

# 高レベル放射性溶液中の全 $\beta$ 放射能分析法

—GM計数管法による全 $\beta$ 分析の適用検討—

1997年11月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4-33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technology Management Section Tokai Works Power Reactor and Nuclear  
Fuel Development Corporation 4-33, Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun,  
Ibaraki-ken 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development  
Corporation) 1997

公開資料  
PNC TN 8410 97-423  
1997年11月

## 高レベル放射性溶液中の全 $\beta$ 放射能分析法

—GM計数管法による全 $\beta$ 分析の適用検討—

報告者 柴 正憲\*\*, 船越 智雅\*  
菅沼 隆\*, 田中 康正\*

### 要旨

RETの分析設計では、高放射性溶液中の全 $\beta$ 放射能分析法としてGM計数管法が設定されている。今回、同法の適用性を確証することを目的として純 $\beta$ 放射体として $^{90}\text{Sr}$ を、また $\beta\gamma$ 放射体として $^{137}\text{Cs}$ を用いたRI試験を行い、端窓型GM計数管の基本特性を把握した。また、軽水炉再処理廃液を用いたホット試験を実施し、高放射性溶液中の全 $\beta$ 分析法として適用できることを確かめた。以下に主要な知見を列記する。

- (1) 0.06～0.66 MeVの $\gamma$ 線に対するGM計数管の検出効率は、0.25%以下であり全 $\beta$ 線測定への影響は無視できる程度であった。
- (2)  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ ) から放射される内部転換電子線は、GM計数管の全計数率に対して正の影響を与えるが、その影響割合は軽水炉再処理廃液の核種組成において、3.5%程度であった。
- (3) 本法により軽水炉再処理廃液中の全 $\beta$ 放射能を定量した結果、 $7.4 \times 10^9 \text{ Bq}/\text{ml}$ ,  $8.3 \times 10^9 \text{ Bq}/\text{ml}$ の定量値を得た。なお、この定量値はORIGEN-2等による指標値に対して概ね一致した。
- (4) 本法の高希釈-直接GM計数管法による全 $\beta$ 放射能分析値の再現精度は、1.8% (RSD) 以内であり、工程分析法として十分である。

---

\* 再処理技術開発部 アクチニドプロセス・分析開発室

\*\* 常陽産業株式会社

# 目 次

1.はじめに	1
2.GM計数管の測定原理及び概要	2
3.分析方法の基本フロー	4
4.試薬及び装置	5
4.1 試 薬	5
4.2 装 置	5
5.試験方法	6
5.1 供試料	6
5.2 $\beta$ 線A $\ell$ 吸収板厚の決定	6
5.3 GM計数管の幾何学的効率の算出	7
5.4 GM計数管の $\beta$ 線に対する検出効率	8
5.5 模擬HA溶液 ( $^{90}\text{Sr}$ - $^{137}\text{Cs}$ ) の分析試験	9
5.6 GM計数管に対する $\gamma$ 線の影響	9
5.6.1 $^{137}\text{Cs}$ ( $^{137m}\text{Ba}$ ) の $\gamma$ 線の検出効率	9
5.6.2 検出効率のエネルギー依存性	10
5.7 内部転換電子線の影響	10
5.8 実HA試料の分析試験	11
5.8.1 実HA試料中の全 $\beta$ 放射能の推定計算	11
5.8.2 実HA試料中の全 $\beta$ 放射能分析	12
5.9 高周波焼付処理による計数率の影響	12

6. 検討結果及び考察	.....	1 3
6. 1 $\beta$ 線用A $\ell$ 吸収板厚の決定	.....	1 3
6. 2 GM計数管の幾何学的効率の算出	.....	1 3
6. 3 GM計数管の $\beta$ 線に対する検出効率	.....	1 3
6. 4 模擬HA溶液 ( $^{90}\text{Sr}$ - $^{137}\text{Cs}$ ) の分析試験	.....	1 4
6. 5 GM計数管に対する $\gamma$ 線の影響	.....	1 4
6. 5. 1 $^{137}\text{Cs}$ ( $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ) の検出効率	.....	1 4
6. 5. 2 検出効率のエネルギー依存性	.....	1 5
6. 6 内部転換電子線の影響	.....	1 6
6. 7 実HA試料の分析試験	.....	1 7
6. 7. 1 実HA試料中の全 $\beta$ 放射能の推定	.....	1 7
6. 7. 2 実HA試料中の全 $\beta$ 放射能分析	.....	1 7
6. 8 高周波焼付処理による計数値への影響	.....	1 8
7. まとめ	.....	1 9
8. 参考文献	.....	2 0

## 図表リスト

図－ 1	気体を用いた検出器のパルス式動作	2 1
図－ 2	印加電圧に対するパルス波高値	2 2
図－ 3	計数管入射窓半径と試料半径の比と幾何学的効率の関係	2 3
図－ 4	$A\ell$ 吸収板による $^{90}\text{Sr}$ ( $^{90}\text{Y}$ ) の $\beta$ 線吸収曲線	2 4
図－ 5	$\gamma$ 線に対する GM 計数管検出効率のエネルギー依存性	2 5
表－ 1	$^{90}\text{Sr}$ ( $^{90}\text{Y}$ ) 溶液の放射能濃度	2 6
表－ 2	模擬 HA 溶液の放射能濃度	2 6
表－ 3	$^{137}\text{Cs}$ ( $^{137m}\text{Ba}$ ) 溶液の放射能濃度	2 7
表－ 4	$^{90}\text{Sr}$ , $^{137}\text{Cs}$ 溶液の放射能濃度	2 7
表－ 5	$A\ell$ 吸収板厚と計数率の関係 (1)	2 8
表－ 6	$A\ell$ 吸収板厚と計数率の関係 (2)	2 8
表－ 7	GM 計数管の $\beta$ 線に対する検出効率	2 9
表－ 8	全 $\beta$ $\gamma$ 計数値に対する全 $\gamma$ 計数率の寄与率	2 9
表－ 9	各エネルギー放射線の $A\ell$ 中の最大飛程	3 0
表－ 10	$A\ell$ 吸収板による $\beta$ 線及び内部転換電子線の遮へい効果 (1)	3 1
表－ 11	$A\ell$ 吸収板による $\beta$ 線及び内部転換電子線の遮へい効果 (2)	3 2
表－ 12	$^{137}\text{Cs}$ ( $^{137m}\text{Ba}$ ) の $\gamma$ 線に対する GM 計数管の検出効率	3 3
表－ 13	内部転換電子の寄与率	3 4
表－ 14	ORIGIN-2 による放射能存在比の推定 (1)	3 5
表－ 15	$\gamma$ 線エネルギー分析による放射能存在比の推定 (1)	3 6
表－ 16	ORIGIN-2 による放射能存在比の推定 (2)	3 7
表－ 17	$\gamma$ 線エネルギー分析による放射能存在比の推定 (2)	3 8
表－ 18	実測値及び指標値から推定した全 $\beta$ 放射能濃度 (1)	3 9
表－ 19	実測値及び指標値から推定した全 $\beta$ 放射能濃度 (2)	4 0

表- 2 0	GM計数管による実HAWの測定結果（1）	4 1
表- 2 1	GM計数管による実HAWの測定結果（2）	4 2
表- 2 2	実HAW中の正味の全 $\beta$ 放射能濃度	4 3
表- 2 3	高周波焼付処理による計数率への影響確認結果	4 4
別添	内部転換電子について	4 5

# 1. はじめに

RETF（リサイクル機器試験施設）における取扱放射能収支を評価するため、高レベル放射性溶液（以下「HA試料」と記す）中の全 $\beta$ 放射能分析が設定されており、分析設計における定量手法は、GM計数管法による直接計測となっている。本試験は、GM計数管法による高放射性廃液中の全 $\beta$ 放射能分析の適用性を評価することを目的としている。

HA試料中の主要な $\beta$ 核種としては、純 $\beta$ 放射体の $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ )、 $^{90}\text{Tc}$ 、 $^{147}\text{Pm}$ 、 $\beta\gamma$ 放射体の $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{106}\text{Ru}$ 、 $^{144}\text{Ce}$ が含有されている。 $\beta$ 線の計測方法は分析の対象となる試料の物理的形状（固体、液体、気体、試料の容量、試料の広がり）や $\beta$ 線のエネルギー、スペクトル測定の要否あるいは、ターゲットとなる核種及び核種数によっても大きく異なる。その多様な分析に対応するためには、試料及び各検出器の特徴を組み合わせて最も適当な測定方法を選択することが望ましい。従来、 $\beta$ 線の計測に用いられている機器としては、GM計数管、比例計数管及び $4\pi$ 型ガスフロー計数管などガス体を利用した全放射能計測装置あるいは液体シンチレーションカウンタ、Si半導体検出器を用いた波高分析装置が一般的である。しかし、いずれの分析装置においても単核種の計測用として広く利用されているものであり、複数の核種が混在する試料の場合は、 $\gamma$ 線または電子線の干渉あるいは各核種のスペクトルの重複により測定精度が不充分である。そのためこれらの試料の分析においては、化学的な核種分離操作を付加するのが一般的である。

今回は、GM計数管に対する $\gamma$ 線、電子線の寄与を詳細に調査し、全 $\beta$ 放射能分析への適用性を評価することにした。 $\beta$ 線の計測は、その検出感度、取扱い易さなどからGM計数管などのガス体を利用した計数装置が最も適当であるが、HA試料のようにターゲットとなる核種の $\beta$ 線放出と同時に $\gamma$ 線及び電子線を放出する試料への適用性を実証しておく必要がある。そこで、 $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) 標準溶液、 $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) -  $^{137}\text{Cs}$ 混合標準溶液及び、実高レベル放射性廃液を用いた試験を実施し、試料の全計数値に与える $\gamma$ 線及び電子線の寄与率、 $\gamma$ 線に対するGM計数管検出効率のエネルギー依存性等を評価し、CPFに受け入れた軽水炉再処理廃液（調整高レベル放射性廃液）中の全 $\beta$ 放射能の定量を行った。本報告書は、その結果を取りまとめたものである。

## 2. GM計数管の測定原理及び概要

GM計数管、電離箱及び比例計数管は最も古くから用いられてきたもので、現在においても非常に有用な検出器として用いられている。これら検出器の共通点は、いづれも気体の電離を利用して放射線を検出するということである。この方式の検出器は、図-1のような外壁から絶縁された中心電極をもち、それに抵抗Rを通して電圧Vが加えられる。抵抗Rには、コンデンサC<sub>2</sub>が並列につながっている。いま、1個の放射線粒子によって検出器内でN<sub>1</sub>個のイオン対が生じたとする。外壁は負、中心電極は正になっており、正の電荷は壁方向へ、負の電荷は中心電極方向へ掃引される。時定数RC<sub>2</sub>が電荷が集められるのに必要な時間より長い場合には、コンデンサにたまる電荷Qは、電圧Vの関数として図-2の曲線1のようになる。N<sub>1</sub>よりずっと多くのイオン対が生じる場合には曲線2のようになる。これらの曲線は四つの領域に分けることができる。

領域Ⅰは、再結合によるイオン対の消滅と電極に向かって移動する電荷との競り合いが行われている領域である。電場の強さを増加させるにつれて、イオンの移動速度が増加する。これによって、集められる電荷の割合も増大するようになる。

領域Ⅱでは、再結合で消滅する電荷が無視できるほど小さく、従って集められた電荷は

$$Q_1 = N_{1e} \quad \text{及び} \quad Q_2 = N_{2e}$$

である。C<sub>2</sub>の両端の電圧の変化量は、

$$\Delta V_1 = N_{1e}/C \quad \text{及び} \quad \Delta V_2 = N_{2e}/C$$

となる。ここでCは電離箱の持つ静電容量とC<sub>2</sub>との和である。この領域は飽和領域または電離箱領域と呼ばれる。

領域Ⅲはガス增幅が行われ、生じた電荷の倍率はMで増倍される。一次電離で生じた電子は十分に加速され、気体分子と衝突して第二の電離を作る。これによって増倍が行われる。領域Ⅲの開始点では増倍率Mは一次電離の量とは無関係で、印加電圧のみの関係となっている。従って、出力パルスの大きさは一次電離の量に比例することになる。この比例性は印加電圧が増加するにつれて悪くなり、領域Ⅲの上限では、もはや一次電離の量とは無関係になくなってしまう。このⅢの領域は、比例計数管領域といわれ、ガス增幅作用が行われて、しかも出力パルスと一次電離量との関連性が残されている領域である。

領域IVは集められた電荷の量が一次電離の量と無関係になっている領域であって、GM領域といわれる。図-2に示すように集められたイオンの数は印加電圧と無関係である。ただし、このこととGM計数管のプラトー特性と混同しないように注意する必要がある。この領域で動作する検出器をGM計数管と呼ぶ。この検出器では、管中の電離が微少でも信号が出力されるので管中で電離を生ずる放射線ならば、どの様なものでも検出できる特徴を持っている。また、他の検出器では検出できないような小さな比電離を持つものでも検出することが可能である。 $\alpha$ 粒子のような高い比電離をもつ放射線を検出するのにも使用できるが、このような粒子では飛程が短いので薄い窓のGM計数管を用いるか、または線源自身を管中に入れることが必要である。

### 3. 分析方法の基本フロー

本試験の分析方法は、対象となる試料が液体であることから試料自体による自己吸収を極力低減することを重視した基本フローとした。方法としては、まず試料（HA試料）を一定量採取し、アンバー区域で取り扱える線量当量レベル（ $200 \mu\text{Sv}/\text{hr}$ 以下）まで1M硝酸で直接希釈する。次に希釈液を一定量分取し、予熱してあるホットプレート上のステンレス製試料皿へ塗布し、蒸発・乾固する。試料はGM計数管で5～10分の測定時間で直接計測を行う。得られた計数値は、予め求めてある検出効率を用い(1)式に従って放射能濃度（ $\text{Bq}/\text{m}^3$ ）を算出する。

全 $\beta$ 放射能濃度（ $\text{Bq}/\text{m}^3$ ）

$$= \left( \frac{\text{N s}}{\text{N b}} - \frac{\text{T s}}{\text{T b}} \right) \times \frac{1}{60} \times \frac{E}{100} \times \frac{1}{W} \times D \quad \dots \dots \dots \quad (1)$$

- |                       |                           |
|-----------------------|---------------------------|
| N s : 試料の全計数値(Counts) | W : 試料塗布量( $\text{m}^3$ ) |
| T s : 自然計数値(Counts)   | E : 検出効率(%)               |
| N b : 試料の計数時間(min)    | D : 希釈倍率(-)               |
| T b : 自然計数値の計数時間(min) |                           |

## 4. 試薬及び装置

### 4.1 試薬

- (1)  $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) 標準溶液 (アマシャムジャパン社製)
- (2)  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ ) 標準溶液 (アマシャムジャパン社製)
- (3)  $^{241}\text{Am}$  標準線源 (アマシャムジャパン社製 点状線源)
- (4)  $^{133}\text{Ba}$  標準線源 (アマシャムジャパン社製 点状線源)
- (5) 硝酸 (関東化学製 試薬特級)

### 4.2 装置

- (1) GM管検出器 : アロカ社製 GP シリーズ  
GM管 GM-5004型 (端窓型)  
窓厚  $2.0 \sim 3 \text{ mg/cm}^2$   
有効径  $50 \text{ mm } \phi$
- (2) ハンディスケーラー : アロカ社製 TDC シリーズ
- (3) 高周波焼付装置 : 高野電気社製 THF-2000
- (4) ホットプレート : Corning 社製 PC シリーズ
- (5) オートピッパー : ニチリョウ社製 MK-III型
- (6)  $\beta$ 線吸収用 Al 板 :  $60 \text{ mm } \phi \times 0.6, 1, 2, 3, 4 \text{ mm } t$
- (7) ステンレス製試料皿 : (株)ニシノ製  $25 \text{ mm } \phi \times 4 \text{ mm } h$  (SUS)

## 5. 試験方法

### 5.1 供試料

- (1)  $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) ,  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ ) 単核種溶液
- (2) 模擬H A溶液 ( $^{90}\text{Sr}$ - $^{137}\text{Cs}$ 混合溶液)
- (4) 第9回再処理工場受入H A W (第9回H A Wと記す)
- (3) 第10回再処理工場受入H A W (第10回H A Wと記す)

### 5.2 $\beta$ 線用A $\ell$ 吸収板厚の決定

再処理工程におけるH A試料中には数多くのF P核種が混在しており、そのほとんどが $\beta\gamma$ 放射体 ( $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Tc}$ 等の純 $\beta$ 放射体を除く) であり、GM計数管による直接測定では、 $\gamma$ 線が全計数率に正の誤差を与えることが予想される。従って、GM計数管による直接測定において全 $\beta$ 線の計数率を正しく求めるためには、 $\gamma$ 線の影響を正しく求め、寄与分を差し引く必要がある。

本項では $\gamma$ 線に対するGM計数管の検出効率を評価するために、まず、 $\beta$ 核種及び $\gamma$ 核種が混在した試料から放出される $\beta$ 線のみを遮へい可能なA  $\ell$ 吸収板厚を決定する試験を実施した。検討における $\beta$ 線のエネルギー条件は、 $\beta$ 核種中で最もエネルギーの高い $^{90}\text{Y}$  ( $E\beta$ : 2.28 MeV) とし、以下の(2)式によりA  $\ell$ 中での $\beta$ 線最大飛程 ( $\text{g}/\text{cm}^2$ )、すなわちA  $\ell$ 吸収板厚 (mm) を算出した。

$$R_{AL} (\text{g}/\text{cm}^2) = 0.542 E\beta - 0.133 \quad (E\beta > 0.8 \text{ MeV}) \quad \dots \dots \dots \quad (2)$$

(アイソトープ便覧)

ここで、 $R_{AL}$  :  $\beta$ 線最大飛程 ( $\text{g}/\text{cm}^2$ )

$E\beta$  :  $\beta$ 線エネルギー (MeV)

次に、前記(2)式の計算によって求めた $\beta$ 線最大飛程の妥当性を確認するため、1, 2, 3, 4 mm厚の各A $\ell$ 吸収板を用い $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ )標準溶液の $\beta$ 線の減衰比を実測した。また、この実測値を基にプロットした $\beta$ 線の吸収曲線と(3)式の減衰計算による吸収曲線の一致性も合わせて評価した。

$$N = N_0 e^{-\mu f} \quad \dots \dots \dots \quad (3)$$

(放射線概論)

ここで、 $N$  : A $\ell$ 吸収板透過後の $\beta$ 線計数率 (cpm)

$N_0$  : A $\ell$ 吸収板透過前の $\beta$ 線計数率 (cpm)

$\mu$  : 吸収係数 (cm<sup>2</sup>/g)

$f$  :  $\beta$ 線の最大飛程 (g/cm<sup>2</sup>)

### 5.3 GM計数管の幾何学的効率の算出

GM計数管の計数効率は、計数管入射窓と試料との距離、試料の形状等の幾何学的条件によって影響を受けるため、検出効率を算出するにあたっては、あらかじめGM計数管の幾何学的効率を確認しておく必要がある。しかし、本試験で使用する試料の形状が円板状であるため、手計算による幾何学的効率の算出は困難である。そこで、まず点状線源を用いた場合の幾何学的効率( $f_g$ )を(4)式によって求め、図-3に示す計数管窓の半径 $r$ に対する円板状線源の半径 $d$ 及び計数管窓と線源間距離 $h$ などの幾何学的条件から求めた補正計数A(%)の値を $f_g$ 値に乗ずることで、本試験で使用するGM計数管の幾何学的効率( $F_G$ )を近似的に算出した。

$$f_g = \frac{1}{2} \left[ 1 - \frac{h}{(h^2 + r^2)^{1/2}} \right] \quad \dots \dots \dots \quad (4)$$

(アイソトープ手帳)

ここで、 $f_g$  : 点状線源の幾何学的効率,  $r$  : 計数管窓の半径

$h$  : 窓-線源間の距離  $d$  : 円板状線源の半径

$$F_G = f_s \times A \quad \dots \dots \dots \quad (5)$$

ここで、 $F_G$  : 平板状線源の幾何学的効率 (%)

$f_s$  : 点状線源の幾何学的効率

$A$  : 補正係数 (%)

#### 5.4 GM計数管の $\beta$ 線に対する検出効率

本項では、 $\beta$ 放射能の定量に不可欠なGM計数管の $\beta$ 線に対する検出効率の算出、及び検出効率の濃度依存性について確認することを目的として、 $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) 標準溶液を用いた測定試験を実施した。

試験方法は、表-1に示す濃度に調整した $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) 標準溶液の一定量をステンレス製試料皿に塗布して乾固させ、GM計数管により全計数率を測定し、その測定値から(7)式により検出効率及び検出効率の濃度依存性を評価した。なお、本試験においては、計数誤差の要因を極力排除するため $^{90}\text{Sr}$ の $\beta$ 線 (0.55 MeV) を $\text{Al}$ 吸収板を用いて遮へいし、放射平衡核種の $^{90}\text{Y}$ の $\beta$ 線 ( $E_\beta$ : 2.28 MeV) 計数率から検出効率を算出した。 $\text{Al}$ 吸収板厚決定のための $^{90}\text{Sr}$ の最大飛程 ( $\text{g}/\text{cm}^2$ ) は以下の(6)式に準じて求めた。

$$R_{AL} (\text{g}/\text{cm}^2) = 0.407 E_\beta^{1.38} \quad \dots \dots \dots \quad (6)$$

( $0.8 \text{ MeV} > E_\beta > 0.15 \text{ MeV}$ )

(アイソトープ便覧)

$$E = (N_s - N_B) / D \times 100 \quad \dots \dots \dots \quad (7)$$

ここで、 $E$  : 検出効率 (%) ,  $N_s$  : 全計数率 (d p s)

$N_B$  : 自然計数率 (d p s) ,  $D$  : 核種の放射能 (Bq)

### 5.5 模擬H A溶液 ( $^{90}\text{Sr}$ - $^{137}\text{Cs}$ 混合溶液) の分析試験

再処理プロセスにおける実H A試料中の主要な $\beta$ 放射体は $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) であり, $\gamma$ 放射体は $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ ) である。従って、GM計数管による実H A試料の直接測定における全計数率には $\gamma$ 線の計数率が含まれることが考えられる。そこで、この代表2核種を混合した模擬H A溶液をGM計数管により測定し、 $\gamma$ 線の影響度を概観することにした。

試験手順は、表-2に示す核種濃度に調製した模擬H A溶液の一定量をスンレス製試料皿に塗布、乾固した後、直接測定により全計数率（全 $\beta\gamma$ 計数率）を、また5.2項で決定した4mm厚のA l吸收板を設置した後の計数率（全 $\gamma$ 計数率）をそれぞれ測定し、次式により $\gamma$ 線の寄与率を算出した。

$$I_t = T\gamma / T\beta\gamma \times 100 \quad \dots \dots \dots \quad (8)$$

ここで、 $I_t$  :  $\gamma$ 線の寄与率 (%)

$T\gamma$  : 4mm厚A l吸收板設置後の全計数率 (cpm)

$T\beta\gamma$  : 直接測定による全計数率 (cpm)

### 5.6 GM計数管に対する $\gamma$ 線の影響

#### 5.6.1 $^{137}\text{Cs}$ ( $^{137m}\text{Ba}$ ) $\gamma$ 線の検出効率

GM計数管の $\gamma$ 線に対する検出効率を把握するため、表-3に示す濃度に調製した $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ )溶液を用いた測定試験を行った。

評価対象となる放射線は、 $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ )の放射平衡核種である $^{137m}\text{Ba}$ から放出される $\gamma$ 線となるため、測定時に妨害となる $^{137}\text{Cs}$  (0.51MeV)の $\beta$ 線及び内部転換電子線 (0.62MeV)を予め遮へいしておく必要がある。これらの各放射線は、 $^{137}\text{Cs}$ の $\beta$ 線は(6)式に準じて、また、内部転換電子線は、以下の(9)式によって得たA l中の最大飛程 ( $\text{g}/\text{cm}^2$ )から決定した最適な厚さのA l吸收板を用いて遮へいした後、 $\gamma$ 線の計数率を測定し、5.4項(7)式に準じて検出効率を算出した。

$$R_{\text{est}} = 0.412 E^{1.265-0.0954} \quad (2.5 > E > 0.01 \text{ MeV}) \quad \dots \dots \dots \quad (9)$$

(アイソトープ便覧)

### 5.6.2 検出効率のエネルギー依存性

GM計数管の $\gamma$ 線検出効率に対するエネルギー依存性の有無を確認するため、特にGM計数管内で阻止される可能性のある低エネルギー $\gamma$ 線領域に着目した試験を実施した。

試験手順は、低エネルギー $\gamma$ 核種として $^{241}\text{Am}$ (0.06 MeV),  $^{133}\text{Ba}$ (0.36 MeV)の密封線源を用い、それぞれの全計数率から前項(7)式により各核種毎の検出効率を求め、前項の試験で得た $^{137}\text{Cs}$ ( $^{137m}\text{Ba}$ )の検出効率と比較・評価した。

### 5.7 内部転換電子線の影響

本項では、 $^{137}\text{Cs}$ ( $^{137m}\text{Ba}$ )から10%の割合で放出される内部転換電子線による全 $\beta$ 線計数率への寄与率を評価した。

試験は、純 $\beta$ 放射体として $^{90}\text{Sr}$ ( $^{90}\text{Y}$ )標準溶液を、 $\beta\gamma$ 放射体として $^{137}\text{Cs}$ ( $^{137m}\text{Ba}$ )標準溶液を選定し、表-4に示す同一の濃度に調整した測定試料を前記と同様の手順によって測定した。、それぞれの核種の計数率を1Bq当たりの計数率に換算した後、(10)式によって内部転換電子線の寄与率を算出した。

別添資料に内部転換電子線に関する概説を示した。

$$I_e = (C - S) / S \times 100 \quad \dots \dots \dots \quad (10)$$

ここで、 $I_e$ ：内部転換電子線の寄与率(%)、

$$\begin{aligned} C &: {}^{137}\text{Cs} \quad ({}^{137m}\text{Ba}) \quad 1 \text{Bq} \text{当たりの計数率 (cps/Bq)} \\ S &: {}^{90}\text{Sr} \quad ({}^{90}\text{Y}) \quad 1 \text{Bq} \text{当たりの計数率 (cps/Bq)} \end{aligned}$$

## 5.8 実H A試料の分析試験

前項までの試験結果を総合的に確証することを目的として、再処理工場の実高レベル廃液を用いて分析試験を実施した。

### 5.8.1 実H A試料中の全 $\beta$ 放射能の推定計算

全 $\beta$ 放射能濃度が既知の実H A試料を入手することは困難である。従って、本試験に用いる実H A試料中の主要な $\beta\gamma$ 放射体は、 $\gamma$ 線エネルギー分析による $\gamma$ 核種の分析値により $^{90}\text{Tc}$ はD C P発光分析により値付けした。また、その他の純 $\beta$ 放射体はORIGIN-2による計算データを基に簡易計算により推定し、これらの合算値を全 $\beta$ 放射能の指標値とした。なお対象試料は、第9回及び10回受入調整HAWとし、評価核種は、 $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Y}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ 及び $^{99}\text{Tc}$ の8核種とした。

実HAW中の全 $\beta$ 放射能推定計算（指標値の算出方法）の手順を以下に示す。

- (1)  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ )などの $\beta\gamma$ 放射体は、 $\gamma$ 線エネルギー分析法で $\gamma$ 核種を分析し、この分析値から放射能濃度を算出する。
- (2)  $^{99}\text{Tc}$ は、D C P発光分析による元素分析値から放射能濃度を算出する。
- (3)  $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ )は、ORIGIN-2による計算値を基に $^{137}\text{Cs}$ に対する放射能存在比を求め、これを(1)で得た $^{137}\text{Cs}$ の分析値に乗じて評価上の $^{90}\text{Sr}$ の放射能濃度を決定する。また $^{90}\text{Y}$ については $^{90}\text{Sr}$ の永続平衡核種であるので、 $^{90}\text{Sr}$ と同値を $^{90}\text{Y}$ の放射能濃度とする。
- (4)  $^{147}\text{Pm}$ についても(3)と同様の考えに基づき、 $^{137}\text{Cs}$ に対する $^{147}\text{Pm}$ の放射能存在比を求め、(1)項で得た $^{137}\text{Cs}$ の分析値にこれに乘じて評価上の $^{147}\text{Pm}$ の放射能濃度とする。
- (5) 前記(1), (2), (3)及び(4)で得た各核種濃度を合算し、全 $\beta$ 放射能濃度の指標値を求める。

### 5.8.2 実H A試料の全 $\beta$ 放射能分析

本分析法の適用性を総合的に評価することを目的に、前項において全 $\beta$ 放射能濃度を決定した2種の実HAWについて、5.6項と同様の試験条件により全 $\beta$ 放射能を測定し、計算値との比較評価を行った。なお、分析値の評価においては、以下の(11)及び(12)式に準じて計算値と実分析値の一致性、 $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ) の内部転換電子線による全 $\beta$ 分析値への寄与率及び本分析法の全操作における再現精度を合わせて評価した。

実HAWは、1N硝酸で10万倍に希釈した後、ステンレス製試料皿に50μlを塗布して加熱、乾固し測定試料とした。

$$\text{寄与率 (\%)} = \frac{^{137}\text{Cs 分析値} \times I_e}{\text{GM 計数管による実測値}} \times 100 \quad \dots \quad (11)$$

$$\text{誤差率 (\%)} = \frac{(\text{実分析値} - \text{指標値})}{\text{指標値}} \times 100 \quad \dots \dots \dots \quad (12)$$

## 5.9 高周波焼付処理による計数率の影響

本分析法において設定している測定試料溶液の処理条件は、約90℃の熱板（ホットプレート）上での蒸発・乾固処理であるが、実際のHA試料の放射能測定においては、汚染管理をより確実に行うため高周波焼付処理による試料皿への固定化が望ましい。しかし、高周波加熱法では、試料皿が900℃以上の高温に加熱されるため、処理の段階で試料中の揮発性核種が揮散し、分析値に負の影響を与えることが考えられる。よって本項では、ホットプレートでの乾固処理及び高周波焼付処理両者の前処理による計数率を比較し、揮発損失の有無を評価した。

## 6. 検討結果及び考察

### 6.1 $\beta$ 線用 $A_{\ell}$ 吸収板厚の決定

5.2項(2)式による $^{90}\text{Y}$  ( $2.28 \text{ MeV}$ ) の $\beta$ 線を対象とした理論上の $A_{\ell}$  中最大飛程 ( $\text{g}/\text{cm}^2$ ) は、 $1.10 \text{ g}/\text{cm}^2$  であり、これは $A_{\ell}$  吸収板厚として、 $4 \text{ mm}$ に相当することが分かった。また、この計算値を実験的に確認するため 1, 2, 3, 及び 4  $\text{mm}$  厚の $A_{\ell}$  吸収板を用い、 $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) 溶液の $\beta$ 線を実測し、 $A_{\ell}$  吸収板厚と $\beta$ 線の減衰比との関係を表す吸収曲線を作成した。その結果、表-5、表-6 に示すように、厚さ  $4 \text{ mm}$  の $A_{\ell}$  吸収板を設置した場合の $\beta$ 線の計数率は、ほぼバックグラウンドレベル (BKG) に達し、図-4 の $\beta$ 線吸収曲線も計算による吸収曲線と良い一致を示した。

以上のことから、厚さ  $4 \text{ mm}$  の $A_{\ell}$  吸収板により、HA 試料中の核種から放射される $\beta$ 線をほぼ完全に吸収できることが確認できた。

### 6.2 GM 計数管の幾何学的効率の算出

本試験で使用する GM 計数管の幾何学的効率を 5.3 項(4)及び(5)式により近似的に計算した。その結果、計数管入射窓と線源間の距離を  $20 \text{ mm}$ 、線源形状を  $10 \text{ mm} \phi$  の円板状、計数管入射窓の半径を  $2.5 \text{ mm}$ とした条件における本 GM 計数管の幾何学的効率は、 $18.4\%$  であった。

### 6.3 GM 計数管の $\beta$ 線に対する検出効率

$^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) 単核種溶液を用いて $\beta$ 線の検出効率を測定した。その結果、表-7 に示したように、 $4 \text{ mm}$  の $A_{\ell}$  吸収板により  $^{90}\text{Sr}$  ( $0.55 \text{ MeV}$ ) の $\beta$ 線を遮へいした後の $^{90}\text{Y}$  の検出効率は、 $^{90}\text{Y}$  溶液濃度  $4.4 \times 10^2 \text{ Bq}/\text{ml}$  については  $19.2\%$ 、 $^{90}\text{Y}$  溶液濃度  $4.4 \times 10^3 \text{ Bq}/\text{ml}$  については  $19.5\%$  であり、同等の結果を得た。また、6.2 項で算出した円板状試料の幾何学的効率 ( $18.4\%$ ) とも概ね一致した。

## 6.4 模擬HA溶液 ( $^{90}\text{Sr}$ - $^{137}\text{Cs}$ 混合溶液) の分析試験

GM計数管による全 $\beta$ 線の測定における $\gamma$ 線の影響を概観することを目的として、 $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) 及び  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ ) 2核種を混合した模擬HA溶液の測定試験を行った。実験は直接測定による全計数率(全 $\beta\gamma$ 計数率)と、6.1項で選定した4mm厚のA $\ell$ 吸収板設置による計数率( $\gamma$ 計数率)測定を行い、両者の計数率から全 $\beta\gamma$ 計数率に対する $\gamma$ 線計数率の寄与率を算出した。その結果、表-8に示すように、模擬HA溶液の核種濃度比における $\beta\gamma$ 計数率に対する $\gamma$ 線の寄与率は0.2~0.5%程度の微少であった。これは、GM計数管の放射能阻止能が  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ ) などの $\gamma$ 線エネルギーに対して著しく小さいことによるものと考えられる。

## 6.5 GM計数管に対する $\gamma$ 線の影響

### 6.5.1 $^{137}\text{Cs}$ ( $^{137m}\text{Ba}$ ) $\gamma$ 線の検出効率

$^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ ) 単核種溶液を用い $\gamma$ 線に対するGM計数管の検出効率を測定した。本試験において影響因子となる  $^{137}\text{Cs}$  の $\beta$ 線(0.51MeV)及び  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ ) の内部転換電子線(0.62MeV)を予めA $\ell$ 吸収板で遮へいし、 $\gamma$ 線の正味の計数率を測定した。各エネルギー別放射線のA $\ell$ 中最大飛程(g/cm<sup>2</sup>)は、 $^{137}\text{Cs}$  の $\beta$ 線は5.2項(2)式から  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ ) の内部転換電子線は、5.6.1項(9)式から求めた。その結果、表-9にまとめたように前者の最大飛程は0.16g/cm<sup>2</sup>(A $\ell$ 板0.6mm相当)、後者は0.24g/cm<sup>2</sup>(A $\ell$ 板0.9mm相当)であり  $^{137m}\text{Ba}$  の $\gamma$ 線を測定するためには、0.9mm以上のA $\ell$ 吸収板により $\beta$ 線及び内部転換電子線を遮へいする必要があることが分かった。

次に、この計算結果を実験的に確認するため0.6, 1, 2及び4mmのA $\ell$ 吸収板を遮へい板として用い、 $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ ) 単核種溶液を測定した。その結果、表-10及び表-11に示すように、1mm厚以上のA $\ell$ 吸収板設置時の計数率は  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ )  $4.0 \times 10^3$  Bq/ml溶液で10~11cpm,  $4.0 \times 10^4$  Bq/ml溶液では59~61cpmと一定しており、計算上のA $\ell$ 板厚0.9mmが妥当であることが確認できた。また、各々の計数率から5.4項(7)式によって求めた $\gamma$ 線の検出効率

は、表-12に示すように0.05, 0.08%と $\beta$ 線の検出効率(約19%)に対して十分低く、検出効率の濃度依存性も測定誤差の範囲内であった。

以上の結果から、GM計数管による $\beta\gamma$ 放射体を含むHA試料の直接測定によって得られる計数率は、ほぼ全 $\beta$ 線計数率とみなすことができ、全計数率に対する $\gamma$ 線の影響は無視できることが確認できた。

なお、本試験ではAl吸収板による $^{137}\text{Cs}$ ( $^{137m}\text{Ba}$ )の $\gamma$ 線の減衰は(13)式から無視できるものとして評価した。

$$I = I_0 e^{-\mu d} \quad \dots \quad (13)$$

ここで、 $I$  : 吸収体を通過した後の $\gamma$ 線計数率

$I_0$  : 吸収体を通過する前の $\gamma$ 線計数率

$\mu$  : 線減衰係数( $\text{cm}^{-1}$ )

$d$  : 吸収体の厚さ( $\text{cm}$ )

### 6.5.2 検出効率のエネルギー依存性

低エネルギー $\gamma$ 線による影響を把握するため、前記6.5.1項と同一の条件において $^{241}\text{Am}$ (0.06MeV)及び $^{133}\text{Ba}$ (0.36MeV)密封線源によるGM計数管の検出効率を測定した。

その結果、図-5のように各核種の検出効率は、 $^{241}\text{Am}$ が0.18%,  $^{133}\text{Ba}$ が0.25%であり、 $^{137m}\text{Ba}$ (0.66MeV)の検出効率よりも若干高値を示した。しかし、この値は $\beta$ 線の検出効率に対して1/6000~1/8000程度であり低エネルギー $\gamma$ 線による影響も問題にならないことが確認できた。

## 6. 6 内部転換電子線の影響

GM計数管による全 $\beta$ 線の測定に与える影響因子として $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ ) より放射される内部転換電子線が考えられる。本試験においても、6.5.1項の表-10及び11に示す結果から明らかなように、 $^{137}\text{Cs}$  の $\beta$ 線を阻止可能な0.6mm厚のAl吸収板設置後における計数率は、1mm厚以上のAl吸収板の計数率を明らかに上回っており、内部転換電子線など $\beta$ 線及び $\gamma$ 線以外の放射線の存在を示唆する結果が得られている。

表-13は、この内部転換電子線の影響を評価するため、同等の放射能濃度に調製した $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) 及び $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ ) 溶液をGM計数管で直接測定し、両者の1Bq当たりの計数率を比較評価したものである。表-13から明らかなように、後者の計数率 (11.98 cpm/Bq) は、前者の計数率 (10.68 cpm/Bq) を上回っており、これが $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ ) の内部転換電子線の影響と考えられ、その寄与率は+11%となった。しかし、実際のHA試料の場合、娘核種の $^{90}\text{Y}$ を含む $^{90}\text{Sr}$  と $^{137}\text{Cs}$  の放射能比は、約2対1となることから、全計数率に対する内部転換電子線の寄与率は、さらにその1/3の+3.7%以下に低減されるものと推定される。

## 6.7 実H A試料の分析試験

### 6.7.1 実H A試料中の全 $\beta$ 放射能の推定

再処理工場より受け入れた第9回及び第10回HAWについて、5.8.1項の手順に準じて全 $\beta$ 放射能を推定し確証試験の試料として供した。

表-18、表-19に示すように、簡易計算によって求めた実H A試料中の全 $\beta$ 放射能濃度の指標値は、第9回HAWが $5.99 \times 10^8$  Bq/m $\ell$ 、第10回HAWが $6.95 \times 10^8$  Bq/m $\ell$ となった。なお、この計算手法の有効性を評価するため、 $\gamma$ 線エネルギー分析で定量した核種について最も存在量の多い $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ )に対する各核種の放射能比を求め、この値とORIGEN-2計算による $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ )と各核種の放射能比との整合性を確認した。その結果、表-14～表-17に示すように両者の放射能比は概ね一致しており、計算により求めた値が分析方法の正確さを評価するための指標値として適用できるものと判断した。

### 6.7.2 実H A試料の全 $\beta$ 放射能分析

第9回及び第10回HAWの全 $\beta$ 放射能濃度を以下の条件に基づいて分析した。その結果、表-20及び表-21に示すように、第9回HAWが $7.60 \times 10^8$  Bq/m $\ell$ 、第10回HAWが $8.57 \times 10^8$  Bq/m $\ell$ の定量値を得た。また、同試料の並行測定における相対標準偏差 (RSD) は、1.1～1.8%と良好であった。

この定量値は、 $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137m}\text{Ba}$ ) からの内部転換電子線による正の影響を含んでおり、正味の全 $\beta$ 放射能濃度とは言えない。しかし、この定量値を基に5.8.2項(1)式に準じて計算した内部転換電子線の寄与率は、+3.3%程度であり、6.6項で推定した結果 (+3.7%) ともほぼ一致することが確認できた。

但し、この寄与率を基に各HAWの正味の全 $\beta$ 放射能濃度を補正するとともに、この値を用いて6.7.1項で算出した各HAWの指標値に対する分析値の誤差率を5.8.2項(12)式に準じて算出した。その結果、表-22のように内部転換電子線の寄与分を除いた正味の全 $\beta$ 放射能濃度は、第9回HAWが $7.35 \times 10^8$  Bq/m $\ell$ 、第10回HAWが $8.29 \times 10^8$  Bq/m $\ell$ であり、指標値に対する誤差率は、+19～23%であり、 $\gamma$ スペクトル分析及びORIGIN-2による計算誤差を考慮した場合、+

分であった。

#### 6.8 高周波焼付処理による計数率への影響確認試験

表-2 3に実HA試料を用いた計測試料溶液の高周波焼付処理による計数率への影響試験の結果を示す。表から明らかなように、ホットプレートによる試料溶液の乾固処理及び乾固後の試料の高周波焼付処理を経たそれぞれの試料皿の計数率には有意な差が認められないことから、測定対象核種の揮散による損失は無視できることが分かった。

## 7. まとめ

GM計数管法による高放射性溶液中の全 $\beta$ 分析法の適用性を確証することを目的として、 $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ )、 $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ) を用いた RI 試験及び実HAWを用いたホット試験を行い、以下の知見を明らかにした。

- (1)  $^{90}\text{Y}$  (2.28 MeV) の $\beta$ 線の $A \ell$ 中最大飛程は  $1.10 \text{ g/cm}^2$  であり、これは $A \ell$ 板 4 mm に相当することを計算により明らかにした。また、この計算値は実験値と一致することを確かめた。
- (2) GM計数管の $\beta$ 線に対する検出効率は約 19 % であり、計算によって求めた幾何学的効率 (18.4 %) と概ね一致した。
- (3) GM計数管の $\gamma$ 線に対する検出効率は 0.25 % 以下であり、 $\beta$ 線の検出効率 (19 %) に対して十分低いことが分かった。
- (4)  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ) から放射される内部転換電子線は、GM計数管の計数率に正の影響を与える。しかし、その寄与度（影響割合）は、実HAWの分析において 3.5 % 程度であることが分かった。
- (5) ORIGEN-2 により計算した軽水炉再処理廃液の核種組成比は、 $\gamma$ 線エネルギー分析により定量した核種組成比と概ね一致した。
- (6) 本分析操作により再処理工場より受け入れた第 9 回及び第 10 回 HAW 中の全 $\beta$ 放射能を分析した結果、 $7.60 \times 10^9 \text{ Bq}/\text{ml}$ 、 $8.57 \times 10^9 \text{ Bq}/\text{ml}$  の定量値が得られ、この結果は、ORIGEN-2 等による指標値に対して +23 % 以内の誤差率であった。
- (7) 放射性試料の固定化をより確実化するために行う高周波焼付処理は、対象核種の揮散などの影響を与えないことが分かった。

以上のことから、RET F の分析設計において設定される GM 計数管法は、高放射性溶液中の全 $\beta$ 放射能分析法として十分適用できることを確認した。

## 8. 参考文献

- (1) 西野 治他 プライス放射線計測, コロナ社
- (2) アンソートープ便覧 (改定3版) 日本アイソープ協会, 丸善
- (3) アイソートープ手帳 (改定8版) 日本アイソープ協会, 丸善
- (4) 石川 友清編 放射線概論, (株)通商産業研究社
- (5) 川島 勝弘他 放射線測定技術 (株)通商産業研究社
- (6) 分析マニュアルー1 (工程分析編 PNC SN8520 86-15)
- (7) 標準分析作業法 (C P F分析編 1991年12月)

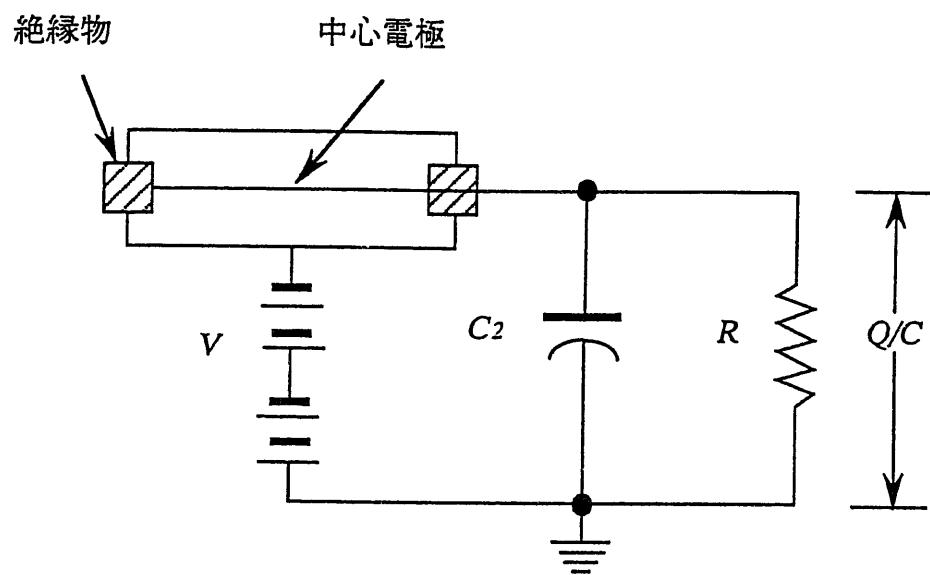


図-1 気体を用いた検出器のパルス式動作

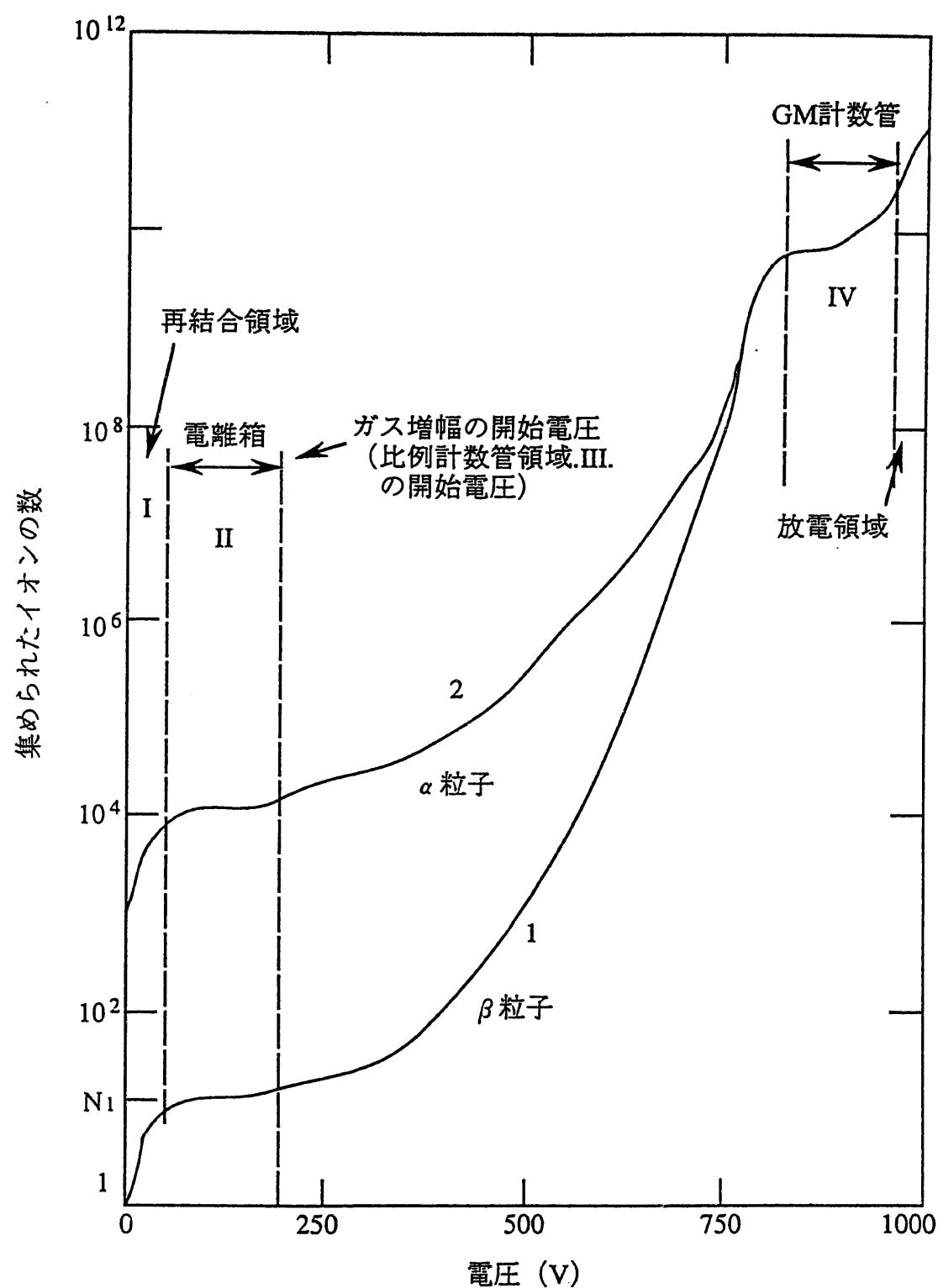


図-2 印加電圧に対するパルス波高値

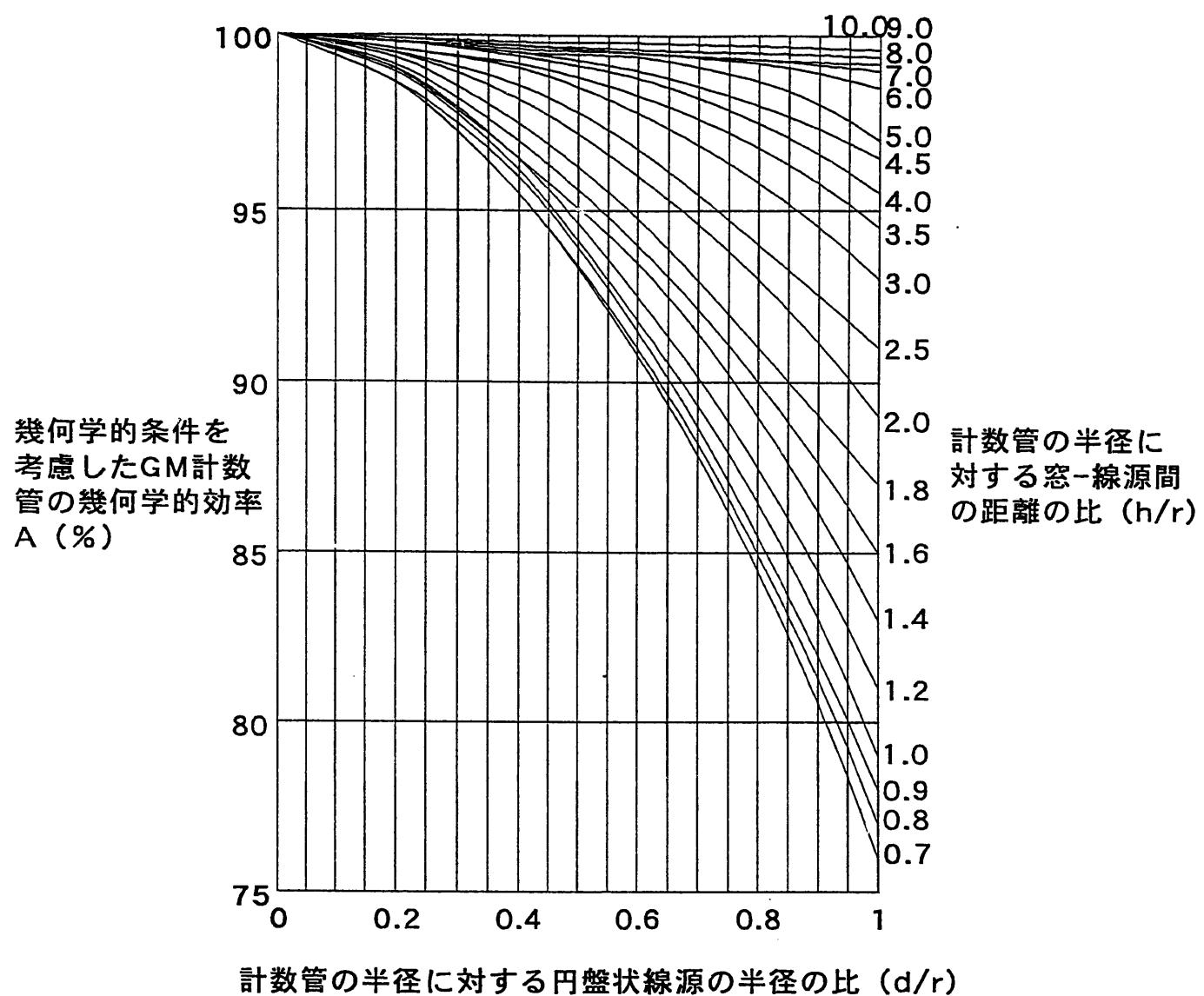
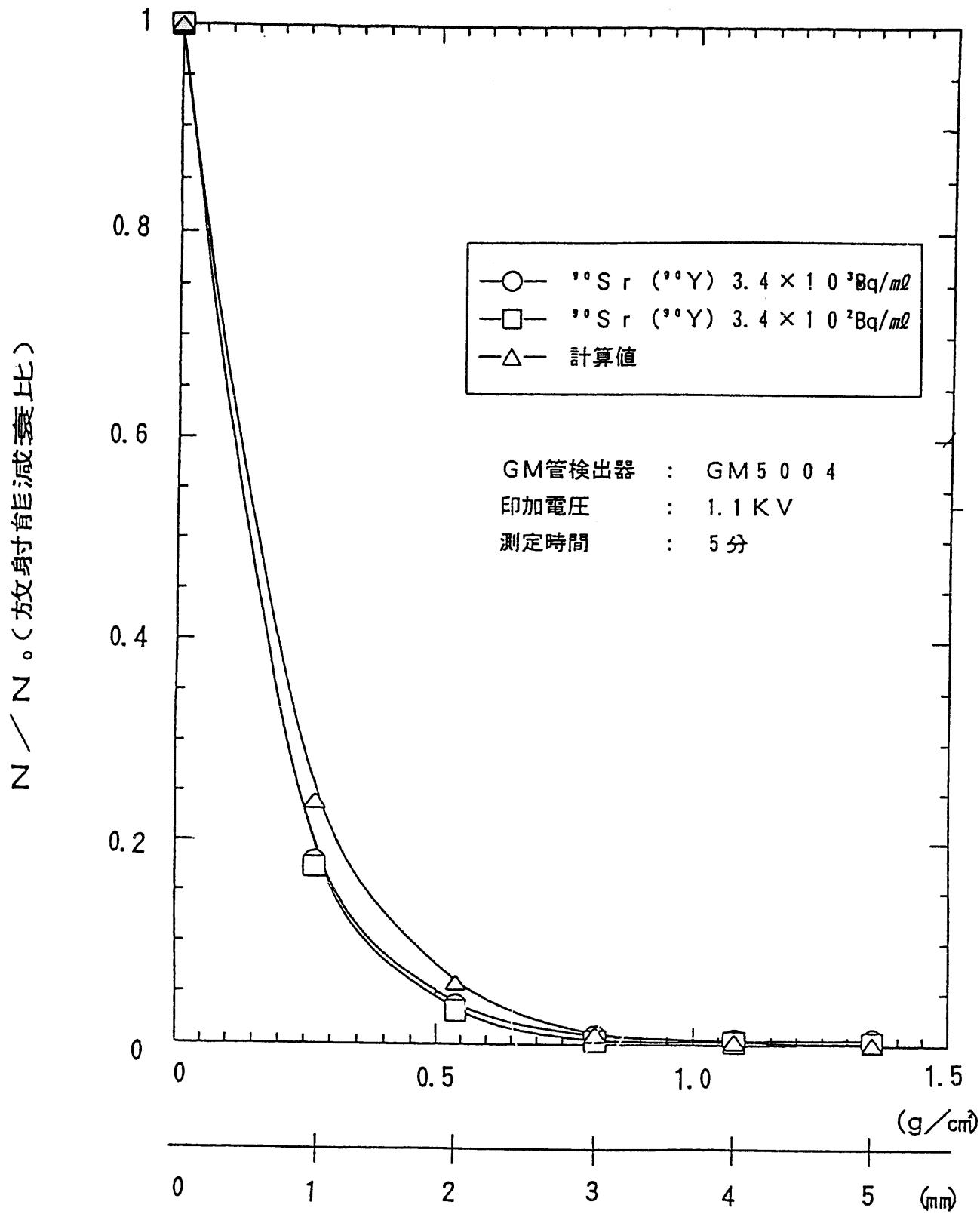


図-3 計数管入射窓半径と試料半径の比と幾何学的効率の関係

 $\wedge \ell$  吸収板の厚さ図-4  $\wedge \ell$  吸収板による  $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) の  $\beta$  線吸収曲線

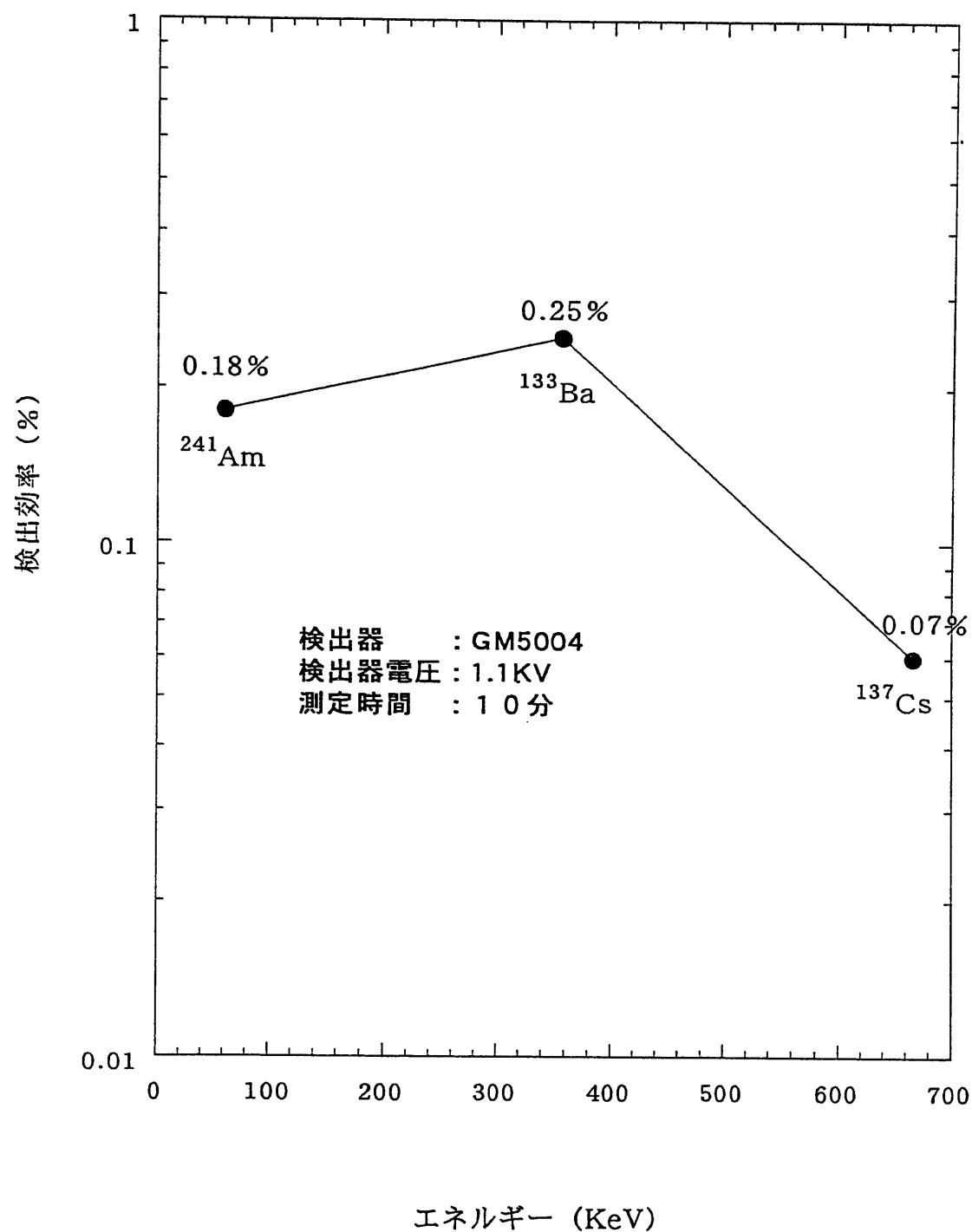


図-5  $\gamma$ 線に対するGM計数管検出効率のエネルギー依存性

表-1  $^{90}\text{Sr}$  ( $^{90}\text{Y}$ ) 溶液の放射能濃度

核種	放射能濃度 (Bq/mℓ)
$^{90}\text{Sr}$ ( $^{90}\text{Y}$ )	$4.4 \times 10^2$
	$4.4 \times 10^3$

表-2 模擬HA溶液の放射能濃度

核種	放射能濃度 (Bq/mℓ)
$^{90}\text{Sr}$ ( $^{90}\text{Y}$ )	$4.4 \times 10^2$
$^{137}\text{Cs}$ ( $^{137m}\text{Ba}$ )	$4.0 \times 10^3$
$^{90}\text{Sr}$ ( $^{90}\text{Y}$ )	$4.4 \times 10^3$
$^{137}\text{Cs}$ ( $^{137m}\text{Ba}$ )	$4.0 \times 10^4$

表-3  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ) 溶液の放射能濃度

核種	放射能濃度 (Bq/mℓ)
$^{137}\text{Cs}$ ( $^{137\text{m}}\text{Ba}$ )	$4.0 \times 10^3$
	$4.0 \times 10^4$

表-4  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  溶液の放射能濃度

核種	放射能濃度 (Bq/mℓ)
$^{90}\text{Sr}$ ( $^{90}\text{Y}$ )	$4.4 \times 10^3$
$^{137}\text{Cs}$ ( $^{137\text{m}}\text{Ba}$ )	$4.0 \times 10^3$

表-5  $\text{A} \ell$  吸収板厚と計数率の関係(1)

$^{90}\text{Sr}$ ( $^{90}\text{Y}$ ) 放射能濃度 ( $\text{Bq}/\text{ml}$ )	$\text{A} \ell$ 吸収板厚 (mm)	計数率 (cpm)
		$582 \pm 8$
	1	$101 \pm 4$
$3.4 \times 10^2$	2	$18 \pm 3$
	3	$2 \pm 3$
	4	$1 \pm 3$

- ・測定時間 : 10分

- ・印加電圧 : 1.1 KV

- ・計数率は, BKG (31 cpm) 差引値

表-6  $\text{A} \ell$  吸収板厚と計数率の関係(2)

$^{90}\text{Sr}$ ( $^{90}\text{Y}$ ) 放射能濃度 ( $\text{Bq}/\text{ml}$ )	$\text{A} \ell$ 吸収板厚 (mm)	計数率 (cpm)
		$5824 \pm 24$
	1	$1024 \pm 10$
$3.4 \times 10^3$	2	$213 \pm 5$
	3	$14 \pm 3$
	4	$1 \pm 3$

- ・測定時間 : 10分

- ・印加電圧 : 1.1 KV

- ・計数率は, BKG (31 cpm) 差引値

表-7 GM計数管の $\beta$ 線に対する検出効率

放射能濃度 (B q / ml)	検出効率 (%)	R S D (%)
$4.4 \times 10^2$	19.2	3.6
$4.4 \times 10^3$	19.5	2.6

- ・測定時間 : 10分
- ・印加電圧 : 1.1 KV

表-8 全 $\beta\gamma$ 計数率に対する全 $\gamma$ 計数率の寄与率

放射能濃度 (B q / ml)	a. 全 $\beta\gamma$ 計数率 (c p m)	b. 全 $\gamma$ 計数率 (c p m)	c. 全 $\beta$ 計数率 (c p m)	寄与率 (%)
$^{89}\text{Sr}: 4.4 \times 10^2$	$1021 \pm 10$	$4 \pm 3$	$1016 \pm 10$	0.4
$^{137}\text{Cs}: 4.0 \times 10^3$	$1036 \pm 10$	$5 \pm 3$	$1031 \pm 10$	0.5
$^{89}\text{Sr}: 4.4 \times 10^3$	$10215 \pm 32$	$23 \pm 3$	$10191 \pm 32$	0.2
$^{137}\text{Cs}: 4.0 \times 10^4$	$10054 \pm 32$	$26 \pm 3$	$10028 \pm 32$	0.2

- ・測定時間 : 10分
- ・印加電圧 : 1.1 KV
- ・計数率は、BKG (31 c p m) 差引値

表-9 各エネルギー放射線のAl中の最大飛程

線 質	エネルギー (MeV)	Aℓ 中の最大飛程 (g/cm <sup>2</sup> )	Aℓ 吸収板厚 (mm)
β線	0.51	0.16	0.6
内部転換電子	0.62	0.24	0.9

表-10  $\text{Al}$  吸收板による  $\beta$  線及び内部転換電子線の  
遮へい効果(1)

放射能濃度 ( $\text{Bq}/\text{ml}$ )	$\text{Al}$ 吸收板厚 (mm)	計数率 (cpm)
	—	$1488 \pm 12$
$4.0 \times 10^3$	0.6	$40 \pm 3$
	1	$10 \pm 3$
	2	$10 \pm 3$
	4	$10 \pm 3$

- ・測定時間 : 10分
- ・印加電圧 : 1.1 KV
- ・計数率は、 BKG (31 cpm) 差引値

表-11  $\text{A} \ell$  吸収板による  $\beta$  線及び内部転換電子線の  
遮へい効果(2)

放射能濃度 ( $\text{Bq}/\text{ml}$ )	$\text{A} \ell$ 吸収板厚 (mm)	計数率 (cpm)
	—	1 4 1 4 2 ± 3 8
$4.0 \times 10^4$	0.6	3 6 5 ± 7
	1	6 1 ± 4
	2	5 9 ± 3
	4	5 9 ± 3

- 測定時間 : 10分
- 印加電圧 : 1.1 KV
- 計数率は、 BKG (31 cpm) 差引値

表-12  $^{137}\text{Cs}$  ( $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ) の  $\gamma$  線に対する GM 計数管の検出効率

放射能濃度 (Bq/ $\text{ml}$ )	検出効率 (%)	R S D (%)
$4.0 \times 10^3$	0.08	3.3
$4.0 \times 10^4$	0.05	3.6

・測定時間 : 10 分

・印加電圧 : 1.1 KV

表-13 内部転換電子の寄与率

核種	放射能濃度 (Bq/mℓ)	1Bqあたりの計数率 (cpm/Bq)	寄与 (%)
<sup>90</sup> Sr( <sup>90</sup> Y)	$4.4 \times 10^3$	a. 10.68	10.9
<sup>137</sup> Cs( <sup>137m</sup> Ba)	$4.0 \times 10^3$	b. 11.98	

- ・測定時間 : 10分
- ・印加電圧 : 1.1KV

## 表-14 ORIGEN-2による放射能存在比の推定(1)

・試 料：第9回HAW

核種	* <sup>1</sup> ORIGIN値 (TBq)	* <sup>2</sup> 減衰補正值 (TBq)	* <sup>3</sup> 核種の放射能存在比 (-)
<sup>90</sup> Sr	$2.14 \times 10^5$	$1.95 \times 10^5$	0.723
<sup>90</sup> Y	$2.14 \times 10^5$	$1.95 \times 10^5$	0.723
<sup>147</sup> Pm	$5.81 \times 10^4$	$2.13 \times 10^4$	0.079
<sup>106</sup> Ru( <sup>106</sup> Rh)	$1.68 \times 10^4$	$1.26 \times 10^3$	0.005
<sup>125</sup> Sb	$4.51 \times 10^3$	$1.72 \times 10^3$	0.006
<sup>134</sup> Cs	$5.62 \times 10^4$	$1.57 \times 10^4$	0.058
<sup>137</sup> Cs( <sup>137m</sup> Ba)	$2.96 \times 10^5$	$2.71 \times 10^5$	1.000
<sup>144</sup> Ce	$1.18 \times 10^4$	$4.04 \times 10^2$	0.001
<sup>144</sup> Pr	$1.18 \times 10^4$	$4.04 \times 10^2$	0.001
<sup>154</sup> Eu	$1.62 \times 10^4$	$1.20 \times 10^4$	0.044
<sup>155</sup> Eu	$2.26 \times 10^3$	$1.29 \times 10^3$	0.005

\*1 92/5/31現在の計算値

\*2 96/3/18現在の減衰補正值 (Decay Time : 1387 day)

\*3 <sup>137</sup>Csを基準とした各核種の放射能存在比(放射能存在比(-) = 核種放射能 / <sup>137</sup>Csの放射能)

表-15  $\gamma$ 線エネルギー分析による放射能存在比の推定(1)

・試 料：第9回HAW

核種	* <sup>1</sup> 実測値 (Bq)	* <sup>2</sup> 核種の放射能存在比 (-)
<sup>106</sup> Ru( <sup>106</sup> Rh)	未検出	—
<sup>125</sup> Sb	未検出	—
<sup>134</sup> Cs	$7.24 \times 10^7$	0.031
<sup>137</sup> Cs( <sup>137m</sup> Ba)	$2.32 \times 10^8$	1.000
<sup>144</sup> Ce	未検出	—
<sup>144</sup> Pr	未検出	—
<sup>154</sup> Eu	$5.46 \times 10^7$	0.024
<sup>155</sup> Eu	$2.14 \times 10^7$	0.009

\*1 96/3/6現在の実測値

\*2 <sup>137</sup>Csを基準とした各核種の放射能存在比(放射能存在比(-) = 核種放射能 / <sup>137</sup>Csの放射能)

表-16 ORIGEN-2による放射能存在比の推定(2)

・試 料：第10回HAW

核 種	* <sup>1</sup> ORIGEN値 (TBq)	* <sup>2</sup> 減衰補正值 (TBq)	* <sup>3</sup> 核種の放射能存在比 (-)
<sup>90</sup> Sr	$2.36 \times 10^5$	$2.21 \times 10^5$	0.860
<sup>90</sup> Y	$2.36 \times 10^5$	$2.21 \times 10^5$	0.860
<sup>147</sup> Pm	$2.53 \times 10^4$	$1.25 \times 10^4$	0.049
<sup>106</sup> Rh( <sup>106</sup> Rh)	$1.40 \times 10^3$	$2.30 \times 10^2$	0.001
<sup>125</sup> Sb	$1.84 \times 10^3$	$9.36 \times 10^2$	0.004
<sup>134</sup> Cs	$1.57 \times 10^4$	$6.48 \times 10^3$	0.025
<sup>137</sup> Cs( <sup>137m</sup> Ba)	$2.73 \times 10^5$	$2.57 \times 10^5$	1.000
<sup>144</sup> Ce	$5.18 \times 10^2$	$4.92 \times 10^{-1}$	0.000
<sup>144</sup> Pr	$5.18 \times 10^2$	$4.92 \times 10^{-1}$	0.000
<sup>154</sup> Eu	$1.15 \times 10^4$	$9.03 \times 10^3$	0.035
<sup>155</sup> Eu	$1.37 \times 10^3$	$9.21 \times 10^2$	0.004

\*1 92/5/31現在の計算値

\*2 96/3/1現在の減衰補正值

\*3 <sup>137</sup>Csを基準とした各核種の放射能存在比(放射能存在比(-) = 核種放射能 / <sup>137</sup>Csの放射能)

表-17  $\gamma$ 線エネルギー分析による放射能存在比の推定(2)

・試 料：第10回HAW

核 種	* <sup>1</sup> 実測値 (Bq/mℓ)	* <sup>2</sup> 核種の放射能存在比 (-)
<sup>106</sup> Rh( <sup>106</sup> Rh)	未検出	—
<sup>125</sup> Sb	未検出	—
<sup>134</sup> Cs	$4.19 \times 10^7$	0.017
<sup>137</sup> Cs	$2.43 \times 10^9$	1.000
<sup>137</sup> Cs( <sup>137m</sup> Ba)	$2.43 \times 10^9$	1.000
<sup>144</sup> Ce	未検出	—
<sup>144</sup> Pt	未検出	—
<sup>154</sup> Eu	$5.52 \times 10^7$	0.023
<sup>155</sup> Eu	$1.65 \times 10^7$	0.007

\*1 96/3/6 現在の実測値

\*2 <sup>137</sup>Cs を基準とした各核種の放射能存在比(放射能存在比 (-) = 核種放射能 / <sup>137</sup>Cs の放射能)

表-18 実測値及び指標値から推定した全β放射能濃度(1)

試 料	核 種	放射能濃度 ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ )
	*1 $^{90}\text{Sr}$	$1.67 \times 10^9$
	*1 $^{90}\text{Y}$	$1.67 \times 10^9$
	*1 $^{147}\text{Pm}$	$1.83 \times 10^8$
第9回HAW	*2 $^{134}\text{Cs}$	$7.24 \times 10^7$
	*2 $^{137}\text{Cs}$	$2.32 \times 10^9$
	*2 $^{154}\text{Eu}$	$5.46 \times 10^7$
	*2 $^{155}\text{Eu}$	$2.14 \times 10^7$
	*3 $^{99}\text{Tc}$	$5.45 \times 10^5$
	*4 $\text{T}-\beta$	$5.99 \times 10^9$

\*1 : 表-16の  $^{137}\text{Cs}$  に対する放射能存在比及び表-17の  $^{137}\text{Cs}$  の  $\gamma$

線エネルギー分析による実測値から推定

•  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Y} = ^{137}\text{Cs}$  の実測値  $\times ^{90}\text{Sr}$  または  $^{90}\text{Y}$  の放射能存在比

•  $^{147}\text{Pm} = ^{137}\text{Cs}$  の実測値  $\times ^{147}\text{Pm}$  の放射能存在比

\*2 :  $\gamma$  線エネルギー分析による実測値

\*3 元素分析値から放射能濃度濃度への換算値

\*4 : 核種毎の放射能濃度の合算値

表-19 実測値及び指標値から推定した全β放射能濃度(2)

試 料	核 種	放射能濃度 ( $Bq/m^3$ )
	* <sup>1</sup> <sup>90</sup> Sr	$2.13 \times 10^8$
	* <sup>1</sup> <sup>90</sup> Y	$2.13 \times 10^8$
	* <sup>1</sup> <sup>147</sup> Pm	$1.19 \times 10^8$
第10回HAW	* <sup>2</sup> <sup>134</sup> Cs	$4.37 \times 10^7$
	* <sup>2</sup> <sup>137</sup> Cs	$2.47 \times 10^8$
	* <sup>2</sup> <sup>154</sup> Eu	$5.60 \times 10^7$
	* <sup>2</sup> <sup>155</sup> Eu	$1.54 \times 10^7$
	* <sup>3</sup> <sup>99</sup> Tc	$2.03 \times 10^5$
	* <sup>4</sup> T-β	$6.95 \times 10^9$

\* 1 : 表-14の <sup>137</sup>Csに対する放射能存在比及び表-15の <sup>137</sup>Csの線エネルギー分析による実測値から推定

• <sup>90</sup>Sr, <sup>90</sup>Y = <sup>137</sup>Csの実測値 × <sup>90</sup>Srまたは<sup>90</sup>Yの放射能存在比

• <sup>147</sup>Pm = <sup>137</sup>Csの実測値 × <sup>147</sup>Pmの放射能存在比

\* 2 : γ線エネルギー分析による実測値

\* 3 : 元素分析値から放射能濃度濃度への換算値

\* 4 : 核種毎の放射能濃度の合算値

表-20 GM計数管による実HAWの測定結果(1)

試 料	計数率 (c p m)	全β濃度 ( $Bq/m\ell$ )
第9HAW	4 4 6 9 7 ± 6 7	$7.70 \times 10^9$
	4 3 7 2 9 ± 6 6	$7.53 \times 10^9$
	4 5 1 6 3 ± 6 7	$7.78 \times 10^9$
	4 3 3 1 3 ± 6 6	$7.46 \times 10^9$
	4 3 6 2 2 ± 6 6	$7.51 \times 10^9$
$\bar{x}$	4 4 1 0 5 ± 6 7	$7.60 \times 10^9$
R S D (%)	1.78	

- ・試料塗布量:  $50 \mu\ell$
- ・検出効率 : 19.35 (%)
- ・計数率は、BKG (31 cpm) 差引値

表-21 GM計数管による実HAWの測定(2)

試 料	計数率 (c p m)	全β濃度 (B q/m <sup>2</sup> )
	4 9 9 6 1 ± 7 1	8. 6 1 × 1 0 <sup>9</sup>
第10HAW	5 0 3 9 5 ± 7 1	8. 6 8 × 1 0 <sup>9</sup>
	4 9 9 0 4 ± 7 1	8. 6 0 × 1 0 <sup>9</sup>
	4 9 3 6 4 ± 7 0	8. 5 0 × 1 0 <sup>9</sup>
	4 9 0 4 6 ± 7 0	8. 4 5 × 1 0 <sup>9</sup>
$\bar{x}$	4 9 7 3 4 ± 7 1	8. 5 7 × 1 0 <sup>9</sup>
R S D (%)	1. 0 7	

- ・測定時間 : 10分間
- ・試料塗布量 : 50 μℓ
- ・検出効率 : 19.35 (%)
- ・計数率は、BKG (31 cpm) 差引値

表-22 実HAW中の正味の全 $\beta$ 放射能濃度

試 料	<sup>*1</sup> 正味の全 $\beta$ 放射能濃度 (Bq/mℓ)	<sup>*2</sup> 誤差率 (%)
第9回HAW	$7.35 \times 10^9$	(+) 24.5
第10回HAW	$8.29 \times 10^9$	(+) 19.8

\* 1 正味の全 $\beta$ 放射能濃度 (Bq/mℓ)

= 実測値 × (1 - 0.033)

\* 2 誤差率

= (正味の全 $\beta$ 放射能濃度 - 推定値) / 推定値 × 100

表-23 高周波焼付処理による計数率への影響確認結果

試 料	乾固処理 (c p m)	高周波焼付処理 (c p m)
第10回HAW	4 4 7 2 7 ± 6 7	4 4 3 2 6 ± 6 7
	4 3 7 5 9 ± 6 6	4 4 6 3 8 ± 6 7
	4 5 1 9 3 ± 6 7	4 4 2 3 8 ± 6 7
	4 3 3 4 3 ± 6 6	4 3 3 6 3 ± 6 6
	4 3 6 5 2 ± 6 6	4 4 6 3 5 ± 6 7
$\bar{x}$	4 4 1 3 5 ± 6 6	4 4 0 4 0 ± 6 7

- ・測定時間 : 10分間
- ・試料塗布量 : 50  $\mu l$
- ・検出効率 : 19.35 (%)
- ・計数率は、BKG (31 c p m) 差引値

## 別添

## 内部転換電子について

励起状態にある核がより低いエネルギー状態に移るとき、この状態の差のエネルギー  $-W$  を  $\gamma$  線の形で放射する代わりに、軌道電子が放射されることがある。放射された電子の運動エネルギー  $E$  は、

$$E = W - I$$

である。ここに  $I$  は軌道電子に対するイオン化エネルギーである。核の電磁界が軌道電子に作用してエネルギーが与えられる現象で、放射された電子を内部転換電子という。この電子のスペクトルはもちろん線スペクトルであるので、陰電子崩壊の際に放射される連続スペクトルの電子とはこの点において明らかに区別がつく。

一般に内部転換は  $\gamma$  線放射と競争する過程にあって、核のエネルギー状態間の遷移の確率は両者の確率の和

$$\alpha = \lambda_r + \lambda_e$$

である。 $\alpha = \lambda_e / \lambda_r$  を内部転換係数といい、同一時間内に放射される内部転換電子の数  $N_e$  と  $\gamma$  線の数  $N_r$  を実測することによって  $N_e / N_r$  として求めることができる。核に最も近い K 軌道電子が内部転換を受けやすく、L 軌道電子、M 軌道電子の順に続く。従って  $\alpha$  をさらに区分して K 転換係数  $\alpha_k$ 、L 転換係数  $\alpha_L$  などとすると  $\alpha$  は、

$$\alpha = \alpha_k + \alpha_L + \alpha_M \dots$$

であり分解能の良いスペクトロメータによれば各個別に測定値を出すことができる。

$\alpha_k$  の値や  $\alpha_k / \alpha_L$  の値などの実測値を理論値と比較することによって遷移が E I であるとか M I であるとかを決定することができる。もともと  $\gamma$  線のエネルギーを測定するのは困難であるが、内部転換電子のエネルギーを測定することは精度良くできるので、状態間のエネルギー差を知るのに大切な手段となっている。現象は原子番号 Z の 3 乗に比例して増加するので、重い核について特に有用である。また、 $\gamma$  線の数  $N_r$  を測定するのにも困難が付きまとうが、 $\alpha_k / \alpha_L$  は電子の数  $N_k$  と  $N_L$  の測定

から出せるので、遷移の性質を決める上にも役立っている。

状態間のエネルギー差が  $2 m_e C^2 = 1.02 \text{ MeV}$  以上であるときは、陰陽電子の対を発生できるようになる。これを内部転換電子対という。両電子の運動エネルギーの和は、

$$E^+ + E^- = W - 2 m_e C^2$$

である。この際の陰電子は軌道電子ではなく、核の電場の働きで真空から陰陽電子対が発生するのである。エネルギーが質量に変換される端的な一例である。Wが大きく  $I_i = I_f = 0$  の場合にこの電子対の測定が有用である。 $^{18}\text{O}$  の  $6.04 \text{ MeV}$  励起状態から基底状態への遷移が良く知られている。