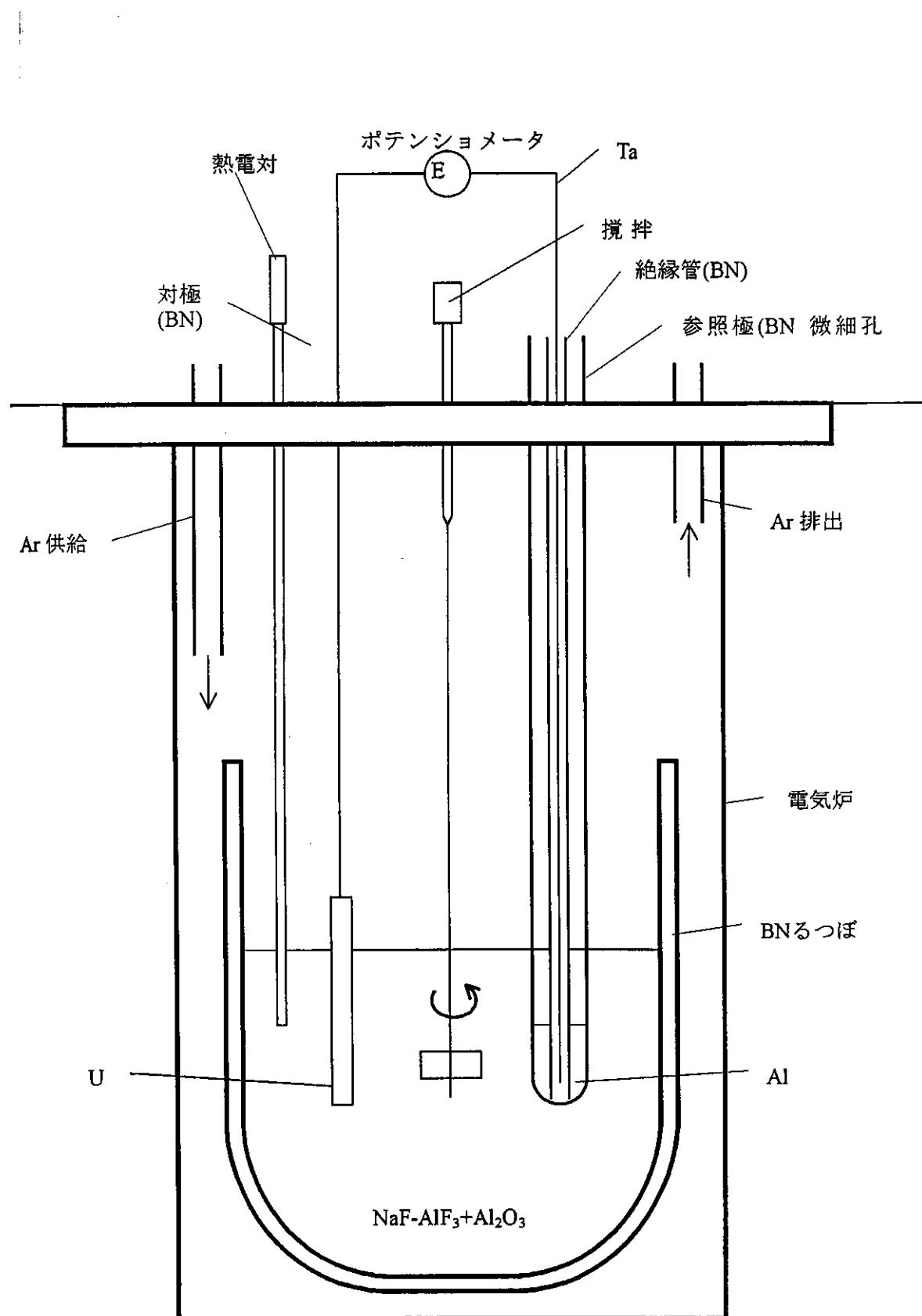


図 4.2 電気化学セル概念図

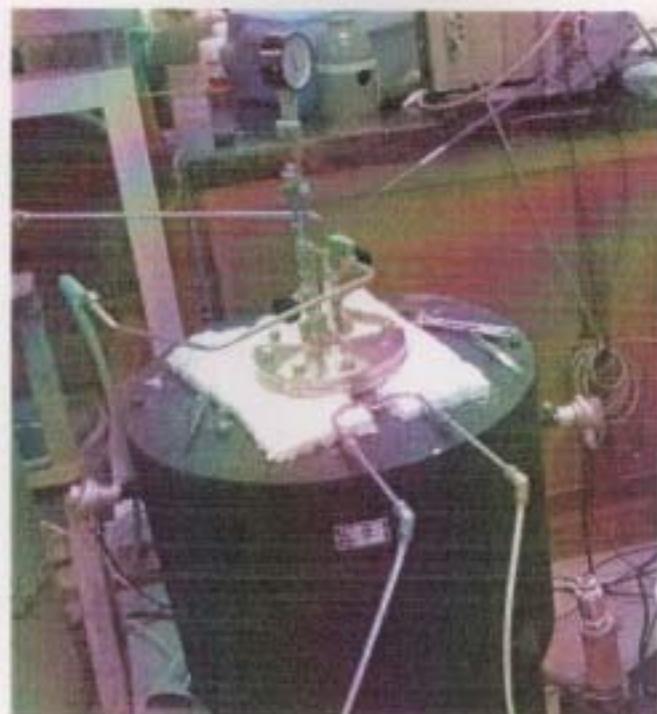


図 4.3 電気セルとヒーター外観写真



図 4.4 BN るつぼ外観写真

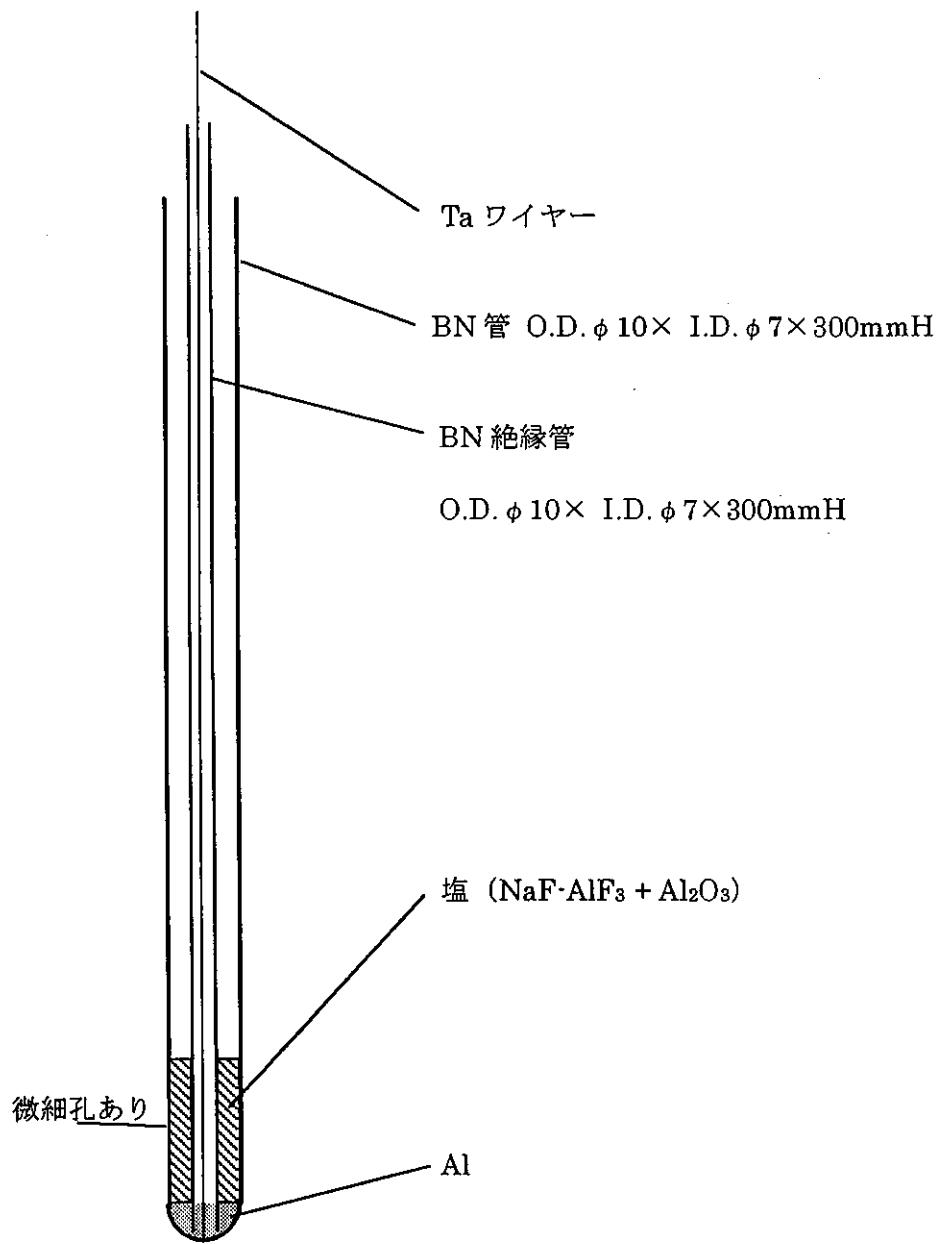


図 4.5 電極概念図



図 4.6 参照極外観写真

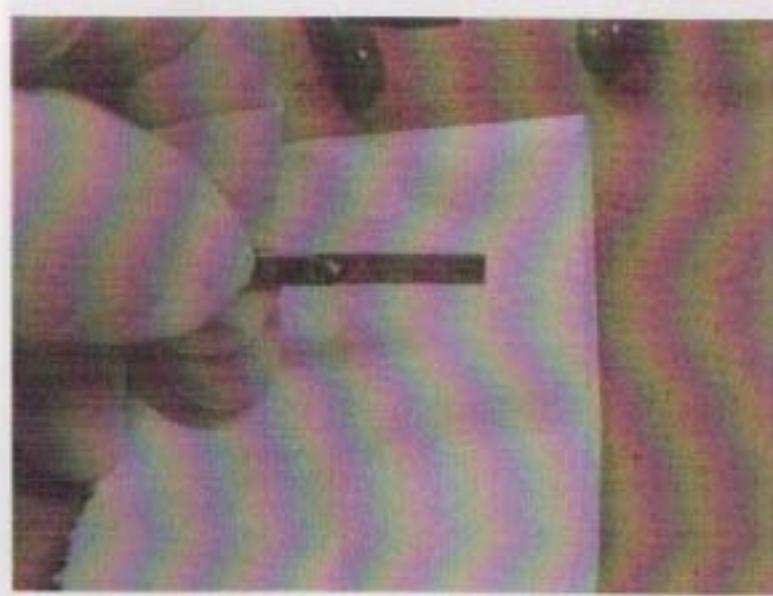


図 4.7 対極外観写真



図 4.8 フッ化ウラン投入用試料（破碎後）



図 4.10 試験終了後の U 電極

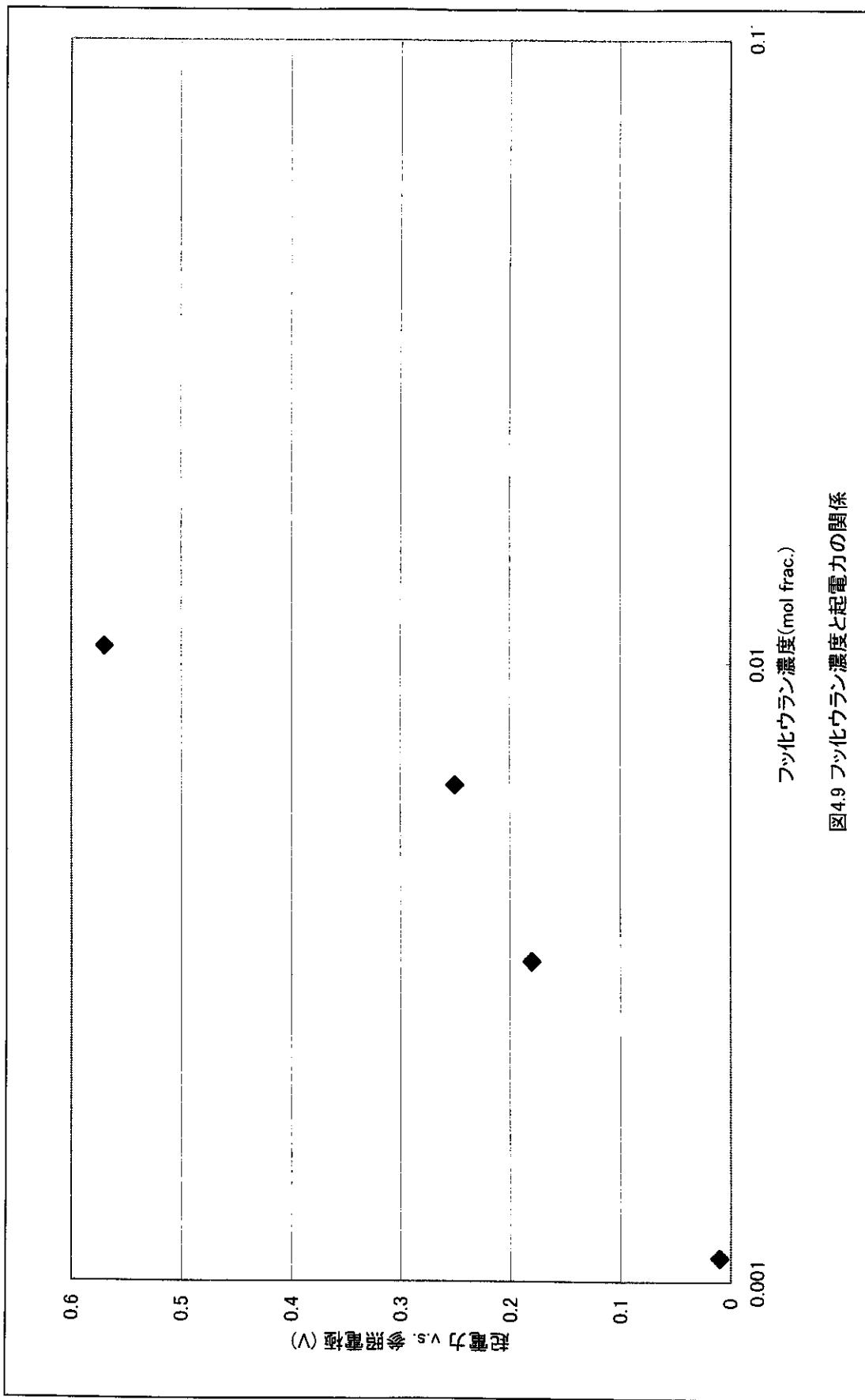


図4.9 フッ化ウラン濃度と起電力の関係

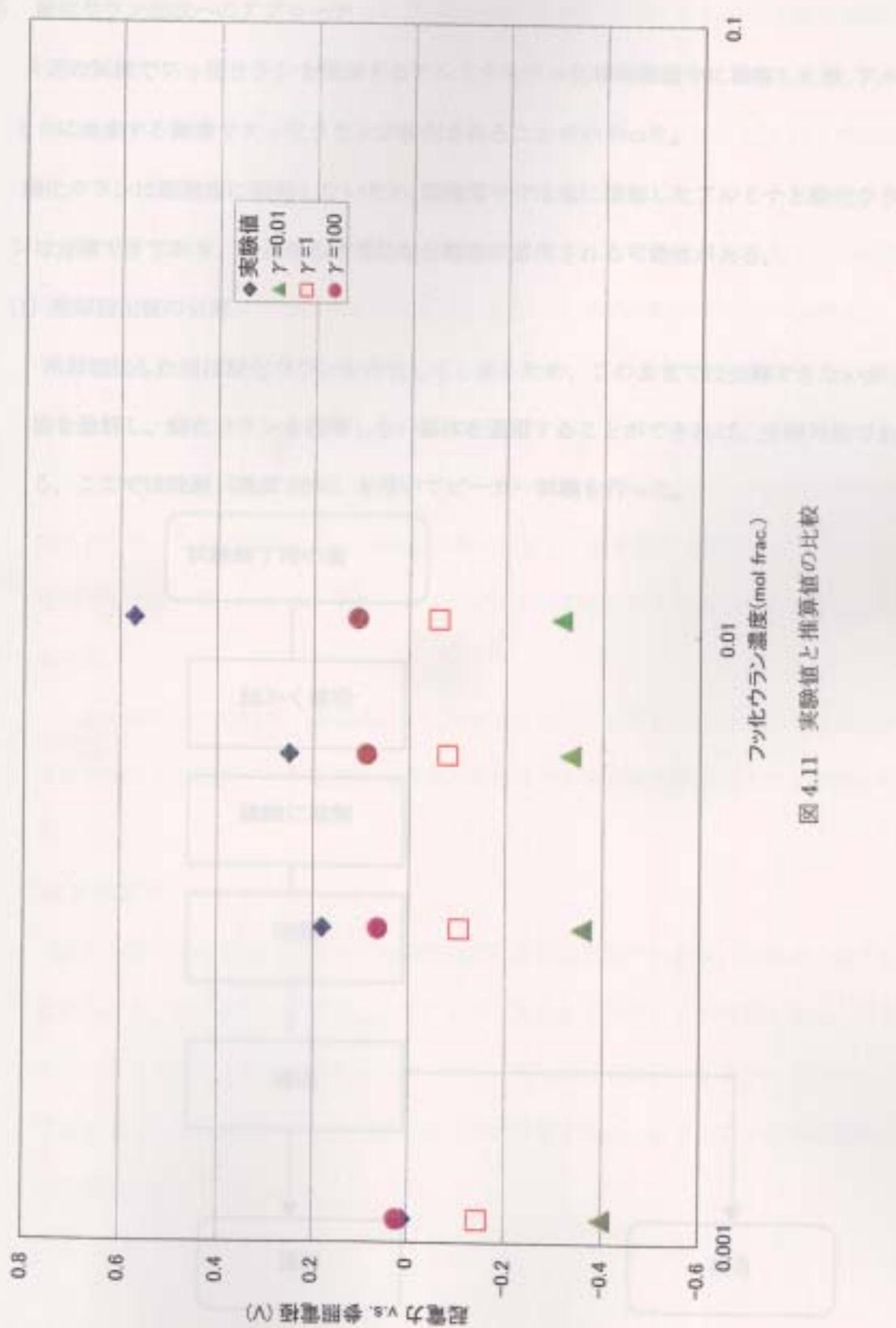


図 4.11 実験値と推算値の比較

5. 酸化ウラン回収へのアプローチ

今回の試験でフッ化ウランを随伴するアルミナをフッ化物溶融塩中に溶解した際、アルミナに由来する酸素でフッ化ウランが酸化されることがわかった。

酸化ウランは溶融塩に溶解しないため、溶融塩中では塩に溶解したアルミナと酸化ウランは分離できており、濾過等の物理的な分離法が適用される可能性がある。

(1) 冷却固化後の分離

冷却固化した塩は酸化ウランを内包してしまうため、このままでは分離できないが、塩を融解し、酸化ウランを融解しない媒体を適用することができれば、分離可能である。ここでは硫酸（濃度 98%）を用いてビーカー試験を行った。

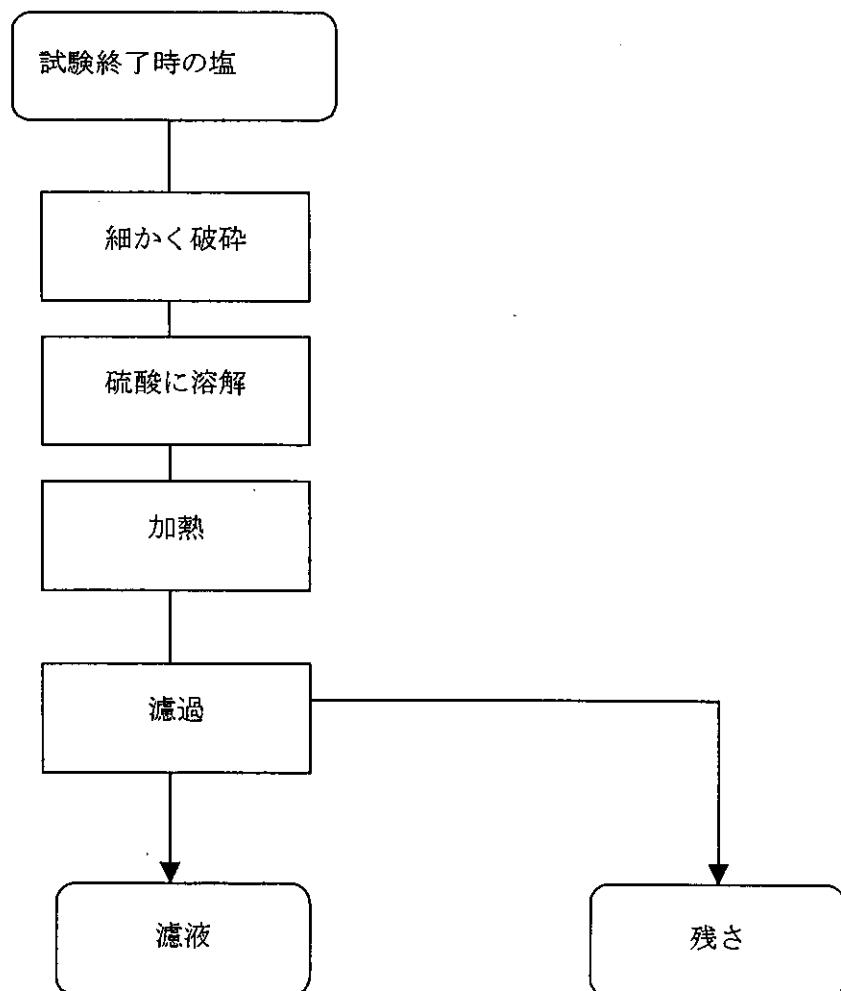


図 5.1 ビーカー試験フロー

核種移行性については、現状では濃硫酸中の U 濃度を測定する適切な機器が無い（現在検討中）ため、ゲルマ検出器にて、U の娘核種である Th と Pa の β ・ γ 線の線量を測定することにより、検討をつけることとした。Th、Pa はともに U と同様のアクチノイド元素であるため、化学的性質が類似していると考えられるためである。

試験終了時の塩 5g を硫酸（100g）に投入し、ホットプレート上で加熱し、5 時間放置したところ、塩は硫酸に大部分が溶解するものの、若干溶解しないものが残った。これを濾過したところ、残さとして、白い物質が残った。この残さと溶液をゲルマ分析したところ、ほとんどのアクティビティは残さの方から検出された（添付資料一 4）。

又この残渣を XRD 分析してみたところアルミナのみが検出され、その他 U 等は検出されなかった（添付資料一 3）。XRD はその特性上、重量濃度 1%程度以下のものは検出することが難しいため、アクティビティはあっても、検出されなかったものと思われる。

しかしながらこの結果、濃硫酸にて溶解することにより残さ側にほとんどの核種が移行することが確認でき、塩と酸化ウランを分離できる可能性があることが示唆された。

（2）溶融塩時の分離

NaF-AlF₃-Al₂O₃ 溶融塩は融点 1000°C 程度と非常に高温であるが、溶融塩の組成を変化させる、他の物質を添加することにより、融点を下げることが可能である。融点を下げることができれば、ステンレスメッシュ等の高温で使用できるフィルターを介することで、塩と酸化ウランを分離することが可能である。以下にフッ化物溶融塩系の相図をいくつかあげる。

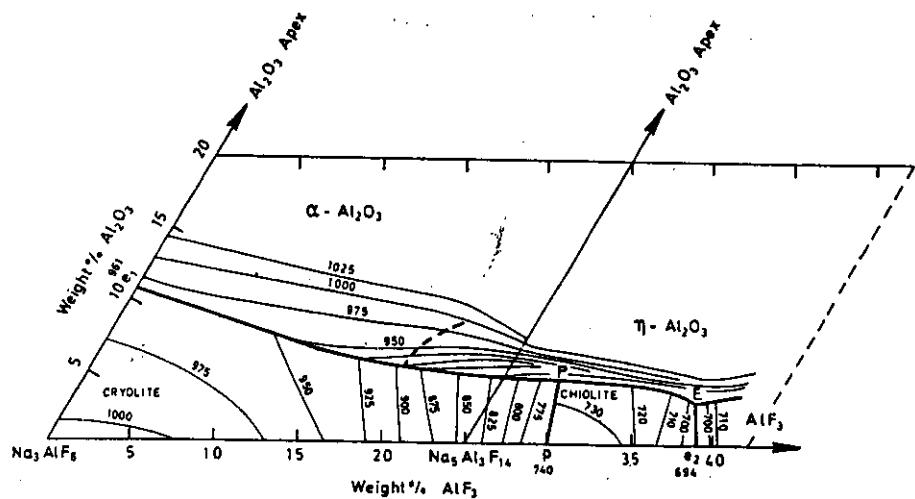


図 5.2 NaF-AlF₃-Al₂O₃系の相図⁽⁴⁾

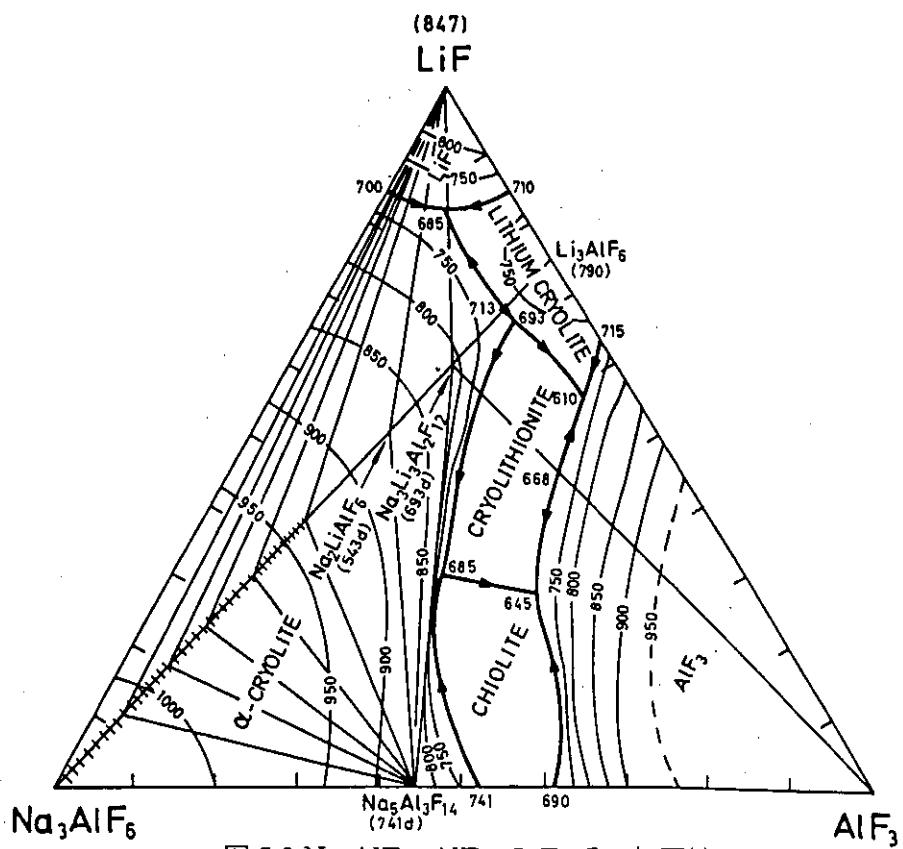


図 5.3 Na_3AlF_6 – AlF_3 – LiF 系の相図⁽⁵⁾

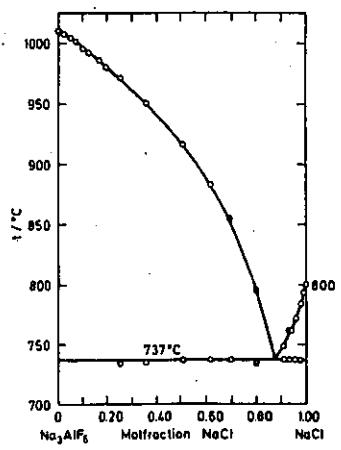


図 5.4 Na_3AlF_6 - NaCl 系の相図⁽⁶⁾

6. あとがき

使用済み流動媒体等、ウランを含んだアルミナを氷晶石溶融塩系での電解還元により回収することは難しいことがわかったが、この溶融塩を使用することにより、ウランを酸化物の化学種で回収できることが判明した。酸化物は濾過分離等物理的分離法により回収することが可能で電解法以上に効率の良い回収が可能である。

今後は溶融塩中に沈殿した酸化ウラン回収技術を検討することで、アルミナからのウラン回収は実現できる見通しがある。本研究ではある程度の方向性を見いだすことができた。

本試験を行うにあたり、金属ウラン並びにフッ化ウランを貸与して頂いた核燃料サイクル開発機構 天本課長殿、また、試験全般にわたり貴重な時間を割いてご指導、ご助言、ならびに計測機器を使用させていただいた、京都大学原子炉実験所バックエンド工学研究部門 山名 元 先生へこの場をお借りしてお礼を申し上げます。

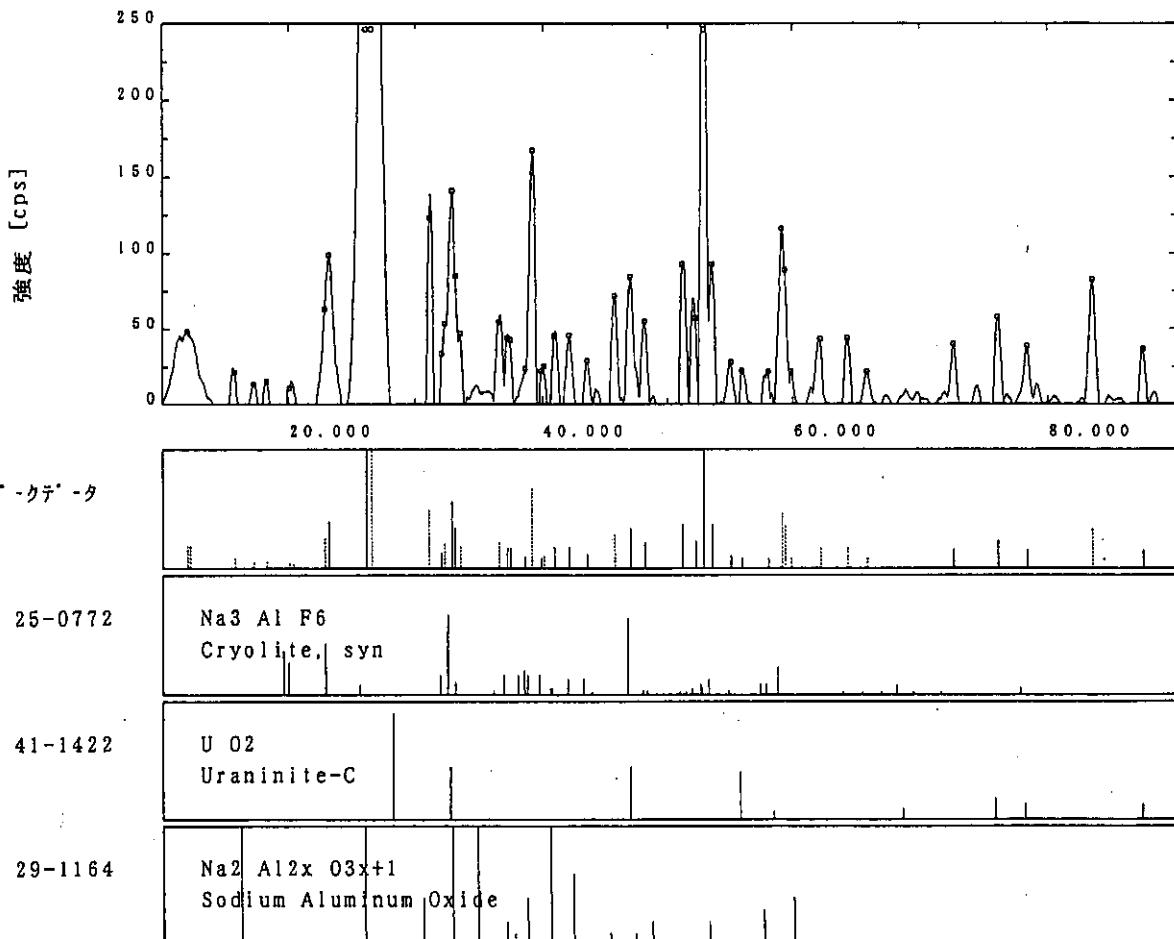
参考文献

- (1) Thonstad, J. : Electrochim. Acta 15,1569 (1970)
- (2) Mashovests, V. P. and Revazyan, A. A.: J. Appl. Chem. USSR 31, 571(1958)
- (3) Paunovic, M.: Electrochim. Metal 3, 373 (1968)
- (4) Foster.P.A. :J.Am.Ceram.Soc.58(7-8),288(1975)
- (5) Stinton,D.A. and Brown,J.J :Submitted to J. Am. Ceram. Soc. Aug. 1975.
- (6) Hplm,J.L. : Dr. techn. Thesis, The Universisty of Trondheim, NTH, Trondheim, 1971.

二次検索

サンプル名 : UF4 (tsubu)
 ファイル : KH1-UF4-20.0070
 コメント : 02/02/20
 メモ : UF4 (tsubu)

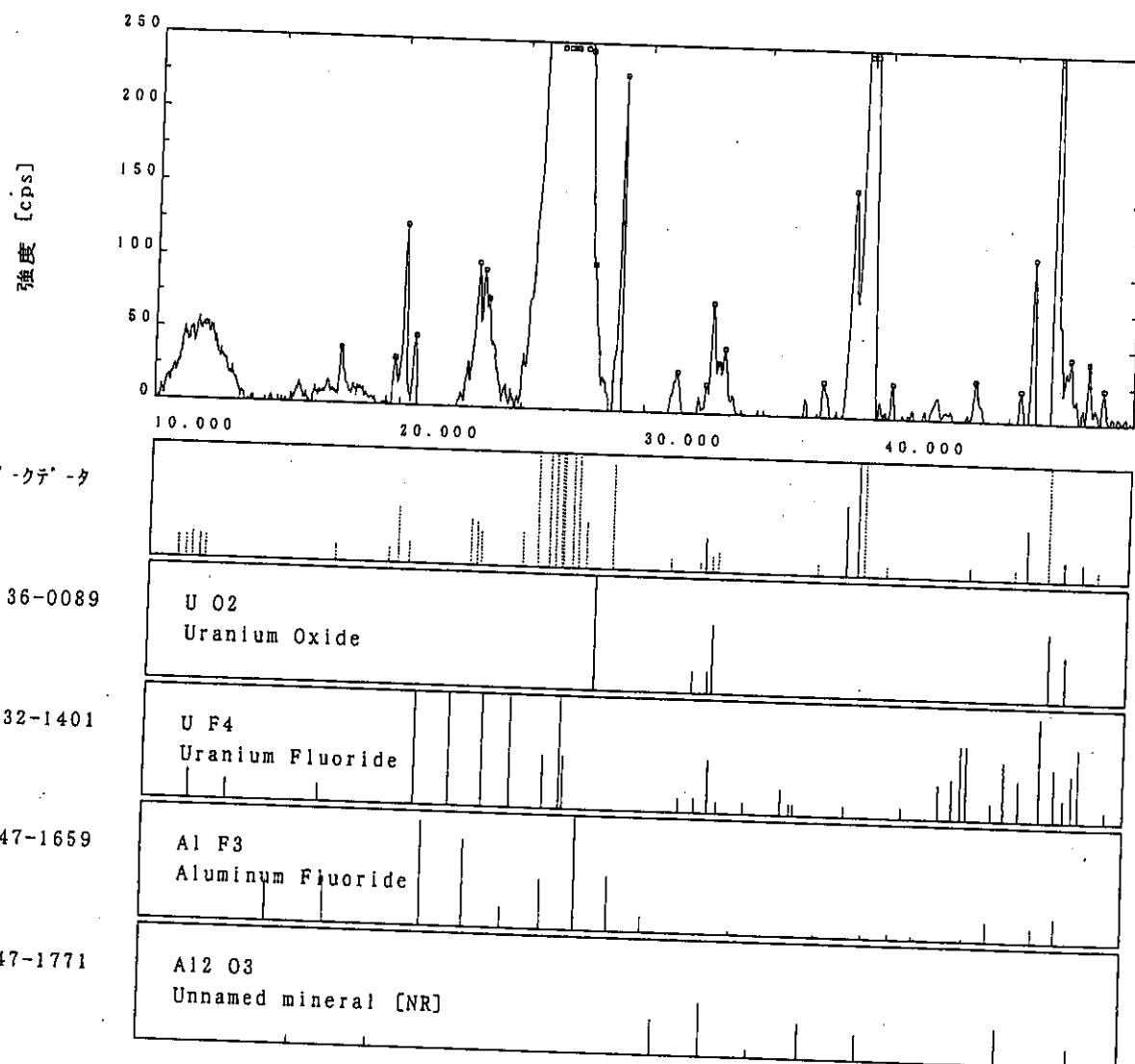
測定日 : 17-Feb-00 14:17
 測定者 : rint



二次検索

サンプル名 : UF4
 ファイル : KHI-UF4-9.0054
 コメント : 02/02/14
 メモ : UF4 solid at 1000

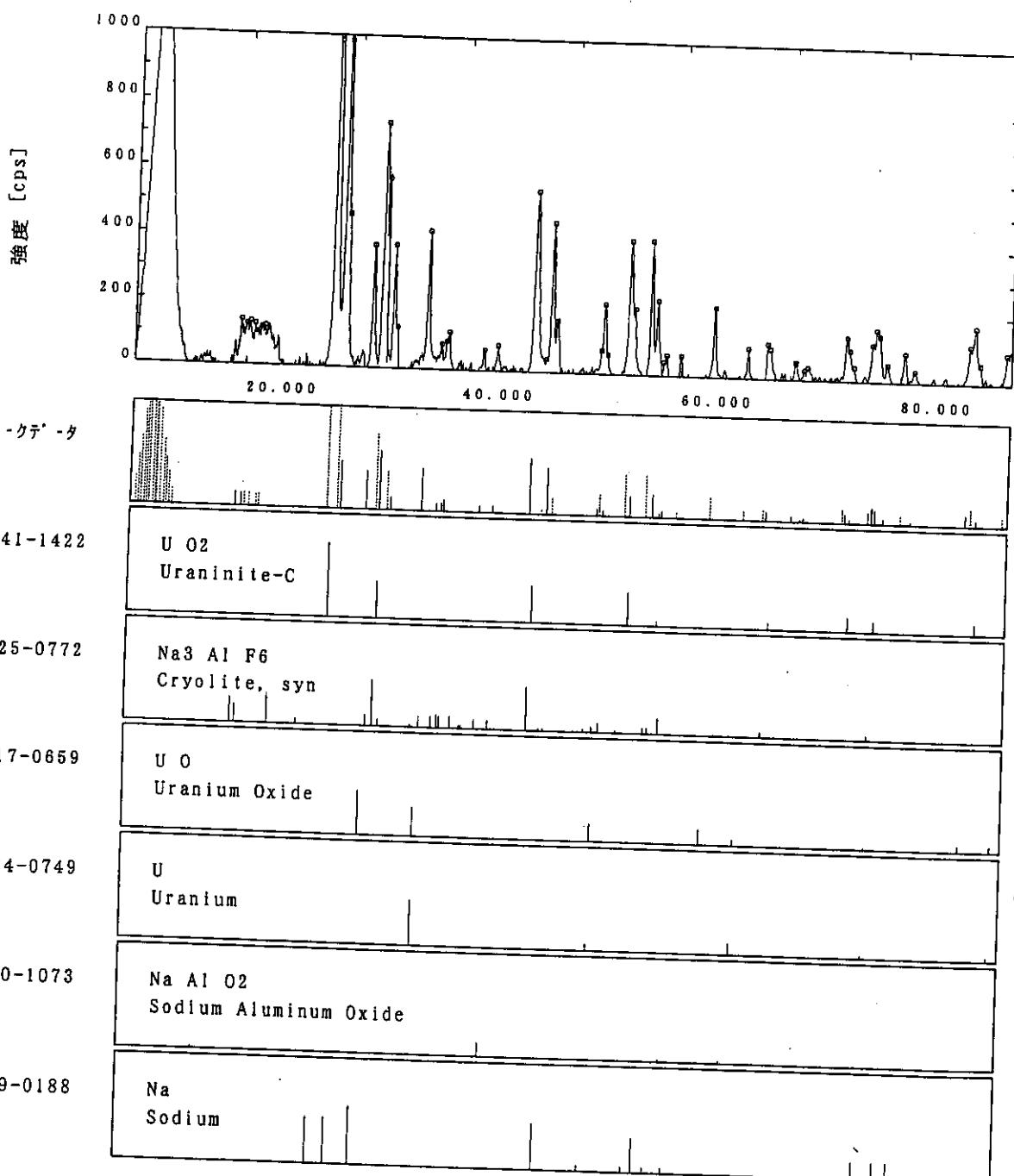
測定日 : 11-Feb-00 16:41
 測定者 : rint



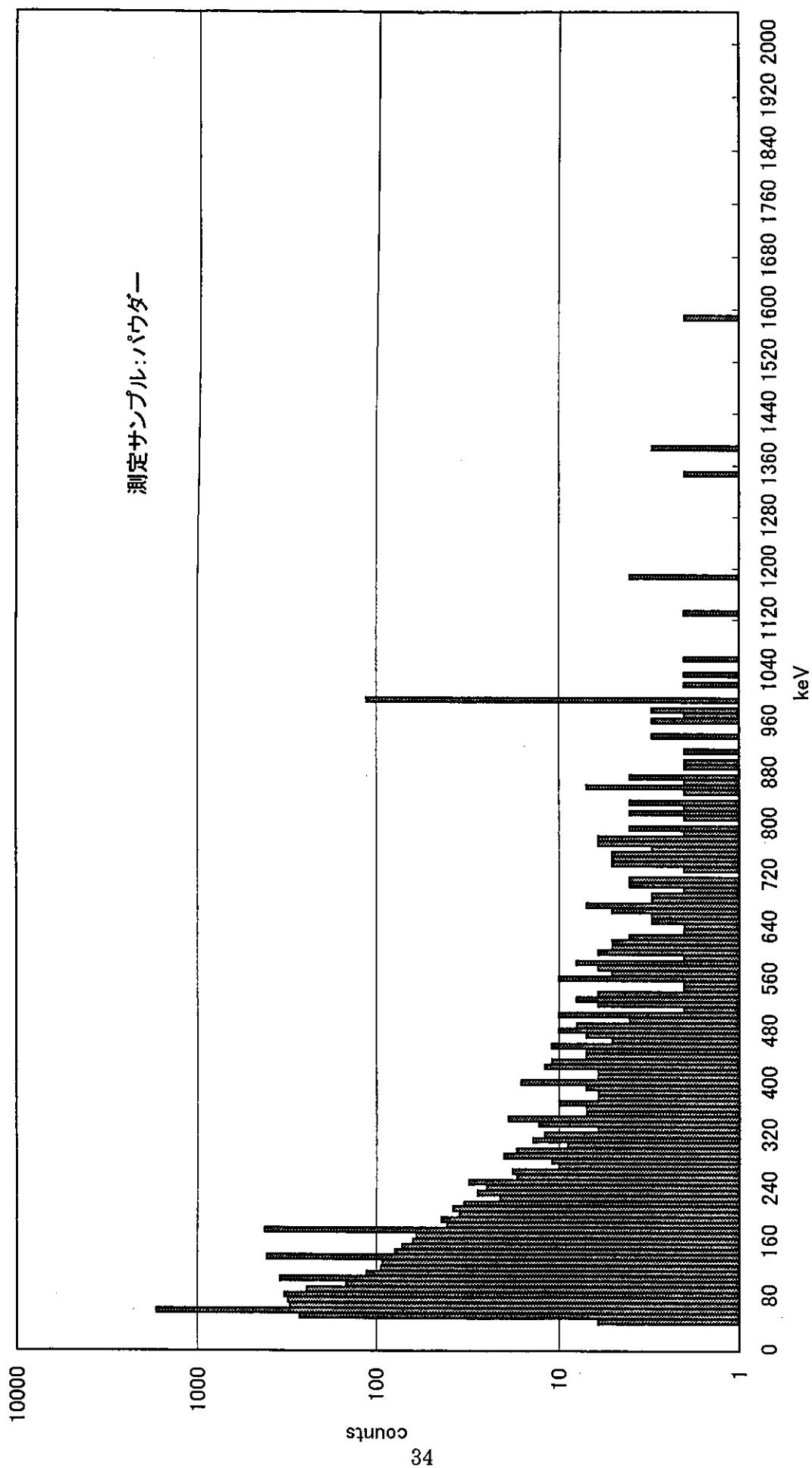
二次検索

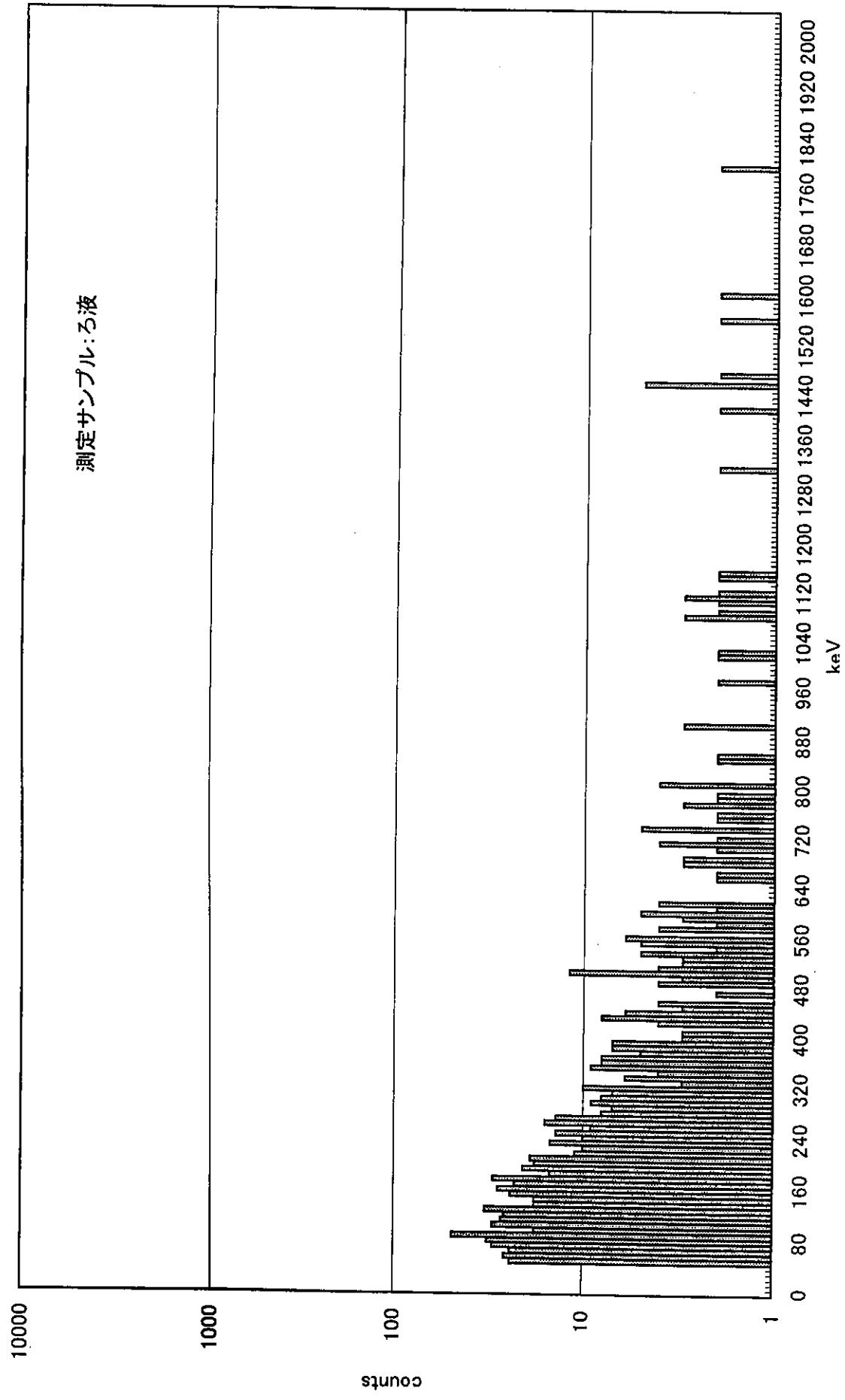
サンプル名 : U-electrode3
 ファイル : KHI-UF4-29.0078
 コメント : 02/02/28
 メモ : U-electrode

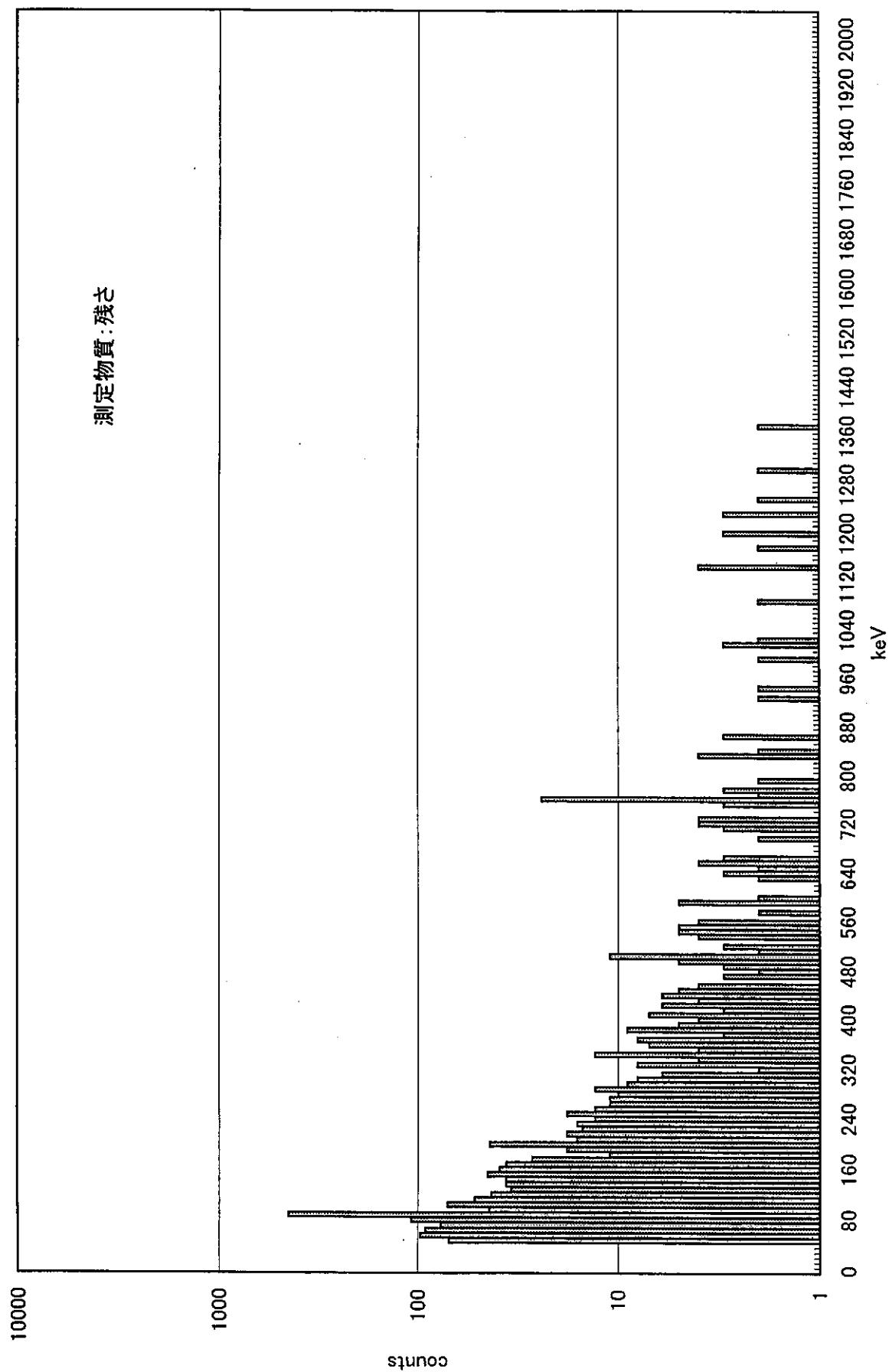
測定日 : 25-Feb-00 18:40
 測定者 : rint

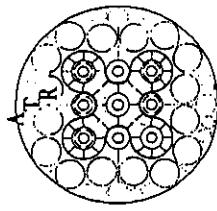


電子









GAMMA-RAY SPECTRUM CATALOGUE

Ge(Li) and Si(Li) SPECTROMETRY

THIRD EDITION
VOLUME 2 OF 2

R. L. HEATH

Aerojet Nuclear Company

PREPARED FOR THE U. S. ATOMIC ENERGY COMMISSION
IDAHO OPERATIONS OFFICE
UNDER CONTRACT NUMBER AT(10-1)-1375

GAMMA-RAY ENERGIES AND INTENSITIES

Nucleide: ^{235}U Half Life: 7.13×10^8 yrDetector: $30 \text{ mm}^2 \times 3 \text{ mm Si(Li)}$

Method of Production: natural

E_γ (KeV)	ΔE_γ	I_γ	ΔI_γ	S
X-rays				
11.12	Th L			
11.37	Pa L			
12.97	Th L			
13.29	Pa L _a			
13.61	U L _a			
14.51	Th L _n			
14.97	Pa L _n & Th L ₉₆			
15.64	Th L _{82,4}			
16.20	Th L ₈₁			
16.70	Pa L ₆₁			
17.22	U L ₈₁			
18.37	Th L ₆₅			
18.93	Th L ₆₁			
19.56	Pa L ₆₁			
20.16	U L ₆₁			
20.36	U L _{63,6}			
25.64	± 0.05			
42.1	± 0.2			
42.8				
^{234}U	53.24	± 0.05		
^{231}Th	56.60	± 0.05		
^{231}Th	72.81	± 0.05		
^{231}Th	81.2	± 0.05		
^{231}Th	82.1	± 0.1		
^{231}Th	84.24	± 0.05		

GAMMA-RAY ENERGIES AND INTENSITIES

Nuc. lide: ^{235}U Half Life: 7.1 (3) $\times 10^8$ yrDetector: 55 cm³ coaxial (c) Ge(Li)

Method of Production: natural

E_{γ} (KeV)	ΔE_{γ}	I_{γ} (relative)	ΔI_{γ}	S
74.92	± 0.03	0.25	± 0.08	4
109.12	± 0.05	2.77	± 0.4	4
NA				
115.2	± 0.5	0.21	± 0.05	4
140.75	± 0.10	0.31	± 0.03	4
143.78	± 0.02	18.0	± 0.92	1
150.96	± 0.03	0.20	± 0.05	4
163.363	± 0.010	8.52	± 0.55	1
173.4	± 0.1	0.03	± 0.01	4
182.72	± 0.2	0.74	± 0.07	4
185.718	± 0.010	100	± 5.0	1
194.94	± 0.02	1.20	± 0.10	2
198.91	± 0.06	0.05	± 0.02	4
202.13	± 0.03	1.54	± 0.10	1
205.311	± 0.012	9.08	± 0.55	1
215.31	± 0.05	0.05	± 0.015	4
221.375	± 0.030	0.22	± 0.02	3
NA				
225.7	± 0.2	0.0032	± 0.001	4
228.8	± 0.1	0.015	± 0.005	4
233.53	± 0.04	0.075	± 0.01	4
240.93	± 0.04	0.14	± 0.03	3
246.83	± 0.04	0.11	± 0.03	3

GAMMA-RAY ENERGIES AND INTENSITIES

Nuclide: ^{238}U Half Life: 4.49×10^9 yrDetector: $4.55 \text{ cm}^2 \times 8 \text{ mm Ge(Li)}$

Method of Production: nat.

E_γ (KeV)	ΔE_γ	I_γ	ΔI_γ	S
(relative)				
0 K x-rays				
131.8	± 0.2	0.433	± 0.03	2
144.2	± 0.1	3.00	± 0.3	3
163.8	± 0.1	1.33	± 0.13	4
186.1	± 0.1	23.3	± 2.3	3
205.6	± 0.1	1.83	± 0.33	4
227.0	± 0.1	2.33	± 0.50	4
258.44	± 0.08	3.60	± 0.50	4
352.07	± 0.15	0.38	± 0.08	4
369.4	± 0.2	0.026	± 0.06	4
388.1	± 0.8	0.06	± 0.02	4
569.27	± 0.05	2.16	± 0.33	3
691.19	± 0.10	1.3	± 0.15	4
699.03	± 0.08	0.78	± 0.12	4
702.06	± 0.08	0.85	± 0.10	4
733.34	± 0.06	1.13	± 0.02	4
742.78	± 0.05	12.2	± 1.0	3
755.22	± 0.13	0.22	± 0.03	4
766.37	± 0.05	40.0	± 3.0	2
781.70	± 0.08	1.17	± 0.20	4
786.26	± 0.05	7.17	± 0.80	3
805.82	± 0.15	2.30	± 0.25	4
819.02	± 0.10	0.48	± 0.06	4
824.89	± 0.06	0.90	± 0.10	4
831.29	± 0.12	1.50	± 0.20	4
851.63	± 0.06	0.95	± 0.10	4
875.89	± 0.12	0.085	± 0.02	4
880.5	± 0.2	3.17	± 0.70	3
883.1	± 0.2	3.0	± 0.7	3

E_γ (KeV)	ΔE_γ	I_γ	ΔI_γ	S
(relative)				
887.3		0.8	± 0.2	4
898.62	± 0.05	1.0	± 0.2	4
921.74	± 0.15	2.16	± 0.28	4
925.95	± 0.07	0.50	± 0.50	3
936.2	± 0.2	0.13	± 0.04	4
946.02	± 0.05	4.50	± 0.6	3
980.47	± 0.07	0.67	± 0.10	4
984.10	± 0.08	0.35	± 0.20	4
995.32	± 0.11	1.02	± 0.20	4
1001.04	± 0.05	100	± 5.0	1
1028.65	± 0.16	0.25	± 0.05	4
1042.17	± 0.12	0.14	± 0.02	4
1061.96	± 0.10	0.48	± 0.05	4
1083.56	± 0.15	0.15	± 0.04	4
1125.08	± 0.07	0.30	± 0.05	4
1150.9	± 0.4	0.03	± 0.01	4
1193.79	± 0.05	1.65	± 0.30	3
1220.24	± 0.16	0.14	± 0.06	4
1226.4	± 0.2	0.08	± 0.03	4
1237.31	± 0.05	0.62	± 0.08	3
1292.87	± 0.12	0.07	± 0.02	4
1352.99	± 0.08	0.15	± 0.04	3
1393.61	± 0.13	0.48	± 0.08	3
1400.2	± 0.2	0.08	± 0.03	4
1414.05	± 0.06	0.32	± 0.05	4
1426.5	± 0.3	0.05	± 0.03	4
1434.30	± 0.07	1.20	± 0.12	3
1445.3	± 0.2	0.06	± 0.02	4
1452.74	± 0.11	0.12	± 0.03	4

E_γ (KeV)	ΔE_γ	I_γ	ΔI_γ	S
(relative)				
1510.33	± 0.06	1.6	± 0.2	2
1527.26	± 0.07	0.28	± 0.05	3
1548.36	± 0.15	0.20	± 0.05	4
1553.84	± 0.06	1.0	± 0.2	3
1668.32	± 0.08	0.18	± 0.04	3
1685.5	± 0.2	0.07	± 0.03	4
1694.24	± 0.12	1.8	± 0.25	3
1737.81	± 0.16	0.20	± 0.05	1
1760.05	± 0.10	1.0	± 0.2	2
1765.52	± 0.06	0.09	± 0.02	4
1796.61	± 0.15	0.45	± 0.05	3
1809.14	± 0.08	0.11	± 0.05	3
1819.86	± 0.11	0.10	± 0.02	3
1831.49	± 0.06	2.20	± 0.3	1
1847.8	± 0.3	0.013	± 0.002	4
1893.58	± 0.08	0.35	± 0.03	2
1899.5	± 0.3	0.01	± 0.002	4
1863.43	± 0.10	0.18	± 0.03	3
1867.75	± 0.07	1.2	± 0.03	1
1875.24	± 0.09	1.2	± 0.03	1
1891.0	± 0.9	0.013	± 0.006	4

GAMMA-RAY ENERGIES AND INTENSITIES

E _γ (KeV)	ΔE _γ	I _γ	ΔI _γ	S	Nuclide: Uranium ore		Detector: 65 cm ³ coaxial Ge(Li)		Method of Production: natural radioactivity		Half Life:	
					E _γ (KeV)	ΔE _γ	I _γ	ΔI _γ	S	E _γ (KeV)	ΔE _γ	
231Pa+234Th	63.3	± 0.4			NA	444.94	± 0.12			21 ⁴ Bi	454.77	± 0.12
NA	67.7	± 0.4			21 ⁴ Bi	461.80	± 0.07			21 ⁴ Bi	469.73	± 0.08
NA	74.8	± 0.4			21 ⁴ Bi	474.46	± 0.12			21 ⁴ Pb	480.43	± 0.08
NA	77.1	± 0.4			21 ⁴ Pb	487.06	± 0.08			DE	511	
231Th	83.8	± 0.3			ann rad					21 ⁴ Pb	533.67	± 0.06
NA	87.20	± 0.3			21 ⁴ Bi	543.42	± 0.10			21 ⁴ Bi	572.70	± 0.06
NA	92.57	± 0.2			21 ⁴ Bi	580.13	± 0.04			21 ⁴ Bi	609.318	± 0.020
U K _{α2} x-ray	94.64	± 0.2			21 ⁴ Bi	615.82	± 0.10			NA	615.82	± 0.10
U K _{α1} x-ray	98.37	± 0.15			NA	632.9	± 0.4			NA	649.16	± 0.20
U K _{β1} x-ray	111.04	± 0.20			21 ⁴ Bi	665.452	± 0.028			21 ⁴ Bi	683.30	± 0.06
U K _{β2} x-ray	114.35	± 0.25			NA	698	± 2			21 ⁴ Bi	703.17	± 0.12
235U+223Ra	143.82	± 0.15			DE	707	± 2			21 ⁴ Bi	710.57	± 0.10
223Ra	154.15	± 0.15			21 ⁴ Bi	719.87	± 0.05			21 ⁴ Pb	766.63	± 0.15
235U	163.29	± 0.12			NA	733.57	± 0.15			21 ⁴ Bi	768.45	± 0.08
235U+226Ra	185.89	± 0.12			DE	742.64	± 0.05			21 ⁴ Bi	785.97	± 0.06
NA	195.70	± 0.20			21 ⁴ Bi	806.19	± 0.06			21 ⁴ Bi	821.20	± 0.08
235U	205.24	± 0.20			NA	826.15	± 0.12			21 ¹ Pb	832.03	± 0.08
227Th+231Umpa	235.85	± 0.18			21 ⁴ Bi	839.05	± 0.06			21 ⁴ Bi	904.24	± 0.18
21 ⁴ Pb+224Ra	241.90	± 0.10			NA	946.04	± 0.10			21 ⁴ Bi	934.079	± 0.025
227Th	256.06	± 0.20			NA	964.08	± 0.07			21 ⁴ Bi	1001.050	± 0.35
21 ⁴ Pb	258.62	± 0.20			NA	1032.37	± 0.10			21 ⁴ Pb		
228Ac+223Ra	269.28	± 0.20										
21 ⁹ Rn	271.08	± 0.25										
21 ⁴ Pb+21 ¹ Bi	274.4	± 0.3										
227Th+231Pa	283.4	± 0.3										
227Th	285.9	± 0.3										
21 ⁴ Pb	295.170	± 0.020										
227Th+231Pa	300	± 2										
227Th	314.0	± 0.5										
223Ra	323.88	± 0.05										
231Pa+227Th	329.85	± 0.06										
227Th	334.02	± 0.08										
228Ac+223Ra	338.32	± 0.06										
21 ⁴ Pb+(211Bi)	342.8	± 0.3										
21 ⁴ Bi	351.900	± 0.028										
21 ⁴ Bi	387	± 1										
21 ⁴ Bi	389	± 1										
21 ⁹ Rn	401.9	± 0.4										
21 ¹ Pb	405.16	± 0.04										
21 ⁴ Bi+21 ¹ Pb	426.8	± 0.3										

(Continued)

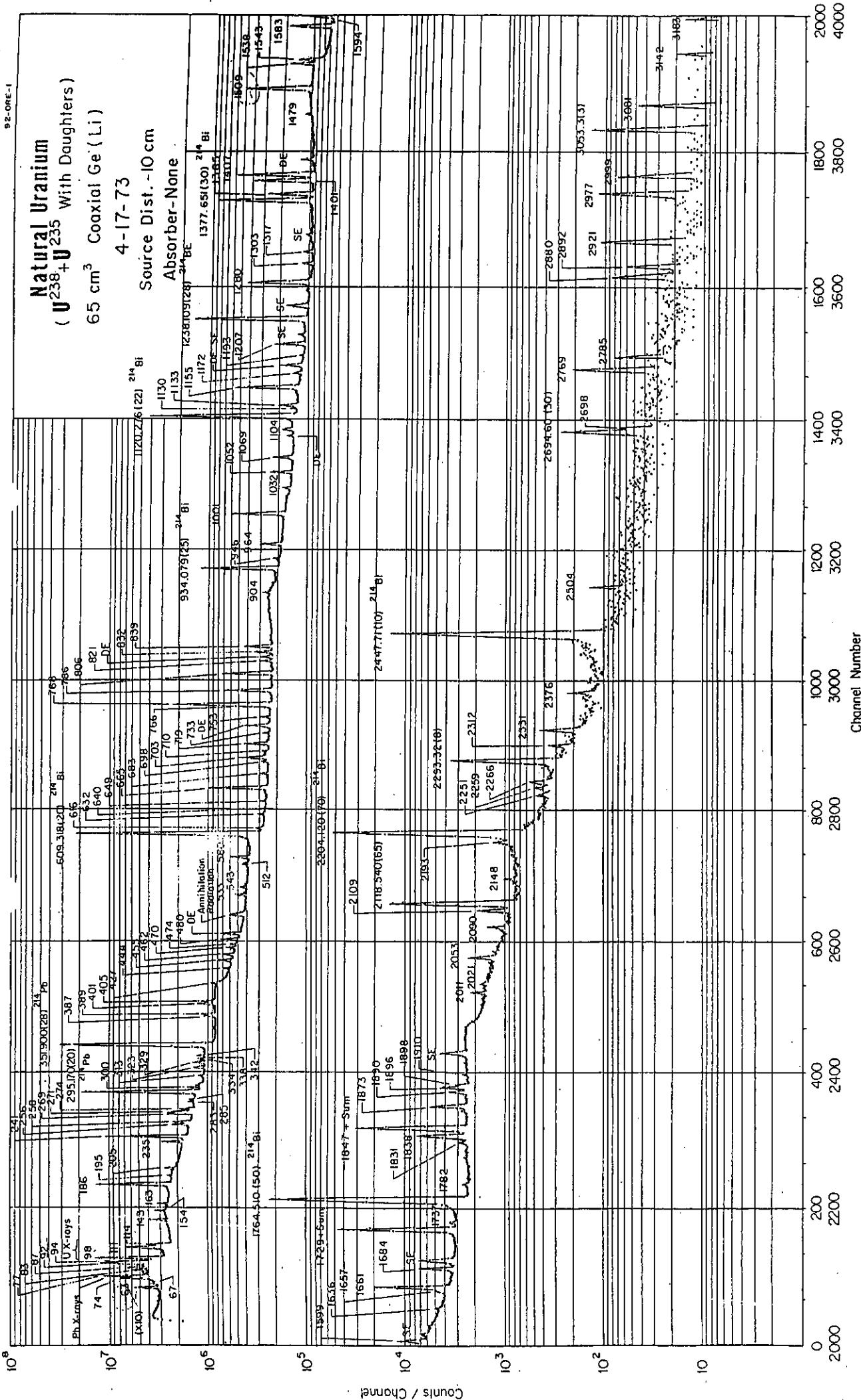
GAMMA-RAY ENERGIES AND INTEGRITIES

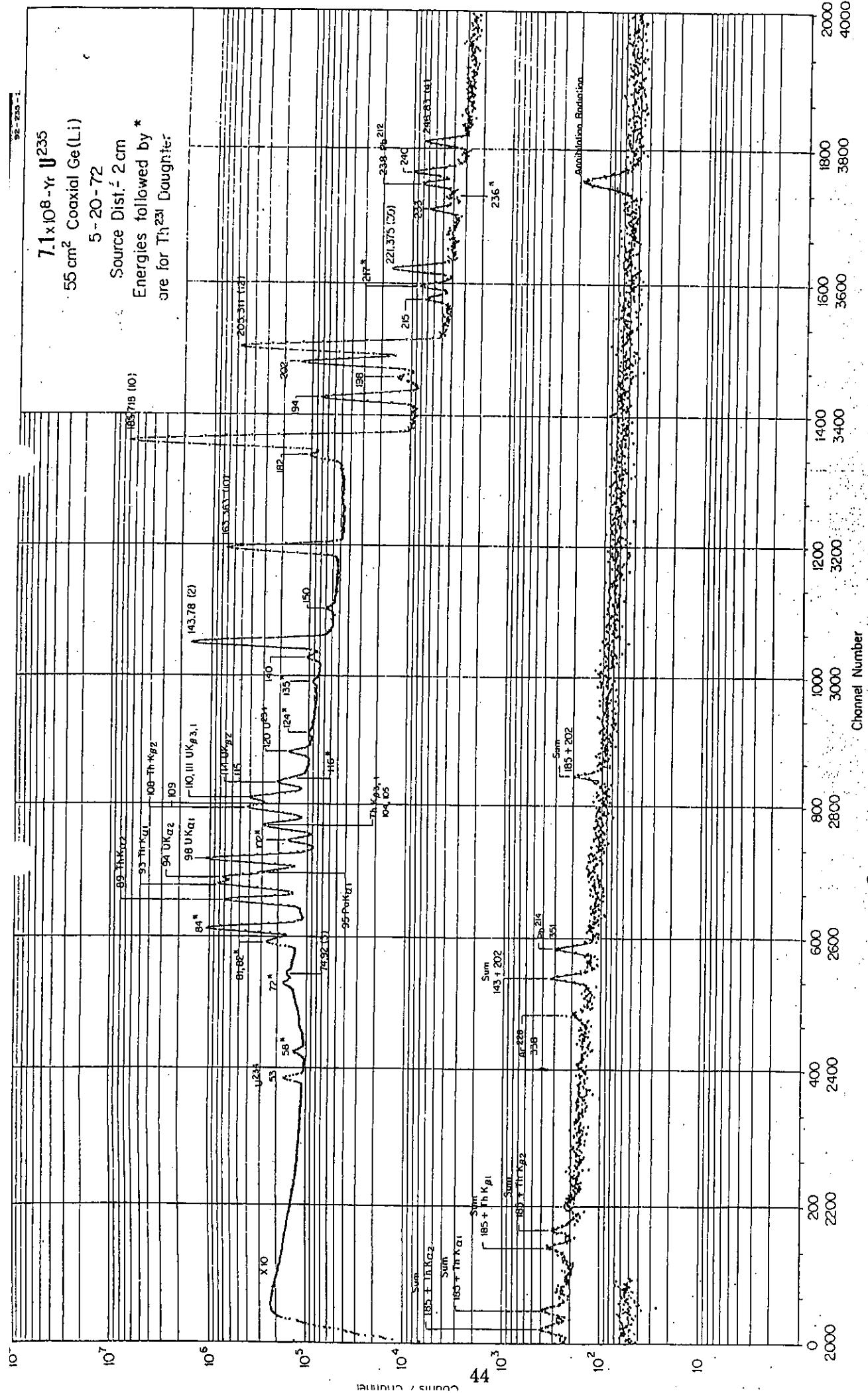
Nucleide: Uranium ore
Detector: 65 cm³ coaxial Ge(Li)

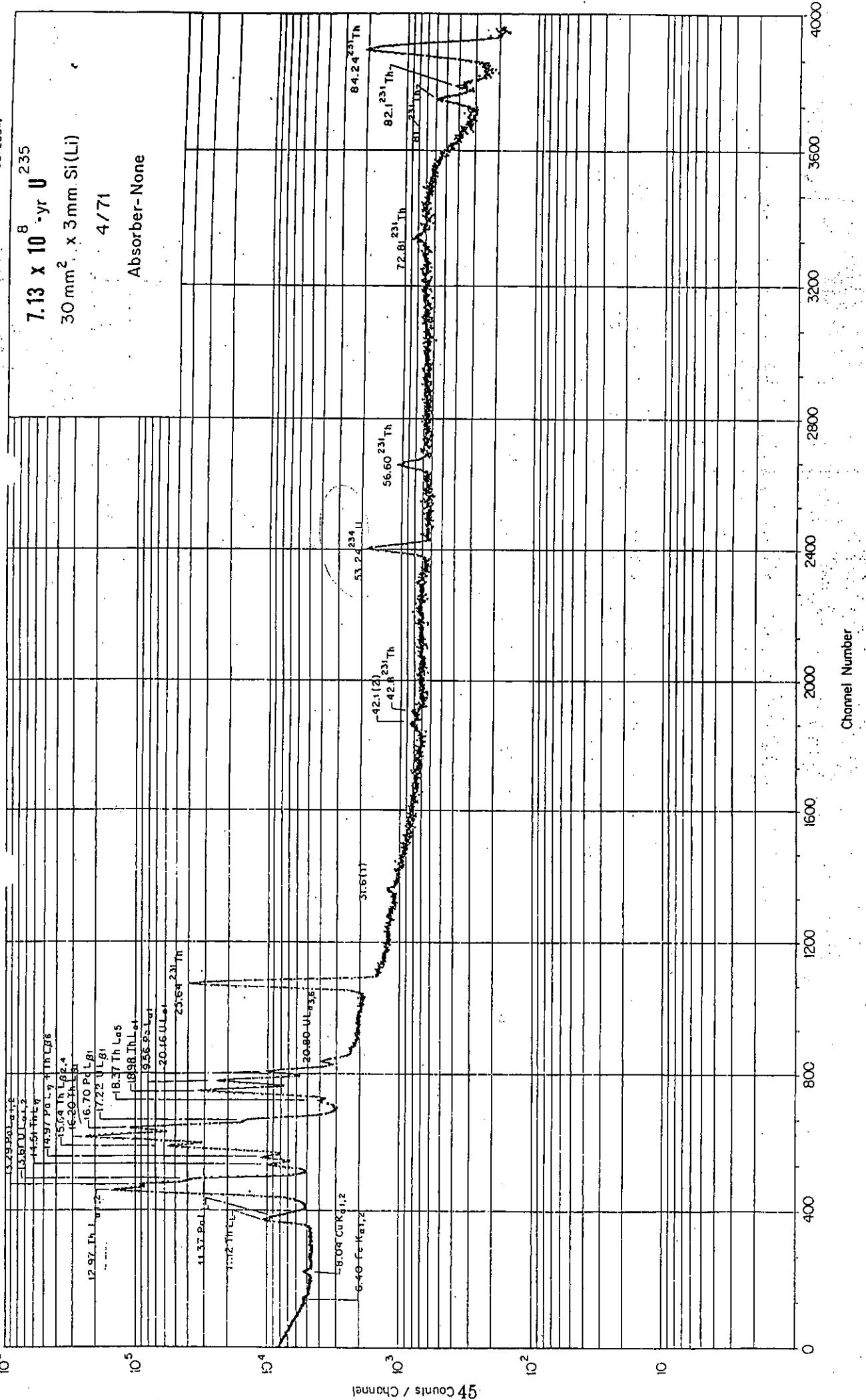
Half Life:

Method of Production: natural radioactivity

E_{γ} (KeV)	ΔE_{γ}	I_{γ}	ΔI_{γ}	S	E_{γ} (KeV)	ΔE_{γ}	I_{γ}	ΔI_{γ}	S
21 ⁴ Bi	1052.00	± 0.05			21 ⁴ Bi	1782.3	± 0.4		
21 ⁴ Bi	1069.95	± 0.05			NA	1831.5	± 0.3		
DE	1096.70	± 0.20			21 ⁴ Bi	1838.43	± 0.08		
21 ⁴ Bi	1104.09	± 0.08			21 ⁴ Bi + 1233+609 sum	1847.49	± 0.06		
21 ⁴ Bi	1120.273	± 0.022			21 ⁴ Bi	1873.27	± 0.08		
NA	1130.19	± 0.12			NA	1890.32	± 0.10		
21 ⁴ Bi	1133.69	± 0.08			21 ⁴ Bi	1896.33	± 0.20		
21 ⁴ Bi	1155.18	± 0.04			NA	1898	± 2		
NA	1172.83	± 0.20			NA	1911.3	± 0.3		
DE+SE	1182.12	± 0.08			SE	1936.49	± 0.08		
NA	1193.61	± 0.25			21 ⁴ Bi	2010.88	± 0.12		
21 ⁴ Bi	1207.71	± 0.05			NA	2021.3	± 0.3		
SE	1218.5	± 0.3			21 ⁴ Bi	2053.01	± 0.18		
21 ⁴ Bi	1238.109	± 0.028			NA	2089.70	± 0.20		
SE	1253.37	± 0.06			NA	2109.93	± 0.12		
21 ⁴ Bi	1280.97	± 0.05			21 ⁴ Bi	2118.540	± 0.065		
21 ⁴ Bi	1303.72	± 0.08			NA	2148.01	± 0.25		
21 ⁴ Bi	1317.04	± 0.20			NA	2193.02	± 0.25		
SE	1336.49	± 0.20			21 ⁴ Bi	2204.120	± 0.070		
21 ⁴ Bi	1377.651	± 0.020			NA	2251	± 3		
21 ⁴ Bi	1385.32	± 0.05			NA	2260	± 3		
21 ⁴ Bi	1401.54	± 0.05			NA	2266.4	± 0.3		
21 ⁴ Bi	1407.99	± 0.04			21 ⁴ Bi	2293.32	± 0.08		
DE	1425.78	± 0.08			NA	2312.5	± 0.3		
NA	1479.2	± 0.3			21 ⁴ Bi	2331.15	± 0.15		
21 ⁴ Bi	1509.24	± 0.05			NA	2316.7	± 0.4		
21 ⁴ Bi	1538.58	± 0.08			21 ⁴ Bi	2447.71	± 0.10		
SE	1543.27	± 0.12			NA	2504.8	± 0.3		
NA	1636.8	± 0.4			21 ⁴ Bi	2693.8	± 0.4		
NA	1657.3	± 0.6			NA	2698			
21 ⁴ Bi	1661.30	± 0.06			21 ⁴ Bi	2769.63	± 0.12		
21 ⁴ Bi + sum	734+609				NA	2785.6	± 0.4		
21 ⁴ Bi	1583.23	± 0.05			21 ⁴ Bi	2880.14	± 0.20		
21 ⁴ Bi	1594.81	± 0.07			21 ⁴ Bi	2921.56	± 0.20		
21 ⁴ Bi	1599.34	± 0.08			21 ⁴ Bi	2978.28	± 0.20		
SE	1607.47	± 0.20			21 ⁴ Bi	2999.72	± 0.20		
NA	1635.8	± 0.4			21 ⁴ Bi	3052.48	± 0.25		
NA	1737.66	± 0.20			NA	3081.3	± 0.4		
21 ⁴ Bi	1764.510	± 0.05			21 ⁴ Bi	3142			
					NA	3183			







4.49×10^9 -yr \bar{U}^{238}

and Pa Daughters

4.55 cm² x 8 mm Ge (Li)

11 - 5 - 71

Source Dist - 2 cm
Thick Source

