

TN8420 89-011

PNC 18420-89-002

内部資料

本資料は 年 月 日付で登録区分、

変更する  
2001. 6. 20

[技術情報室]

# 廃棄物固化体の分析手法 に関する調査

1989年3月

動力炉・核燃料開発事業団  
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2001

るので  
にし、

ver

TN 8420 89-011

内 部 資 料  
PNC 8420 89-002  
1989年 3月

2001.6.20

## 廃棄物固化体の分析手法に関する調査

実施責任者： 落合健一  
藤田秀人・ 日野田正博・ 石井照明・  
伊藤 剛士・ 戸祭 智・

### 要　旨

アスファルト固化技術開発施設では再処理施設から発生する低放射性廃液を、アスファルト固化体として処理している。

また、廃溶媒処理技術開発施設では、廃溶媒をエポキシ固化体またはPVC固化体（以下、プラスチック固化体という）として処理している。

これらアスファルト固化体並びにプラスチック固化体の評価を行うために、放射化学分析手法について調査・検討した。また、それらの技術の適用化について開発試験計画を策定した。

以下に実施内容の要約を示す。

#### （1）放射性廃棄物固化体の放射化学分析手法の調査

##### a) 対象試料の前処理方法

試料の無機化処理、溶液化処理のために灰化あるいは溶媒溶解法などの手法が有効であるが、その操作条件として処理温度を管理し、対象核種の飛散を防止することが肝要である。

##### b) 対象核種の分離・単離方法

化学的挙動が類似した核種ごとにあらかじめ分類し、その後核種ごとに単離・計測する手法が有効であることが示された。それらの方法として、イオン交換法や抽出法を採用することが望ましい。

#### （2）開発試験計画

放射化学分析手法の中で、前処理並びに粗分離・単離法について核種の回収率、分配及び操作性を検討する上で、模擬コールド試験及び模擬ホット試験を実施することが必要であることを示した。

\* 環境工学開発部 低レベル廃棄物固化処理技術開発室

\*\* (株)化研 開発部

\*\*\* (株)化研 技術部 R I Gr

Investigation on Analytical Technique of Solidified Product of wastes

responsibilityan Kenichi Ochiai  
Hideto Fujita\* Masahiro Hinoda  
Teruaki Ishii\* Takeshi Ito\*\*  
Satoshi Tomatsuri\*\*\*



### Abstract

In Bituminization Demonstration Facility, low-level radioactive liquid waste has been solidifying with asphalt to institution, whereas in Solvent Waste Treatment Demonstration Facility, solvent waste has been solidifying with epoxy resin or PVC(henceforth designated as plastic solidified product).

The radiochemically analytical techniques were investigated and examined in order to carry out the evaluation of those products, and decide to the plan for development of the experiment on the application of these techniques were performed.

A summary of contents of practice is indicated as follows:

(1) Investigation of radiochemically analytical techniqueson solidified product of radioactive wastes.

a) Methods of preliminary treatment of samples

The methods of ashing or liquedying in solvents are effective to Inorganically and solvolysis for the samples, however as operating conditions, it is important that the operation temperature control, and prevented the scattering of object nuclides.

b) Methods of separating and isolating of object nuclides

The object nuclides were previously classified into the groupes being similar in chemical behavior, after it was indicated that the methods for isolating and measuring each group is effective. For these techniques, it is desirable to adopt the ion exchange and extracting methods.

(2) Plan for development of experiment

It was indicated that simulated Cold and Hot tests were necessary to operate in order to investigate the functions of the recovery, distribution and handling with preliminay treatment, methods of separating and isolating in the radio chemically analytical technique.

\* Low level waste solidification technology development section waste management technology development devision

\*\* Kaken co. Development department

\*\*\* Kaken co. Technique department

# 目 次

1. まえがき	1
2. 基礎調査	2
2-1 調査範囲及び内容	2
2-2 試料・核種・計測に関する調査	2
2-2-1 対象試料	2
2-2-2 対象核種	18
2-2-3 放射線計測	58
2-3 化学的処理方法に関する調査	68
2-3-1 対象試料の前処理方法	68
2-3-2 対象核種の分離方法	72
2-3-3 対象核種の単離方法	88
2-4 まとめ	91
3. 放射性廃棄物に関する放射化学分析方法の調査及び検討	92
4. 放射化学分析方法の検討	95
4-1 放射化学分析方法のモデル化	95
4-2 モデル分析方法に対する検討並びに考察	96
4-3 まとめ	103
5. 開発試験計画	126
5-1 放射化学分析方法の実証試験計画	126
5-1-1 模擬コールド試験	126
5-1-2 模擬ホット試験	129
5-1-3 実固化体による実証試験	131
5-2 使用設備・機器	132
5-3 まとめ	132
6. あとがき	133
7. 参考文献・図書	134

# 表　一　覧

表-2. 1 固化対象廃液性状	3
表-2. 2 各種アスファルトの引火点と軟化点	6
表-2. 3 アスファルトのJ I S 規格	8
表-2. 4 エポキシ固化体の組成	9
表-2. 5 固化対象廃液性状	10
表-2. 6 P V C 固化体の組成	11
表-2. 7 硬化樹脂の性質 (E P O M I K R-140)	12
表-2. 8 硬化剤の性質 (E P O M I K Q-681)	13
表-2. 9 ゼオン43の一般的性質	12
表-2. 10 プラスチックの性質	14
表-2. 11 種々の固化体中の廃棄物の割合	15
表-2. 12 固化体の機械的強度	15
表-2. 13 20Kg大の固化体の耐火性	16
表-2. 14 アメリシウム核データ	21
表-2. 15 炭素核データ	23
表-2. 16 セリウム核データ	25
表-2. 17 キュリウム核データ	27
表-2. 18 コバルト核データ	29
表-2. 19 セシウム核データ	31
表-2. 20 トリチウム核データ	34
表-2. 21 ヨウ素核データ	36
表-2. 22 ニッケル核データ	39
表-2. 23 ニオブ核データ	41
表-2. 24 プルトニウム核データ	45
表-2. 25 ルテニウム核データ	48
表-2. 26 アンチモン核データ	50
表-2. 27 ストロンチウム核データ	53

表-2. 28 ウラン核データ	55
表-2. 29 ジルコニウム核データ	57
表-2. 30 対象核種とその主な特性・計測器	59
表-2. 31 液体シンチレーションに使用される溶質	66
表-2. 32 クエンチャーの強弱の分類	67
表-2. 33 陽イオン交換体によるアクチノイドの分離	74
表-2. 34 陰イオン交換体によるアクチノイドの分離 ( $H_2SO_4$ 溶液)	75
表-2. 35 陰イオン交換体によるアクチノイドの分離 ( $HCl$ 溶液)	76
表-2. 36 陰イオン交換体によるアクチノイドの分離 ( $HNO_3$ 溶液)	78
表-4. 1 対象核種の分類	95
表-4. 2 分析モデルフローシートと図番の対応表	96
表-4. 3 放射化学分析モデル概要	104
表-5. 1 模擬固化体添加安定核種一覧	128
表-5. 2 模擬固化体非添加核種一覧	128
表-5. 3 模擬ホット試験・確認用核種一覧	129

■ — ■

図-2. 1 一般的なアスファルト固化法の概要	4
図-2. 2 ホウ酸ナトリウム塩固化体の密度	5
図-2. 3 ホウ酸ナトリウム塩固化体の軟化点	5
図-2. 4 ホウ酸ナトリウム塩固化体の燃焼点	6
図-2. 5 ポリエチレン固化体の耐放射線性	17
図-2. 6 Am-O-H系に対するE h-p H線図	19
図-2. 7 Pu-C-O-H系に対するE h-p H線図	43
図-2. 8 Ge- $\gamma$ 線スペクトルメータ機器構成	61
図-2. 9 核分裂生成物のガンマ線スペクトル	62
図-2. 10 シリコン半導体検出器 機器構成	63
図-2. 11 液体シンチレーション計数装置の機器構成	64
図-2. 12 化学名の略号及び対応する溶質の分子構造	65
図-2. 13 ガスフローカウンタの機器構成	67
図-2. 14 イオン交換分離のフローシート（代表例-1）	81
図-2. 15 イオン交換分離のフローシート（代表例-2）	82
図-2. 16 硝酸溶液における陰イオン交換樹脂による元素の吸着	83
図-2. 17 フッ酸溶液における陰イオン交換樹脂による元素の吸着	84
図-2. 18 塩酸溶液における陰イオン交換樹脂による元素の吸着	85
図-4. 1 カチオン核種粗分離フローシート（モデル-1）	105
図-4. 2 カチオン核種粗分離フローシート（モデル-2）	107
図-4. 3 Am, Cm, Ce単離計測フローシート	110
図-4. 4 Sr単離計測フローシート	111
図-4. 5 Ni単離計測フローシート	113
図-4. 6 Pu単離計測フローシート	114
図-4. 7 U単離計測フローシート	115
図-4. 8 Np単離計測フローシート	116
図-4. 9 アニオン核種粗分離フローシート	117
図-4. 10 I単離計測フローシート	118

図-4. 11 Tc 単離計測フローシート	120
図-4. 12 H-3, C-14 粗分離単離計測フローシート	121
図-4. 13 燃焼通気装置	123
図-4. 14 H-3 蒸留装置	123
図-4. 15 酸性通気装置	124
図-4. 16 C-14 単離・濃縮装置	125
図-5. 1 廃棄物固化体放射化学分析手法の開発業務実施概要	127

## 1. まえがき

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所アスファルト固化技術開発施設では、再処理施設から発生する低放射性廃液について、アスファルト固化処理を行っている。

また、廃溶媒処理技術開発施設では廃溶媒をエポキシ固化体または、PVC固化体（以下、プラスチック固化体という。）として処理している。これら固化体は、固化体評価試験設備において、固化体中の放射性物質の定量をする計画である。本調査では、固化体の放射化学的分析手法に関する技術を調査検討し、適用可能な放射化学分析法を提案すると共に、適用化の為の開発計画を提案した。

本報告は以下の項目について検討した結果をまとめたものである。

- 固化体の前処理（液化処理等）に関する技術の調査
- 対象成分の分離に関する技術の調査
- 対象成分の計測機器等に関する技術の調査
- 放射化学分析方法のモデル化
- 開発課題の抽出及び開発計画の立案

## 2. 基礎調査

### 2-1 調査範囲及び内容

対象試料及び対象核種について、その基礎的物性及び化学的性質等を調査すると共に、放射線計測技術について計測器機種並びに計測手法等について調査した。調査方法は、種々の文献をはじめ書籍、メーカー カタログ等を参考資料とした。

### 2-2 試料・核種・計測に関する調査

#### 2-2-1 対象試料<sup>11)</sup>

対象試料としては、次のアスファルト固化体並びにプラスチック固化体である。

##### (1) アスファルト固化体

動力炉・核燃料開発事業団（以下「PNC」という）の再処理施設から発生する低放射性廃液を処理し、アスファルト固化したもので次の2種類の廃液処理固化体が対象となる。

低放射性廃液MA系アスファルト固化体

低放射性廃液LA系アスファルト固化体

それぞれの処理対象廃液性状は、表-2.1に示す放射性核種を含む低放射性廃液であり、固化体中に含まれる塩とアスファルトの重量比が、45:55になるよう調整・固化されたアスファルト固化体が対象試料となる。

なお、MA系廃液は、放射性Sr除去を主な目的としたBa(OH)<sub>2</sub>添加処理（BaCO<sub>3</sub>によるSrの共沈・不溶化処理）並びに、放射性Cs除去を目的としたNiSO<sub>4</sub>及びK<sub>4</sub>Fe(CN)<sub>6</sub>添加処理（フェロシアン化NiとしてCsの不溶化処理）が施されている。

表-2. 1 固化対象廃液性状

	低放射性廃液	
	MA系	LA系
A m - 241	$2 \times 10^{-1}$	$4 \times 10^{-4}$
C e - 144	1	$2 \times 10^{-4}$
C s - 137	5	$2 \times 10^{-2}$
C s - 134	$6 \times 10^{-1}$	$2 \times 10^{-3}$
S b - 125	$9 \times 10^{-1}$	$6 \times 10^{-4}$
R u - 106	3	$6 \times 10^{-3}$
R u - 103	$< 1 \times 10^{-2}$	$< 1 \times 10^{-4}$
Z r - 95	$< 1 \times 10^{-2}$	$< 1 \times 10^{-4}$
N b - 95	$< 1 \times 10^{-2}$	$< 1 \times 10^{-4}$
C o - 60	$7 \times 10^{-2}$	$9 \times 10^{-5}$
I - 129	$4 \times 10^{-3}$	$8 \times 10^{-4}$
H - 3	$6 \times 10^{-1}$	$6 \times 10^{-1}$
S r - 90	2	$1 \times 10^{-2}$
Pu-239+Pu-240	$2 \times 10^{-1}$	$8 \times 10^{-4}$
Pu-238+Am-241	$3 \times 10^{-1}$	$2 \times 10^{-3}$
(C i / m <sup>3</sup> )		
全-Pu (mg/l)	2	$< 5 \times 10^{-2}$
全-U (g/l)	$4 \times 10^{-1}$	$3 \times 10^{-2}$
塩濃度 (g/l)	400	400
ドカん比率 (%)	—	—

## a. アスファルト固化体の作製方法

以下に一般的なアスファルト固化体の製法を示す。

一般的なアスファルト固化法は、水分を多量に含む液状の放射性廃棄物を溶解アスファルトと混ぜながら加熱し、水分を蒸発除去しつつ減溶化をはかり、水に不溶性の固化物をつくる。

このように液状放射性廃棄物とアスファルトと一緒に混ぜて加熱し、無水均質固化体を作る方法が一般的であるが、そのほかにも液状放射性廃棄物を前もって単独に蒸発乾固し、得られた粉粒体を溶融アスファルトに混入する方法、及び粉粒体をペレット状に成型しアスファルトで含浸あるいは被覆する方法などもある。一般的なアスファルト固化法の概要を図-2. 1に示す。

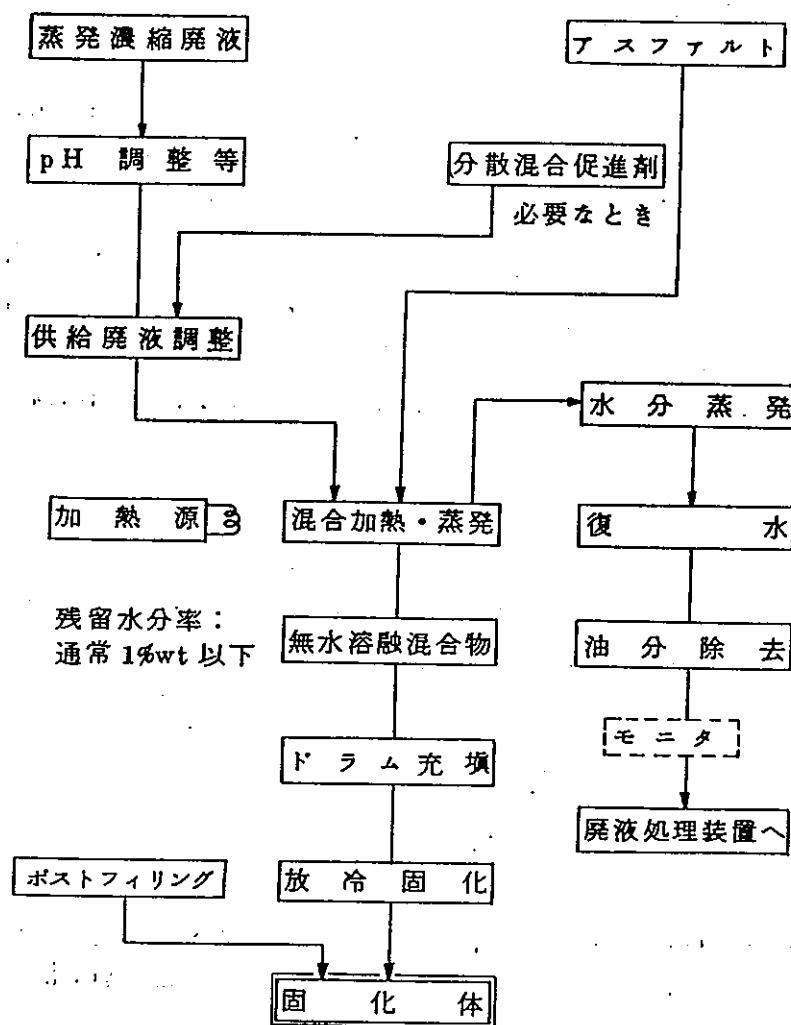


図-2. 1 一般的なアスファルト固化法の概要

## b. アスファルト固化体の物性

以下に一般的なアスファルト固化体の物性を記す。なお、アスファルト固化技術開発施設で使用しているアスファルトは、ブローンアスファルトであり、針入度40、軟化点85°C、引火点260°C以上である。また、アスファルトのJIS規格を表-2.3に示す。

### (a) 廃棄物と固化材の混合比及び密度

PWR原子力発電所から発生するホウ酸ナトリウム系アスファルト固化体の固体分混入率とアスファルト固化体の密度を示したものが図-2.2である。

### (b) 热的特性

#### イ. 軟化点及び引火点

図-2.3に固体分(ホウ酸ナトリウム系)混入率とアスファルト固化体軟化点を示す。次頁の表-2.2に各種アスファルトの引火点と軟化点を示す。

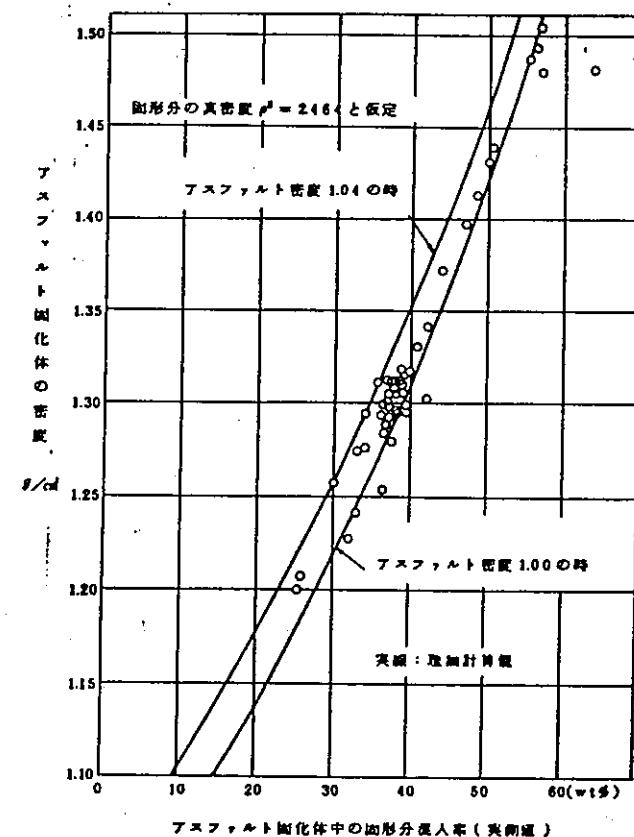


図-2.2 ホウ酸ナトリウム塩固化体の密度

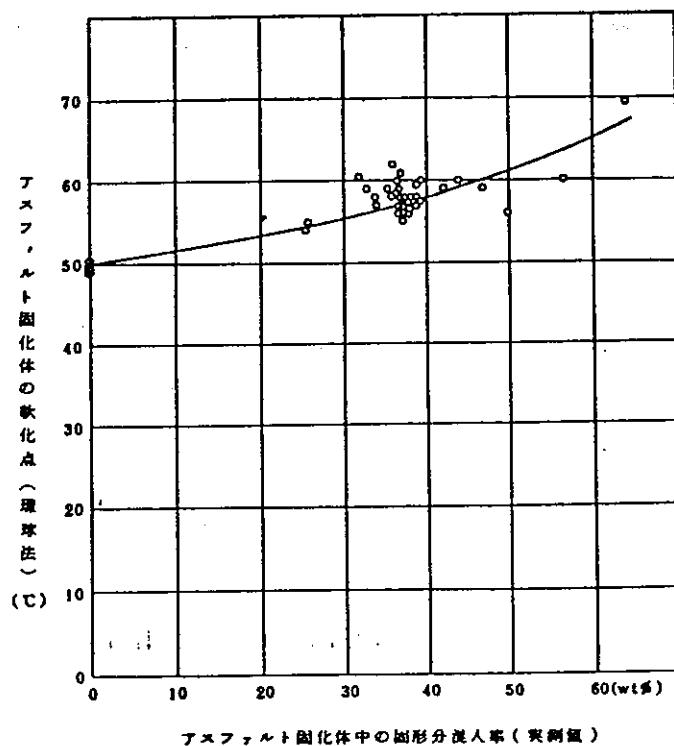
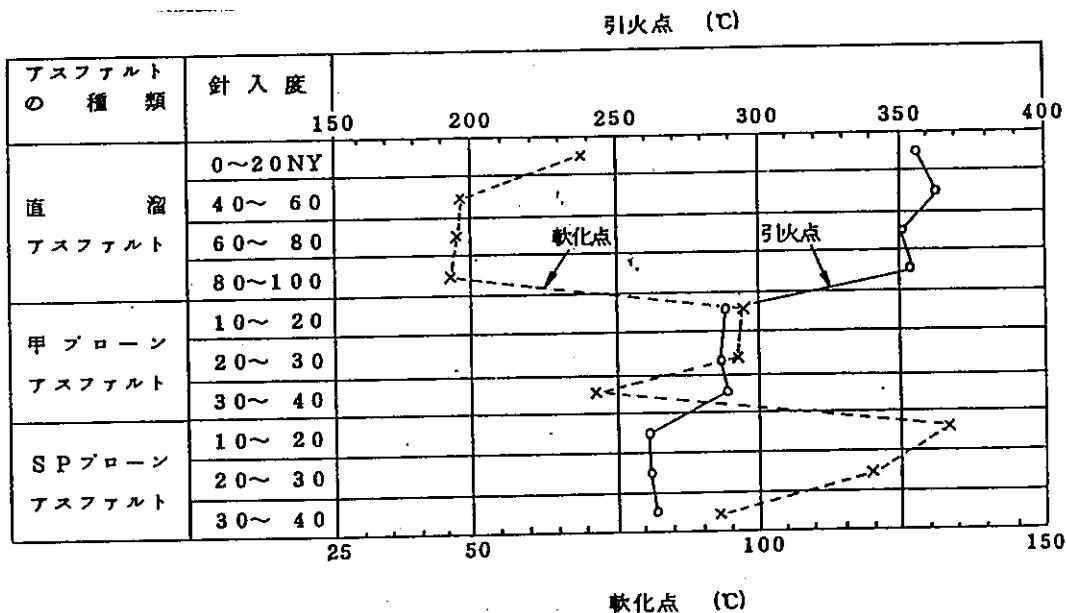


図-2.3 ホウ酸ナトリウム塩固化体の軟化点

表-2. 2 各種アスファルトの引火点と軟化点



## 四、燃焼点

図-2. 4に示すように固

形分混入率には影響を受けず

燃焼点は350~380°Cで

ある。

これは、ストレートアスフ

アルト自体の燃焼開始温度で

ある。

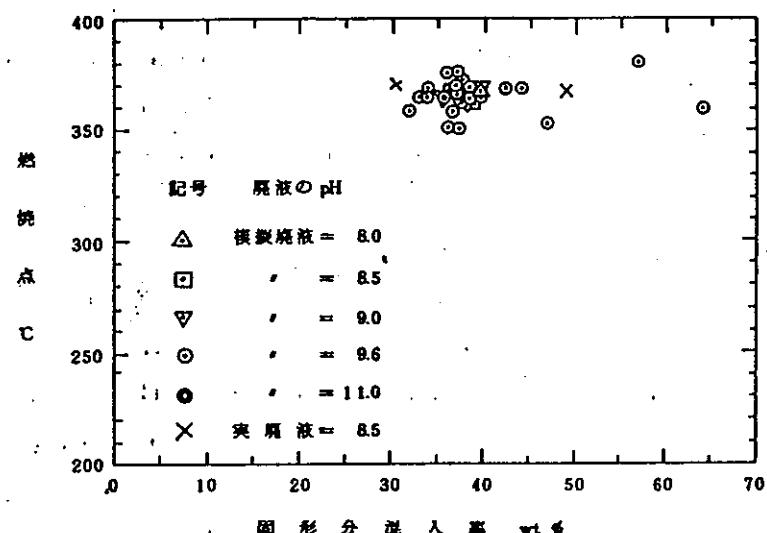


図-2. 4 ホウ酸ナトリウム塩固化体の燃焼点

対象試料のMA系及びLA系アスファルト固化体には、硝酸塩・亜硝酸塩が含まれている。

このようなアスファルト固化体は燃焼開始点が低く、燃焼を始めると自ら酸素を放出し、自燃

し消えづらい。

## ハ. 热伝導率と耐放射線性

放射性物質濃度 $10\text{ Ci}/\text{l}$ 以上 の廃棄物についてはアスファルトの放射線分解によるメタン・水素ガス等の可燃性・爆発性ガスの発生に対する配慮が必要である。また、固化体の熱発生によって生じる可能性のある固化体内の物質移動、熱応力による物理的損傷については、固化体の中心温度及び表面温度を決定する熱伝導率に対し考慮する必要がある。

表-2.3 アスファルトのJIS規格

種類	項目	針入度 (25°C) 1/10mm	軟化点 °C	伸 度		三塩化 エタン 可溶分 %	引火点 °C	薄膜加熱		蒸 発		針入度 (25/25°C)
				(15°C) cm	(25°C) cm			質量 変化率 %	針入度 変化率 %	質量 変化率 %	後の針 入度比 %	
ストレートアスファルト	0 ~ 10	0 以上 10 以下	55.0 以上	—	—	99.0 以上	260 以上	—	—	0.3 以下	—	—
	10 ~ 20	10 を超え 20 以下		—	5 以上			—	—		—	—
	20 ~ 40	20 を超え 40 以下	50.0 ~65.0	—	50 以上			—	—		—	—
	40 ~ 60	40 を超え 60 以下	47.0 ~55.0	10 以上	—			58 以上	—		—	—
	60 ~ 80	60 を超え 80 以下	44.0 ~52.0	—	—			55 以上	—	110 以下	—	—
	80 ~ 100	80 を超え 100 以下	42.0 ~50.0	—	—			50 以上	—	—	—	1.000 以上
	100 ~ 120	100 を超え 120 以下	40.0 ~50.0	—	—			—	—	0.5 以下	—	—
	120 ~ 150	120 を超え 150 以下	38.0 ~48.0	—	—			—	—	—	—	—
	150 ~ 200	150 を超え 200 以下	36.0 ~45.0	—	—			—	—	1.0 以下	—	—
	200 ~ 300	200 を超え 300 以下	—	—	—			—	—	—	—	—
ブローンアスファルト	0 ~ 5	0 以上 5 以下	130.0 以上	—	0 以上	98.5 以上	210 以上	—	—	3.0 以上	—	—
	5 ~ 10	5 を超え 10 以下	110.0 以上	—	1 以上			—	—		—	—
	10 ~ 20	10 を超え 20 以下	90.0 以上	—	2 以上			—	—		—	—
	20 ~ 30	20 を超え 30 以下	80.0 以上	—	3 以上			—	—	2.5 以上	—	—
	30 ~ 40	30 を超え 40 以下	65.0 以上	—	3 以上			—	—	1.0 以上	—	—

備考 ストレートアスファルトの種類 40~60, 60~80, 80~100 については 120°C, 140°C, 160°C, 180°C のそれぞれにおける融粘度を試験表に付記しなければならない。

## (2) プラスチック固化体

廃溶媒（回収TBP）をプラスチック原料と混合反応固形化したもので、次の2種類の固化体が対象となる。

### エポキシ固化体 PVC固化体

これら固化体の最大の特徴は、その原料樹脂の熱的特性であり、熱可塑性樹脂はPVC固化体、熱硬化性樹脂はエポキシ固化体である。

なお、これらのプラスチック固化体により処理・固化される回収TBP廃液性状を表-2.5に示す。

#### a. プラスチック固化体の作製方法

以下にPNCで実施しているプラスチック固化体の製法を記す。

##### (a) エポキシ固化体

エポキシ樹脂は、添加剤（硬化剤または触媒）の存在で室温あるいは加熱することによって硬化する。この硬化は、その種類によって5～150°Cという広い温度範囲で行なえる。硬化時の収縮も少なく、水やガスの発生もないため加圧する必要はない。

この硬化物は分子中に極性の水酸基やエーテル結合を有しているため、他の物質との吸着性に優れ、接着強度も大きい。

対象エポキシ固化体は表-2.4に示す原料及び廃溶媒（回収TBP）を配合し、発熱温度40°C以下で反応固化させたものである。

表-2.4 エポキシ固化体の組成

原料及び 廃棄物	仕 様	配合比(w/o)
エポキシ樹脂	三井石油工業㈱製 E P O M I K R 1 4 0	19.5
添加剤	タルク（浅田製粉㈱製 J A - 1 3 R ）と塩ビ樹脂（ゼオン㈱製 ゼオン 400×110A）を重量比 86:14で混合	26.5
硬化剤	三井石油工業㈱製 E P O M I K Q 6 8 1	6.4
回収TBP	n-ドデカンを10v/o 含む	47.6

表-2.5 固化对象廢液性状

	回収TBP
A m - 241	$< 1 \times 10^{-4}$
C e - 144	$< 1 \times 10^{-4}$
C s - 137	$< 1 \times 10^{-4}$
C s - 134	$< 1 \times 10^{-4}$
S b - 125	$3 \times 10^{-4}$
R u - 106	$3 \times 10^{-4}$
R u - 103	$< 1 \times 10^{-4}$
Z r - 95	$< 1 \times 10^{-4}$
N b - 95	$< 1 \times 10^{-4}$
C o - 60	$< 1 \times 10^{-4}$
I - 129	$1 \times 10^{-3}$
H - 3	—
S r - 90	—
Pu-239+Pu-240	—
Pu-238+A m - 241	—
(C i / m <sup>3</sup> )	
全-Pu (mg/l)	$< 5 \times 10^{-2}$
全-U (g/l)	$2 \times 10^{-2}$
塩濃度 (g/l)	—
ドテカン比率 (%)	10

( b ) PVC固化体

PVC固化体は熱可塑性樹脂であるポリ塩化ビニル樹脂ベースで、粉末塩化ビニルによる回収TBPの固化体である。対象PVC固化体は表-2. 6に示す原料及び溶媒（回収TBP）を配合し、均一になるまで攪拌し、約80°Cで約7時間加熱することによって固化させたものである。

表-2. 6 PVC固化体の組成

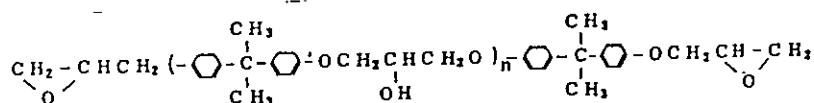
原料及び 溶媒	仕 様	配合比(w/o)
PVC樹脂	日本ゼオン錫製 ゼオン#43B	43.0
添加剤	日本ゼオン錫製 ソーレックス	1.0
吸湿剤	近江化学工業錫製 酸化カルシウム CML#31	6.0
回収TBP	n-ドデカンを10%含む	50.0

b. プラスチック固化体の物性

以下にPNCで採用しているエポキシ固化体、PVC固化体及び、一般的なプラスチック固化体の物性を記す。

( a ) エポキシ固化体

対象エポキシ固化体は機械的強度、電気絶縁性、対化学薬品性などの点で優れた性質をもっている。一般的なエポキシ樹脂は、4,4-ジオキシジフェニルプロパン（ビスフェノールA）とエピクロルヒドリンを水酸化アルカリの存在下で反応させたもので、次の一般式で示される。



nの大小によって淡黄色の液体から、もろい固体のものにもなる。

原料のエポキシ樹脂（E P O M I K R 1 4 0）及び硬化剤（E P O M I K Q 6 8 1）の一般的的性質等を表-2. 7、表-2. 8に示す。

表-2. 7 硬化樹脂の性質 (E P O M I K R - 1 4 0)

試験項目 単位	硬化剤								
	Q-604	Q-611	Q-614	Q-629	Q-631	Q-640	Q-654	Q-691	Q-694
引張強度 (kg/mm <sup>2</sup> )	6.1	4.5	7.2	7.7	7.3	7.4	6.0	6.5	6.0
圧縮強度 (kg/mm <sup>2</sup> )	11.0	4.0	11.9	11.5	—	10.2	8.0	8.1	—
曲げ強度 (kg/mm <sup>2</sup> )	9.7	4.8	13.7	12.1	11.0	12.0	9.0	9.5	10.3
曲げ弾性係数 (kg/mm <sup>2</sup> )	435	56	448	418	280	310	270	270	285
IZOD衝撃強度 (kg·cm/cm)	0.8	3.7	1.4	2.3	—	2.0	—	6.6	4.6
ショア硬度 (Dスケール)	84	80	87	88	—	84	—	82	84
熱変形温度 (°C)	59	46.5	74	68	79	83	—	85	—

( b ) PVC固化体

用いる主原料のPVC樹脂（ゼオン43）の一般的的性質を表-2. 9に示す。

表-2. 9 ゼオン43の一般的的性質

外 観	白 色 微 粉 末
粒 度	325メッシュ残存量0.1%以下
比 重	1.40
平均重合度	1800
加熱減度	0.5%以下

表-2.8 硬化剤の性質 (E P O M I K Q-681)

性状	チオ尿素誘導体	
品質	色相(ガートナー)	7以下
	アミン価	470~530
	粘度(25°C)	2000~5000
	比重(25°C)	1.16±0.1
	最適配合量(対R-140, phr)※2	25~40
	可使時間(25°C/50g, min)	8~15
特性 (対R-140) ※1	引張強度(Kg/mm <sup>2</sup> )	1.8
	圧縮強度(Kg/mm <sup>2</sup> )	13.0
	曲げ強度(Kg/mm <sup>2</sup> )	1.6
	ロックウェル硬度(M-スケール)	99
	熱変形温度(°C)	72
耐药品性 (対R-140) ※1	吸水率(rt×7, 20日)(wt/wt%)	0.3, 0.9
	10%NaOH(rt×7, 20日)(wt/wt%)	0.3, 0.6
	20%NaOH(rt×7, 20日)(wt/wt%)	0.2, 0.5
	5%HCl(rt×7, 20日)(wt/wt%)	0.8, 2.0
	10%HCl(rt×7, 20日)(wt/wt%)	2.4, 3.9
	5%NaCl(rt×7, 20日)(wt/wt%)	0.4, 0.8
	トルエン(rt×7, 20日)(wt/wt%)	27.9, 21.6

※1 硬化条件: Q-681 25phr, rt)

※2 phr: per hundred resin

※3 rt: room temperature

## (C) 一般的なプラスチック固化体

### イ. 固化材の主な性質

プラスチック固化のために研究・開発あるいは実用化されている固化材の主な性質を表-2. 10に示す。

表-2. 10 プラスチックの性質

性質 \ 固化材	ポリスチレン	尿素-ホルムアルデヒド	ポリエステル	エボキシ	ポリエチレン
モノマー	ステレン ジビニルベンゼン	尿素 ホルムアルデヒド	ビニルエステル ステレン、 セルロース、粘度 材木粉	エボキシ フェノール	既に重合したもの を使用
充填材			シリカゲル、砂	シリカゲル、砂	
触媒	アソビスイソブチロニトリル	無機酸	有機過酸化物*		
水分保有能力	小	多いにあり	ポリビニルエステル以外は小さい	小	小
燃焼性	ステレンモノマーは爆 発性がある	小	ステレンモノマーは爆 発の可能性あり	小	着火点 340°C
経時劣化	小	脱水によりもろくなる			
耐微生物性	微生物による影響 あり				高
密度	1-1.1	1-1.3	1.1-1.2	1.1	0.95-1.0
圧縮強度			200 MPa		
軟化点					100-135°C
分解温度	>350°C				>160°C

以下、一般的なプラスチック固化体について、物理的、化学的、放射線的特性等の物性を示す。

### ロ. 物理的性質

固化体の物性を評価する場合、廃棄物と固化材との割合を正確に把握しておくことはデータの評価上重要である。種々の固化体中の廃棄物の割合、固化体密度を表-2. 11に示す。

また、機械的特性値を表-2. 12に示す。

表-2.11 種々の固化体中の廃棄物の割合

固 化 材	含有廃棄物		密 度 (kg/m <sup>3</sup> )
	重 量 %	体 構 %	
セ メ ン ト	<2 d to 66	10 to 90	1500 to 2300
セ メ ン ト + 添加材	15 to 25	13 to 22	1300 to 2000
ポリマー／セメント	16.7 to 35.5		1450 to 2090
セ ラ ミ ッ ク	90 to 95	90 to 95	3500 to 5500
ガ ラ ス	9 to 30	15 to 45	2500 to 3000
ア ス フ ア ル ト	25 to 80	13 to 60	1060 to 1500
ポ リ エ チ レ ン	30 to 70	18 to 70	~1100
尿素-ホルムアルデヒド樹脂	30 to 70	15 to 90	1000 to 1300
ポ リ エ ス テ ル 樹 脂	8 to 70	35 to 70	1040 to 1300
エ ボ キ シ 樹 脂	~ 45	~ 50	~1100

表-2.12 固化体の機械的強度

固 化 体	圧縮強度 (MPa)	引張強度 (MPa)	衝撃強度 J/m <sup>2</sup>	破断の粘り強さ J/m <sup>-2</sup>
セ メ ン ト	3.2 to 70	2 to 4	15 to 22	300 to 400
ポリマー-セメント	64 to 96		3 to 13	96 to 260
セ ラ ミ ッ ク	1000 to 2000	100 to 300		
尿素-ホルムアルデヒド	0.42 to 5			
ポ リ エ ス テ ル	8.8 to 98	5 to 15	23 to 38	460 to 750

## ハ. その他の物理的性質

固化体の均質性及び空隙率は、機械的特性に影響を及ぼす。とくに均質性については相分離、層形成によって機械的強度の値を左右する。また、浸透性は固化体の安定性、機械的特性や含有廃棄物の浸出性に影響を及ぼす。

## 二. 化学的性質

考慮すべき化学的性質としては、以下のものがあげられる。

- 熱的安定性（耐火性）
- 耐水性／耐溶剤性

これらの中で熱的安定性（耐火性）については表-2. 13に示すとおりである。

表-2. 13 20 kg大の固化体の耐火性

パラメータ	固化体の性質					
	BWRからの濃縮廃液		PWRからの濃縮廃液	イオン交換樹脂		フィルタ・スラッシュ
固化材	ポリエステル	エポキシ	ポリエステル	ポリエステル	エポキシ	エポキシ
試験時間 (min)	35	18	30	25	15	18
温度 (°C)	830	950	600	600	980	900
重量減少 (%)	4	12	7.7	7.7	19	24.6
炭化層の厚さ (mm)	5	—	2	2	—	—

## ホ. 放射線化学的性質

固化体はその中に含んでいる放射性核種、とりわけCo-60、Cs-137及びSr-90のような長半減期核種によって放射線を受け、物性の変化をもたらす。原子炉から発生する通常の低レベル放射性廃棄物を固化した場合、固化体が無限時間に受ける吸収線量の上限は、 $10^5$ ～ $10^6$  radと考えてよい。プラスチック固化体の耐放射線性は比較的アスファルト固化体に類似しているが、体積膨張などはほとんど引き起こさない。ポリエチレン固化体を例にとると、放射線による圧縮強度の変化は図-2. 5のとおりであり、さほど大きな影響は与えない。熱硬化性樹脂固化体についても同様である。また、放射線による分解ガスはポリエチレン固化体の場合、水素が殆どであり、その発生量は $10^9$  rad吸収線量の場合、100 g当たりのモル数で表すと0.2程度である。ポリエステル固化体の場合、炭酸ガスが0.12、水素0.08、一酸化

炭素0.02、メタン0.05程度である。

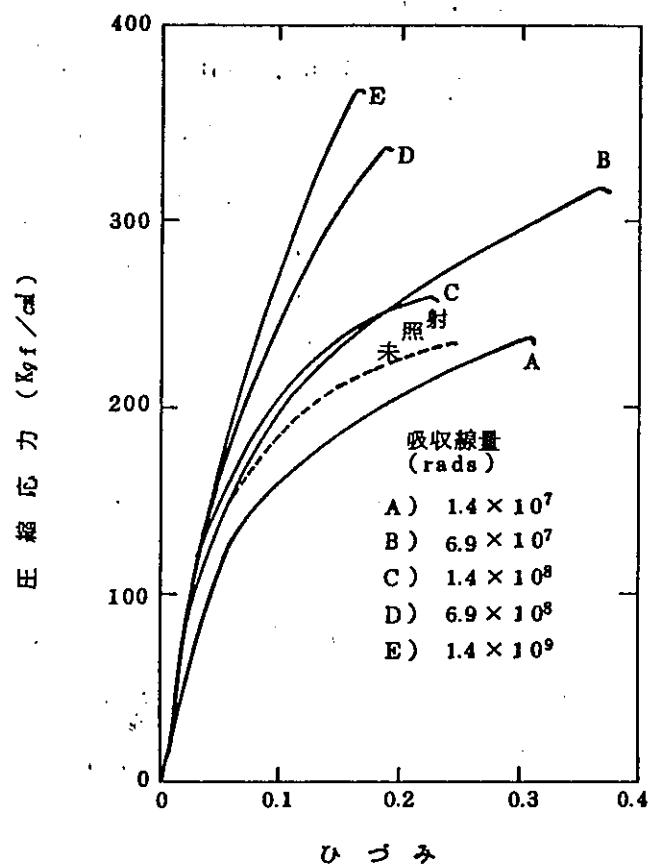


図-2.5 ポリエチレン固化体の耐放射線性

## 2-2-2 対象核種

本調査における対象核種の選定にあたっては、処理対象廃液中の存在量、半減期及び処分の観点等を考慮し、下記に示す16元素21核種とした。

- ①Am-241 ②C-14 ③Ce-144 ④Cm-242 ⑤Cm-244
- ⑥Co-60 ⑦Cs-134 ⑧Cs-137 ⑨H-3 ⑩I-129
- ⑪Ni-63 ⑫Nb-95 ⑬Pu-238 ⑭Pu-239 ⑮Pu-240
- ⑯Ru-103 ⑰Ru-106 ⑱Sb-125 ⑲Sr-90 ⑳U
- ㉑Zr-95

以下に各々の性質を記す。<sup>6, 8, 9, 23, 28, 43)</sup>

## (1) アメリシウム (Am-241)

アメリシウムは、1945年シカゴ大学金属研究所（現在同大学Argonne国立研究所）においてSeaborg, James, Morgan, Ghiorsoにより最初に合成され、同定された。初めに確認された同位体は、Am-241で、これはPu-239の中性子多重捕獲によって生成された。それ以来多くのアメリシウム同位体が製造されている。

アメリシウムの核データを表-2. 14に示す。この中で廃棄物中に比較的多量に含む核種としては、Pu-241のβ線崩壊によって生成されるAm-241である。水溶液中でアメリシウムは、4つの酸化段階、+3、+4、+5、及び+6価で存在し、その中で+3価の酸化段階が最も安定な形である。

一方、地球化学的知見からアメリシウムの通常の化学種としては $\text{Am}(\text{OH})^{3+}$ ,  $\text{AmO}_2$ と考えられている。

図-2. 6に25°C、1バール

の圧力におけるAm-O-H系に対するEh-pH線図を示す。この線図には、炭酸アメリシウムの領域を含ませていないが、 $\text{AmOH}^{2+}$ の形で存在しているであろう可溶性のアメリシウムは、種々のランタノイドの炭酸塩と共に存すると、その炭酸塩にとりこまれると考えられる。

また、pH 5.5~pH 12の範囲では、アメリシウムは溶液中にコロイド状で存在すると考えられている。

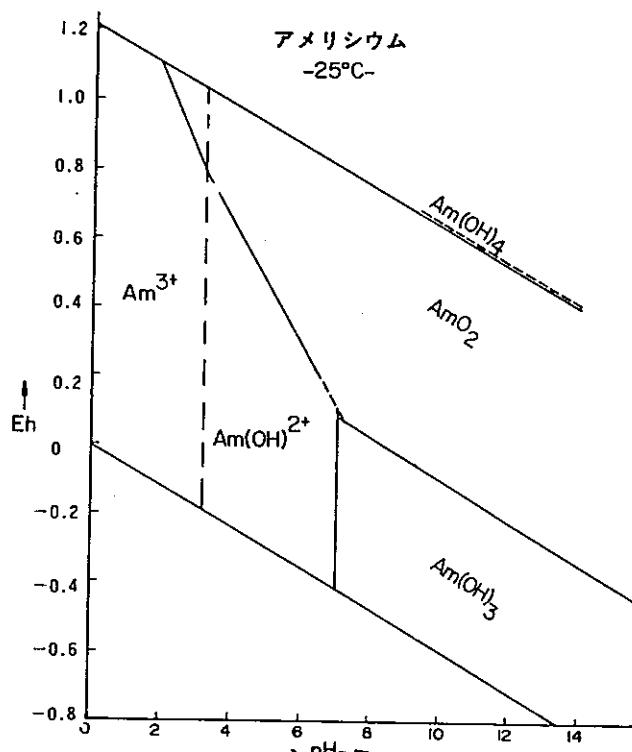


図-2. 6 25°C、1バールの圧力におけるAm-O-H系（部分）に対するEh-pH線図

pH 1.2以上では、 $\text{Am}(\text{OH})_3$ 沈殿が生成されるか、あるいは $\text{Am}(\text{CO}_3)_3$ の沈殿が生成される。放射性廃棄物（アスファルト固化体、プラスチック固化体）中のアメリシウムの存在形は、確認されていない。アメリシウム+3価は全ての酸溶液中で安定で、その化学的性質は、典型的な希土類元素イオンによく似ている。とくにNd（ネオジウム）は+3価でのイオン半径が極めて似ていることから、類縁元素としてしばしば利用される。

表-2. 14 アメリシウム核データ

原 子 量 (243)			イオン化エネルギー(1)		6.05 eV	融 点	<1170 K	KX線エネルギー			
電子配置 [Rn] 5f <sup>7</sup> 7s <sup>2</sup>			イオン化エネルギー(2)		eV	沸 点	2880 K	$K\alpha_1 = 106.523 \text{ keV}$			
密 度 11.87 g/cm <sup>3</sup>			原 子 半 径		Å			$K\beta_1 = 120.360 \text{ keV}$			
核種 <i>A</i>	半減期 <i>T<sub>1/2</sub></i>	崩壊形式 または 存 在 比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)				おもな生成反応		$M_A$ 原子質量 (u) $\Delta$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_A$ ( $\text{R} \cdot \text{h}^{-1} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{Ci}^{-1}$ )		
			$E_\alpha$	$E_\gamma$ (%)	$E_\gamma$	$I_\gamma$	$I_{\text{co}}$	$A_T(a, b)$	$\sigma \cdot \text{barn}$	$E_\alpha \text{ MeV}$	
237	73.2 m	EC ~100% $\alpha$ 0.025%	$\alpha$	6.042	0.28023 0.4384 0.4735	47.3 8.28 4.30		$^{239}\text{Pu}(p, 3n)$ $^{239}\text{Pu}(d, 4n)$			$M_A$ 237.05007 SYST $\Delta$ 46.640 SYST
238	1.63 h	EC ~100% $\alpha$ $1 \times 10^{-4}\%$	$\alpha$	5.94	0.5610 0.6051 0.9187 0.9629 1.5773	11.3 7.83 23.8 29 2.99		$^{239}\text{Pu}(p, 2n)$ $^{239}\text{Pu}(n, 3n)$ $^{237}\text{Np}(\alpha, 3n)$	0.023 0.013	75 39	$M_A$ 238.051978(34) $\Delta$ 48.417(32)
239	11.9 h	EC 100% $\alpha$ 0.01%	$\alpha$	5.732(0.0007) 5.774(0.0042)	0.18172 0.2098 0.22638 0.22818 0.27760	1.08 3.45 3.30 11.3 15		$^{239}\text{Pu}(p, n)$ $^{239}\text{Pu}(d, 2n)$ $^{237}\text{Np}(\alpha, 2n)$	0.027 0.015	15 28	$M_A$ 239.053020(5) $\Delta$ 49.389(5)
240	50.8 h	EC 100% $\alpha$ $1.9 \times 10^{-4}\%$	$\alpha$	5.378	0.88883 0.98779	25.1 73.2		$^{239}\text{Pu}(d, n)$ $^{237}\text{Np}(\alpha, n)$	0.014	20	$M_A$ 240.055226(22) $\Delta$ 51.443(20)
241	432 y	$\alpha$ 100%	$\alpha$	5.4429(13.1) 5.4856(85.2)	0.02635 0.05954	2.4 35.7	13.8 48.0	$^{240}\text{Pu} \rightarrow$	$\sigma_e$ 800 $\sigma_f$ 3.0		$M_A$ 241.0568246(24) $\Delta$ 52.9322(23)
242	16.0 h	$\beta^-$ EC 83.7% 17.3%	$\beta^-$	0.625 (49) 0.667 (33)	0.04212 0.04450	~0 ~0	55 13	$^{241}\text{Am}(n, \gamma)$ multiple n-capt. from $^{239}\text{Pu}$	$\sigma_e$ 2900		$M_A$ 242.0595412(29) $\Delta$ 55.4627(27)
242m	152 y	IT 99.5% $\alpha$ 0.476%	$\alpha$	5.140(0.028) 5.205(0.424)	0.0493 0.0668 0.0867 0.1096 0.1634	0.20 0.022 0.038 0.025 0.025		$^{241}\text{Am}(n, \gamma)$	$\sigma_e$ 2000 $\sigma_f$ 6000		$M_A$ 242.0595934(29) $\Delta$ 55.5113(27)
243	7370 y	$\alpha$ 100%	$\alpha$	5.233 (11.0) 5.275 (87.4)	0.04353 0.07467	5.5 66 $\rightarrow^{230}\text{Np}$			$\sigma_e$ 74 $\sigma_f$ <0.07		$M_A$ 243.0613741(34) $\Delta$ 57.1701(32)
244	10.1 h	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.387	0.0993 0.1537 0.7441 0.8982	5.3 17.8 66.0 27.1	94 50 5.8 0.4	$^{243}\text{Am}(n, \gamma)$	$\sigma_f$ 2300		$M_A$ 244.0642818(33) $\Delta$ 59.8786(31)
244m	26 m	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	~0.45 (<2) 1.455 (~18) 1.498 (80)	0.0429 0.980 1.050	<1 <1	20	$^{243}\text{Am}(n, \gamma)$			$M_A$ 244.064357(4) $\Delta$ 59.949(4)
245	2.04 h	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.61 0.65 0.905	0.2409 0.2528 0.3881	0.16 6.1 0.14		$^{240}\text{Pu} \rightarrow$			$M_A$ 245.0664490(39) $\Delta$ 61.8973(36)
246A	39 m	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	1.12 (~53) 1.25 (13) 1.80 (14) 2.00 (20)	0.0992 0.1274 0.1535 0.205 0.629 0.679 0.756 0.781 0.834 0.839	4.8 3.2 25.4 36.0 2.7 53.0 13.3 4.0 5.3 2.1		$^{240}\text{Pu}(\alpha, d)$ $^{240}\text{Pu}({}^3\text{He}, p)$			$M_A$ 246.06969(5) $\Delta$ 64.920(50)
246B	25.0 m	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	1.19 (14) 1.22 (7) 1.42 (7) 1.46 (16) 2.26 (7)	0.73441 0.79880 0.83360 1.03600 1.06204 1.07886 1.08515	1.21 25.6 1.84 13.1 17.7 28.7 1.58		$^{240}\text{Pu} \rightarrow$			$M_A$ 246.06969(5) $\Delta$ 64.920(50)
247	24 m	$\beta^-$ 100%			0.225 0.285	5.75 23		$^{240}\text{Pu}(\alpha, p)$			$M_A$ 247.07207 SYST $\Delta$ 67.130 SYST

## (2) 炭素 (C-14)

炭素は、古代から知られていた元素の1つで、元素名は「炭」を意味するラテン語のCarbonisに基づいている。炭素の同位体としては、ダイヤモンドグラファイト・無定形炭素（炭）がある。炭素の化合物は膨大な有機物質の種類を含め80万種以上知られている。

単体炭素の化学的性質は、無定形炭素が最も活発でグラファイトがこれに次ぐ。これらは、有機、無機を問わず溶媒には、まったく溶解しない。高温で鉄、コバルト、ニッケル等にやや溶けるが冷却すれば主にグラファイトとなって析出する。

炭酸塩の化学的性質において、アルカリ金属（Liを除く）の塩は水によく溶けるが、他の塩は難溶物が多い。固体の炭酸塩を加熱すると、 $\text{CO}_2$ を放って酸化物となる。しかし、陽性の強い元素の塩では、分解することなく融解する。

二酸化炭素は水に対し常温でおよそ等容積が溶解し、この溶液はわずかに酸性を示す。アルカリ溶液には容易に吸収される。

炭素の放射性同位体であるC-14は、天然において $^{14}\text{N}$  (n, p)  $^{14}\text{C}$ 反応で大気中に微量存在する。原子炉内でも同様な反応が起こり、多量生成される。C-14の核データを表-2. 15に示す。

表-2. 15 炭素核データ

原子量	12.011	イオン化エネルギー(1)	11.260 eV	融点	K	K X線エネルギー								
電子配置	[He] 2s <sup>2</sup> 2p <sup>2</sup>	イオン化エネルギー(2)	24.383 eV	沸点	K	$K\alpha=0.277 \text{ keV}$								
密度	3.52 g/cm <sup>3</sup> (Diamond) 2.25 g/cm <sup>3</sup> (Graphite)	原子半径	0.77, 0.71 Å											
		イオン半径	4+(3) 0.15 Å 4-(6) 1.60											
核種 <i>A</i>	半減期 <i>T<sub>1/2</sub></i>	崩壊形式 または 存在比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)				おもな生成反応			<i>M<sub>A</sub></i> 原子質量 (u)	$\Delta$ 質量欠損 (MeV)	$\Gamma_s$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )		
			$\gamma$	<i>E<sub>γ</sub></i> (%)	<i>E<sub>γ</sub></i>	<i>I<sub>γ</sub></i>	<i>I<sub>α</sub></i>	<i>A<sub>γ</sub>(a, b)</i>	$\sigma$ barn	<i>E<sub>a</sub></i> MeV				
10	19.4 s	$\beta^+$ 100%	$\beta^+$	0.848 (1.7) 1.871 (98.3)	0.511( $\gamma^\pm$ ) 0.7183 1.0218	200 98.5 1.46		<sup>10</sup> B( $p, n$ )				<i>M<sub>A</sub></i> 10.0168576(7) $\Delta$ 15.7029(7)		
11	20.4 m	$\beta^+$ 99.76% EC 0.24%	$\beta^-$	0.961(99.76) 0.385	0.511( $\gamma^\pm$ )	199.52		<sup>11</sup> B( $p, n$ ) <sup>10</sup> B( <sup>3</sup> He, $p n$ ) <sup>10</sup> B( $d, n$ ) <sup>12</sup> C( <sup>3</sup> He, 2 $p 2n$ ) <sup>9</sup> Be( <sup>3</sup> He, $n$ ) <sup>14</sup> N( $p, \alpha$ )	0.335(15) 0.200 0.260(39) 0.349(26) 0.113(11) 0.244	8.5 9 2.0 8.9 4.3 7.4			<i>M<sub>A</sub></i> 11.0114331(12) $\Delta$ 10.6500(11) $\Gamma_s$ 0.588	
<12>		98.892%						$\sigma_e$	0.0034			<i>M<sub>A</sub></i> 12.0000000(0) $\Delta$ 0.0000(0)		
<13>		1.108%						$\sigma_e$	0.0009			<i>M<sub>A</sub></i> 13.003354839(17) $\Delta$ 3.125038(18)		
14	5730 y	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.1561 (100) 0.0493				<sup>14</sup> N( $n, p$ ) <sup>13</sup> C( $n, \gamma$ ) <sup>14</sup> N( $n, p$ ) <sup>17</sup> O( $n, \alpha$ ) <sup>15</sup> N( $n, p$ )	1.81(5) 0.0009(2) 0.077(14) 0.235(10) 0.023	thermal 14.7 thermal 1.29			<i>M<sub>A</sub></i> 14.003241993(24) $\Delta$ 3.019922(24)	
15	2.4 s	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	4.474 (68) 9.773 (32)	5.299	68		<sup>15</sup> N( $n, p$ ) <sup>14</sup> C( $d, p$ )	0.016(4)	14.8			<i>M<sub>A</sub></i> 15.0105993(9) $\Delta$ 9.8732(8)	

### (3) セリウム (Ce-144)

1803年にドイツのM. H. KlaprothとスウェーデンのJ. Berzeliusによってそれぞれ独立に発見された。核分裂によって生成するCe-144は、TRU核種に類似する。セリウムの核データを表-2. 16に示す。

セリウムは、ランタノイドのうちでは、3価の他に安定な4価の化合物及びイオンを作るただ1つの元素である。4価のセリウムイオンは酸化剤として用いられるが、その化学的性質はトリウムの4価の場合と似ている。

表-2. 16 セリウム核データ

原 子 量	140.12 (1)	イオン化エネルギー(1)	5.65 eV	融 点	1077 K	KX線エネルギー				
電子配置	[Xe] 4f <sup>1</sup> 5d <sup>1</sup>	イオン化エネルギー(2)	10.85 eV	沸 点	3699 K	$K\alpha_1 = 34.720 \text{ keV}$				
原子半径						$K\beta_1 = 36.257 \text{ keV}$				
密 度	6.757 (正方) 6.657* (六方) g/cm <sup>3</sup>	イオン半径	4+(6) 0.94 Å 3+(6) 1.07 2+(8) 1.22							
核種	半減期	崩壊形式 または 存在比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)		おもな生成反応	$M_A$ 原子質量 (u) $\Delta$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_i$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )				
<i>A</i>	<i>T<sub>1/2</sub></i>		$E_\gamma$ (%)	$E_T$	$I_T$	$I_{ce}$	$A_T(a, b)$	$\sigma$ barn	$E_a$ MeV	
132	3.51 h	EC 100%		0.1554 0.1821 0.1901 0.2167 0.2514 0.3027 $\rightarrow^{132}\text{La}$	11.1 78.6 2.7 5.1 2.5 2.3	3.5 3.4	$p + \text{Ce}$			$M_A$ 131.91160 SYST $\Delta$ -82.340 SYST
133 A	5.40 h	EC $\beta^+$	$\beta^+$ 1.3	0.05839 0.13080 0.47722 0.51036 0.5110( $\gamma^\pm$ ) $\rightarrow^{133}\text{La}$	19.0 17.8 38.7 20.4		$^{139}\text{La}(p, 7n)$			$M_A$ 132.91179 SYST $\Delta$ -82.270 SYST
133 B	97 m	EC $\beta^+$		0.0769 0.0879 0.09726 0.5577	16 7.2 45 11					
134	75.9 h	EC 100%		0.13041 0.16231 $\rightarrow^{134}\text{La}$	0.209 0.23		$^{139}\text{La}(p, 6n)$			$M_A$ 133.90900 SYST $\Delta$ -84.770 SYST
135	17.8 h	EC $\beta^+$ 99+%	$\beta^+$ <1% 0.81	0.03452 0.20650 0.26556 0.30007 0.51805 0.57226 0.57709 0.60676 0.78359 0.82838 $\rightarrow^{135}\text{La}$	1.9 8.0 42.5 23.0 13.6 10.6 5.2 19.6 10.6 5.19	5.4 1.0 3.0 1.1 0.1 0.1	$^{139}\text{La}(p, 5n)$ $^{139}\text{La}(d, 6n)$ $^{139}\text{Ce}(n, 2n)$	1.318(90)	14.4	$M_A$ 134.90923(11) $\Delta$ -84.550(100)
<136>			0.193%					$\sigma_e$ 6.6		$M_A$ 135.90714(5) $\Delta$ -86.500(40)
137	9.0 h	EC $\beta^+$ 99+%	$\beta^+$ 0.01% 0.14(0.01)	0.43322 0.43659 0.44715 0.48247 0.69872 0.91580 0.92635	0.064 0.33 2.2 0.055 0.039 0.064 0.042		$^{137}\text{Pr} \rightarrow$ $^{139}\text{Ce}(n, \gamma)$ $^{139}\text{Ba}(\alpha, 3n)$ $^{139}\text{Ce}(n, 2n)$ $^{139}\text{Ba}(\alpha, n)$ $^{135}\text{Ba}(\alpha, 2n)$ $^{137}\text{Ba}({}^3\text{He}, 3n)$	6.3(15) 0.203 0.942(100) 0.139 0.225 0.164	37 14.7 18.7 24.6 22	$M_A$ 136.90777 SYST $\Delta$ -85.910 SYST
137 m	34.4 h	IT EC 99.2% 0.8%		0.16926 0.25429 0.76230 0.82482 0.83538 $\rightarrow^{137}\text{Ce}$	0.44 10.9 0.19 0.44 0.10	88.12	$^{139}\text{Ce}(n, \gamma)$ $^{139}\text{Ba}(\alpha, 3n)$ $^{139}\text{Ce}(n, 2n)$ $^{139}\text{Ba}(\alpha, n)$ $^{135}\text{Ba}(\alpha, 2n)$ $^{137}\text{Ba}({}^3\text{He}, 3n)$	0.95(25) 0.059 0.974(88) 0.223 0.813 0.382	39 14.7 21 27.4 26	$M_A$ 136.90804 SYST $\Delta$ -85.657 SYST
<138>			0.26%					$\sigma_e$ 1.04		$M_A$ 137.905996(14) $\Delta$ -87.565(13)
139 v	137.7 d	EC 100%		0.16585	79.9	20.1	$^{139}\text{Ce}(n, \gamma)$ $^{139}\text{Ce}(n, 2n)$ $^{139}\text{La}(p, n)$	1.1(3) 1.59(13) 0.301(50)	14.4 10.3	$M_A$ 138.906639(8) $\Delta$ -86.966(8) $\Gamma_i$ 0.121
139 m	56 s	IT 100%		0.7544	92.5	7.5	$^{139}\text{Ce}(n, \gamma)$ $^{139}\text{Ce}(n, 2n)$ $^{142}\text{Nd}(n, \alpha)$	0.015(5) 0.62(70) 0.010(2)	14.4 14.8	$M_A$ 138.907449(8) $\Delta$ -86.212(8)
<140>			88.48%					$\sigma_e$ 0.6		$M_A$ 139.905442(6) $\Delta$ -88.081(6)
141 v	32.50 d	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$ 0.435 (70.5) 0.580 (29.5) 0.1459	0.14544	48.4	22.1	$^{140}\text{Ce}(n, \gamma)$ $^{140}\text{Ce}(n, 2n)$ $^{141}\text{Pr}(n, p)$ $^{141}\text{La} \rightarrow$ $^{142}\text{Ce}(p, pn)$ $^{142}\text{Ce}(\alpha, 2p3n)$	0.57(4) 1.73(17) 0.0114	14.4 14.8	$M_A$ 140.908279(6) $\Delta$ -85.438(6) $\Gamma_i$ 0.0440
<142>	>5×10 <sup>6</sup> y		11.07%					$\sigma_e$ 1		$M_A$ 141.909249(7) $\Delta$ -84.535(6)
143	33.0 h	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$ 0.158 (1.41) 0.733 (13.5) 1.104 (49) 1.398 (35)	0.05736 0.23156 0.29326 0.35061 0.49035 0.66455 0.72191 0.88044 $\rightarrow^{143}\text{Pr}$	11.7 2.09 43.4 3.25 2.16 5.8 5.5 1.05	76 8.2	$^{142}\text{Ce}(n, \gamma)$ $^{140}\text{Nd}(n, \alpha)$ $^{142}\text{Ce}(d, p)$	0.95(5) 0.0083(20) 0.23(1)	14.8 10	$M_A$ 142.912389(7) $\Delta$ -81.610(6) $\Gamma_i$ 0.180
144 v	284.3 d	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$ 0.182 (19.4) 0.235 (4.2) 0.816 (75.8)	0.03362 0.04089 0.05343 0.08011 0.13354 $\rightarrow^{144}\text{Pr}$	0.29 0.40 0.10 1.13 11.1	1.39 1.11 0.81 2.77 6.42	fission			$M_A$ 143.913654(7) $\Delta$ -80.431(6) $\Gamma_i$ 0.0126
145	3.0 m	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$ 1.28 (25) 1.70 (70) 2.14 (5)	0.063 0.285 0.352 0.4398 0.725 0.915 1.148 $\rightarrow^{145}\text{Pr}$	13.5 8.8 5.5 9.1 65.3 4.6 11.1	73.7	fission $^{146}\text{Nd}(n, \alpha)$	0.005(1)	14.8	$M_A$ 144.91720(10) $\Delta$ -77.120(90)
146	14.2 m	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$ 0.577 (3.6) 0.730 (99)	0.0983 0.1336 0.1412 0.2103 0.2183 0.2509 0.2647 0.3168 $\rightarrow^{146}\text{Pr}$	7.0 15.7 4.7 6.6 21.4 3.8 10.1 55.5	0.8 0.9 1.8 0.3 0.6 0.5 0.3 0.5	fission			$M_A$ 145.91867(13) $\Delta$ -75.760(120)

#### (4) キュリウム (Cm-242, Cm-244)

96番元素であるキュリウムは、1944年G. T. Seaborg, R. A. James, A. Ghiorso (シカゴ大学金属研究所) によって、プルトニウム (Pu-239) にサイクロトロンで加速されたヘリウムイオンをぶつけ、 $^{239}\text{Pu}$  ( $\alpha$ , n)  $^{242}\text{Cm}$  で最初に作られた。キュリウムの核データを表-2. 17に示す。キュリウムはCe・Amと同様、希土類元素の化学的性質を有する。水溶液中では、おもにCm (III) として存在する。強力な酸化剤を使用しても、溶液中では、高次の酸化状態は得られにくい。

表-2. 17 キュリウム核データ

原子量 (247)			イオン化エネルギー(I)		eV	融点	1610±40K	KX線エネルギー
電子配置 [Rn] 5f <sup>7</sup> 6d <sup>1</sup> 7s <sup>2</sup>			イオン化エネルギー(2)		eV	沸点	K	$K\alpha_1 = 109.290 \text{ keV}$
密度	g/cm <sup>3</sup>		原子半径		Å			$K\beta_1 = 123.423 \text{ keV}$
			イオン半径		Å			
核種	半減期	崩壊形式 または 存在比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)			おもな生成反応		
A	T <sub>1/2</sub>		E <sub>x</sub> (%)	E <sub>γ</sub>	I <sub>γ</sub>	I <sub>α</sub>	A <sub>T</sub> (a, b)	σ barn
238	2.3 h	EC <90% α >10%	α 6.52	→ <sup>234</sup> Pu			<sup>238</sup> Pu(α, 5n) <sup>238</sup> Pu(α, 4n)	
239	2.9 h	EC 100%		0.1871 → <sup>230</sup> Am			<sup>239</sup> Pu(α, 4n)	
240	27 d	α 100%	α 6.248 (28.9) 6.291 (71.1)	→ <sup>236</sup> Pu			<sup>239</sup> Pu(α, 3n)	
241	32.8 d	EC 99.0% α 1.0%	α 5.885 (0.12) 5.928 (0.18) 5.939 (0.69)	0.47181	71		<sup>239</sup> Pu(α, 2n)	
242	162.8 d	α 100%	α 6.0694(26.2) 6.1128(73.8)	0.04408 0.1019 0.1574	0.034 0.0031 0.0014	26.2 0.031	<sup>242m</sup> Am → multiple n-capt. from <sup>238</sup> U, <sup>239</sup> Pu etc.	σ <sub>e</sub> 20 σ <sub>f</sub> <5
243	28.5 y	EC 99.7% 0.26%	α 5.741 (10.7) 5.785 (73.5) 5.992 (5.8) 6.058 (5.0)	0.2098 0.2282 0.2776	3.3 10.6 14.0		multiple n-capt. from <sup>238</sup> U, <sup>239</sup> Pu etc.	σ <sub>e</sub> 250 σ <sub>f</sub> 660
244	18.1 y	α 100%	α 5.7627(23.6) 5.8048(76.4)	0.04282 0.09886 0.15263	0.026 0.0017 0.0011	23.6	multiple n-capt. from <sup>238</sup> U, <sup>239</sup> Pu etc.	σ <sub>e</sub> 15
245	8500 y	α 100%	α 5.304 (5.0) 5.362 (93.2) 5.529 (0.6)	0.133 0.174 → <sup>241</sup> Pu	4.5 4.6		multiple n-capt. from <sup>238</sup> U, <sup>239</sup> Pu <sup>244</sup> Am, <sup>244</sup> Cm etc.	σ <sub>e</sub> 200 σ <sub>f</sub> 1900
246	4.7 × 10 <sup>3</sup> y	α 99.97% SF 0.03%	α 5.342 (21) 5.385 (79)	0.04455	0.025		multiple n-capt. from <sup>238</sup> U, <sup>239</sup> Pu, <sup>244</sup> Cm etc. <sup>250</sup> Cf →	σ <sub>e</sub> 15
247	1.6 × 10 <sup>7</sup> y	α	4.869 (71.0) 5.211 (5.7) 5.266 (13.8)	0.4024	72		multiple n-capt. from <sup>238</sup> U, <sup>239</sup> Pu <sup>244</sup> Cm etc.	σ <sub>e</sub> 180
248	3.5 × 10 <sup>5</sup> y	α 91.74% SF 8.26%	α 5.035 (18.0) 5.078 (81.9)				<sup>252</sup> Cf → multiple n-capt. from <sup>238</sup> U, <sup>239</sup> Pu <sup>244</sup> Cm etc.	σ <sub>e</sub> 6
249	65 m	β <sup>-</sup> ~100%	β <sup>-</sup> 0.90	0.36876 0.56039 0.63431	0.35 0.84 1.5		<sup>248</sup> Cm(n, γ) multiple n-capt. from <sup>238</sup> U, <sup>239</sup> Pu, <sup>244</sup> Cm, etc.	
250	≤1.1 × 10 <sup>4</sup> y	SF ~61% α ~25% β <sup>-</sup> ~14%					multiple n-capt. from <sup>238</sup> U	

## (5) コバルト (Co-60)

コバルトは、主としてヒ素の化合物としてニッケルを伴い、鉱石中から産出される。初めてコバルトを取り出したのは、スウェーデンのBrandt (1935) である。原子炉構造材中に含まれるCo-59は、核分裂によって生成する中性子との( $n, \gamma$ )反応によりCo-60が生成される。Co-60は半減期が5.2年と短いが、放射性廃棄物の中で存在量が多く、外部被曝上問題となる核種である。コバルトの核データを表-2. 18に示す。

コバルトの化学的性質は、鉄とよく類似している。鉄と同様にコバルトは、+2、+3価の状態をとり、正イオンの $\text{Co}^{2+}$ 、 $\text{Co}^{3+}$ として水溶液中に溶存する。アルカリ性とした場合、コバルトは2価の水酸化物として沈殿し、空気に触れさせると3価の水酸化物に酸化されることも鉄と同様である。鉄と異なる主な点は、錯体をはるかに作りやすいことであり、例えばアンモニアを加えると  $[\text{CO}(\text{NH}_3)_6]^{3-}$ などの錯体を作り、沈殿は生じない。

表-2. 18 コバルト核データ

原子量 58.9332(1)			イオン化エネルギー(1) 7.864 eV			融点	1765 K	KX線エネルギー				
電子配置 [Ar] 3d <sup>7</sup> 4s <sup>2</sup>			イオン化エネルギー(2) 17.05 eV			沸点	3150 K	$K\alpha_1 = 6.9303 \text{ keV}$				
原子半径			1.25 Å			$K\beta_1 = 7.6494 \text{ keV}$						
密度 8.71 (294K) g/cm <sup>3</sup>			イオン半径 3+(6) 0.63 Å									
8.67*(正方)			2+(6) 0.72									
核種 <i>A</i>	半減期 <i>T<sub>1/2</sub></i>	崩壊形式 または 存在比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)				おもな生成反応		$M_A$ 原子質量 (u) $\Delta$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_s$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )			
			$\gamma$	$E_\gamma$ (%)	$E_T$	$I_T$	$I_{\gamma}$	$\Lambda_T(a, b)$		$\sigma$ barn	$E_a$ MeV	
55	17.5 h	$\beta^+$ EC	77% 23%	$\beta^+$	1.02 (37) 1.50 (51)	0.0918 0.4772 0.5110( $\gamma^{\pm}$ ) 0.8038 0.9315 1.3167 1.3700 1.4087	2.7 20.3 154 2.1 75.0 7.1 3 16.5		$^{54}\text{Fe}(d, n)$ $^{58}\text{Ni}(p, 2p2n)$ $^{58}\text{Fe}(p, 2n)$ $^{58}\text{Ni}(d, 2p3n)$ $^{54}\text{Fe}(\alpha, p2n)$ $^{55}\text{Mn}(^3\text{He}, 3n)$ $^{58}\text{Co}(p, p4n)$	0.050 0.035(2) 0.057(4) 0.030(5) 0.11 0.025(5) 0.0118(35)	8 18 25 21 40.7 28 73	$M_A$ 54.9420034(17) $\Delta$ -54.0239(16)
56	78.76 d	EC $\beta^+$	81% 19%	$\beta^+$ $\bar{\beta}$	0.423 (1.1) 1.46 (18.6) 0.6081	0.5110( $\gamma^{\pm}$ ) 0.84675 0.97742 1.03782 1.17509 1.23826 1.36021 1.77140 2.01535 2.03491 2.59855 3.20224 3.25352 3.27320	38 99.9 1.4 14.1 2.3 67.0 4.3 15.5 8.0 7.8 16.8 3.02 7.4 1.73	0.03	$^{58}\text{Fe}(p, n)$ $^{55}\text{Mn}(\alpha, 3n)$ $^{58}\text{Ni} \rightarrow$ $^{58}\text{Fe}(d, 2n)$ $^{58}\text{Ni}(d, 2p2n)$ $^{54}\text{Fe}(\alpha, pn)$ $^{55}\text{Mn}(^3\text{He}, 2n)$ $^{56}\text{Fe}(^3\text{He}, p2n)$ $^{58}\text{Fe}(\alpha, 3pn)$ $^{58}\text{Ni}(\alpha, 3p3n)$	0.34 0.11(1) 0.31 0.10(1) 0.71 0.120(24) 0.28(3) 0.082 0.188(47)	10.2 38.3 17.2 10 29 15 29.3 63 47	$M_A$ 55.9398426(25) $\Delta$ -56.0367(24) $\Gamma_s$ 1.767
57	271 d	EC	100%			0.01441 0.12206 0.13647 0.6920	9.5 85.6 10.6 0.16	78.4 2.05 1.6	$^{58}\text{Ni}(p, 2p)$ $^{58}\text{Fe}(\alpha, p)$ $^{58}\text{Fe}(p, n)$ $^{58}\text{Mn}(\alpha, 2n)$ $^{58}\text{Ni}(n, np)$ $^{57}\text{Ni} \rightarrow$	0.44(3) 0.62 0.39 0.75(10) 0.520(52)	18.9 16 9 23 14.2	$M_A$ 56.9362938(16) $\Delta$ -59.3424(15) $\Gamma_s$ 0.0954
58	70.8 d	EC $\beta^+$	85.0% 15.0%	$\beta^+$ $\bar{\beta}$	0.474 (15.0) 0.201	0.5110( $\gamma^{\pm}$ ) 0.81076 0.86394 1.67468	30.0 99.4 0.68 0.52	0.03	$^{58}\text{Mn}(\alpha, n)$ $^{59}\text{Co}(n, 2n)$ $^{58}\text{Ni}(n, p)$ $^{58}\text{Ni}(n, np)$	0.20 0.66(6) 0.349 0.51(6)	12 14.6 14.7 5.0	$M_A$ 57.9357553(19) $\Delta$ -59.8440(18) $\Gamma_s$ 0.547
58m	9.15 h	IT	100%			0.02489	0.035	99.95	$^{58}\text{Mn}(\alpha, n)$ $^{59}\text{Co}(n, 2n)$ $^{58}\text{Ni}(n, p)$	0.32(4) 0.447(42) 0.040(15)	14.5 14.1 14.8	$M_A$ 57.9357820(19) $\Delta$ -59.8191(18)
<59>			100%						$\sigma_a$ 37			$M_A$ 58.9331978(16) $\Delta$ -62.2264(15)
60	5.271 y	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	0.3179 (99.92) 1.4911 (0.08) 0.0965	1.17324 1.33250	99.90 99.98		$^{59}\text{Co}(n, \gamma)$ $^{60}\text{Ni}(n, p)$ $^{63}\text{Cu}(n, \alpha)$	17(2) 0.051(9) 0.050	thermal 14.0 14.6	$M_A$ 59.9338202(16) $\Delta$ -61.6466(15) $\Gamma_s$ 1.80
60m	10.47 m	IT $\beta^-$	99.75% 0.25%	$\beta^-$	1.549 (0.24)	0.05860 1.3325	2.03 0.24	97.72	$^{59}\text{Co}(n, \gamma)$ $^{60}\text{Ni}(n, p)$ $^{63}\text{Cu}(n, \alpha)$ $^{60}\text{Fe} \rightarrow$	20(2) 0.009(2) 0.029(8)	thermal 14.8 14.7	$M_A$ 59.9338831(31) $\Delta$ -61.5880(30)
61	99.0 m	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	1.25 (96.4)	0.06742	86.0	11.2	$^{61}\text{Ni}(n, p)$ $^{63}\text{Cu}(\alpha, 4p4n)$ $^{62}\text{Ni}(n, np)$	0.144 0.0023(2) 0.0044(10)	14.6 40.8 14.5	$M_A$ 60.9324778(18) $\Delta$ -62.8970(17)
62	1.50 m	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	2.94 (25.8) 4.07 (68.2)	1.1289 1.1729 1.9851 2.3018 2.3459	11.1 83.8 1.6 14.7 1.3		$^{62}\text{Ni}(n, p)$ $^{65}\text{Cu}(n, \alpha)$	0.022(1) 0.014(10)	14.1 14.7	$M_A$ 61.933973(15) $\Delta$ -61.504(14)
62m	13.9 m	$\beta^-$ IT		$\beta^-$	1.19 (10.3) 1.96 (4.7) 2.06 (19.9) 2.91 (61.3)	1.1635 1.1729 1.7186 2.0037 2.1046	68.1 97.9 6.8 18.6 6.5		$^{62}\text{Ni}(n, p)$ $^{65}\text{Cu}(n, \alpha)$	0.034(2) 0.0019(6)	14.1 14.7	$M_A$ 61.933998(15) $\Delta$ -61.482(14)
63	27.4 s	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	1.41 (1.2) 2.60 (4.7) 3.52 (<1.3) 3.58 (94.0)	0.0871 0.1556 0.9817 1.0691 2.1745	48.4 1.74 2.57 1.60 1.21	48.3	$^{64}\text{Ni}(n, np)$	0.0060(15)	14.1	$M_A$ 62.933601(20) $\Delta$ -61.850(19)

## (6) セシウム (Cs - 134, Cs - 137)

発光スペクトル分析を最初に行ったR. W. BunsenとG. R. Kirchhoffとが1860年に温泉の塩類のスペクトルの中に2本の青色の輝線スペクトルを見いだし、それがセシウムであった。ナトリウム・カリウムと同じアルカリ金属に属し、銀白色の軽くて軟らかい固体であるがふつうは表面が酸化していて黄色っぽく見える。融点が低いのが特徴である。化学的には、非常に反応性に富んでおり、空気中では常温で燃焼し、おもに過酸化物CsO<sub>2</sub>を生じる。水と激しく反応して著しく発熱し、水素を出して水酸化物になる。安定同位体はCs - 133だけである。

数あるセシウム同位体の中でCs - 134は、Cs - 133の中性子捕獲による(n, r)反応により生成し、一方Cs - 137は核分裂生成物として生じる。

セシウムの核データを表-2. 19に示す。

トレーサー量の無担体Cs - 137のような極低濃度のセシウムは、ガラス器具や、プラスチック器具の壁に吸着されやすいので取り扱うときは、酸を加えて吸着を防ぐ必要がある。灰化試料については、セシウムとその酸化物の揮発性による損失が無いよう注意を要する。セシウムイオンはNH<sub>4</sub><sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Pb<sup>+</sup>と化学的によく似ており、一般的なイオンとして取り扱うことが出来る。セシウムの分離方法としては、選択的な反応を有するリンモリブデン酸が用いられる。

セシウムはアルカリ金属のうちで最も重い金属であるが、その化学的性質は、アルカリ金属の共通性質を備えている。

しかし、イオン半径がナトリウムの1.6倍も大きいので水溶液中のCs<sup>+</sup>はほとんど水和せず、またOH<sup>-</sup>との結合力も最も弱い。そのためCsOHは水酸化アルカリのうちで最もアルカリ性が強い。また、種々の沈殿を生ずるときにセシウムが沈殿に吸着し、共沈しやすいので注意をする。

表-2. 19 セシウム核データ

1/2

原 子 量	132.9054(1)	イオン化エネルギー(1)	3.894 eV	融 点	301.8 K	KX線エネルギー						
電子配置	[Xe] 6s <sup>1</sup>	イオン化エネルギー(2)	25.1 eV	(1.2 × 10 <sup>-6</sup> mmHg)	$K\alpha_1 = 30.973$ keV							
原子半径		2.62 Å		沸 点	958 K	$K\beta_1 = 34.987$ keV						
密 度	1.8785 g/cm <sup>3</sup>	イオン半径	1+(6)1.70 Å									
			1+(12)1.82									
核種	半減期	崩壊形式 または 存在比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)				おもな生成反応	$M_A$ 原子質量 (u) $\Delta$ 質量欠損 (MeV) $T_s$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )				
<i>A</i>	<i>T<sub>1/2</sub></i>		$E_\alpha$	$E_\gamma$ (%)	$E_\gamma$	$I_\gamma$	$I_{co}$	$A_T(a, b)$	$\sigma$ barn	$E_a$ MeV		
123	5.87 m	$\beta^+$ ~100% EC	$\beta^+$	3.1 3.2 (27) → <sup>123</sup> Xe	0.0980	14.5	12	<sup>115</sup> In( <sup>12</sup> C, 4n) <sup>122</sup> I( $\alpha$ , 8n)			$M_A$ 122.91316 SYST $\Delta$ -80.890 SYST	
125	45 m	EC 59.4% $\beta^+$ 39.6%	$\beta^+$	1.34 1.52 2.05 (1) (9) (27) → <sup>125</sup> Xe	0.112 0.511( $\gamma^\pm$ ) 0.526 → <sup>125</sup> Xe	8.6 79.2 24.5	~0.1	<sup>122</sup> I( $\alpha$ , 6n) <sup>119</sup> In( <sup>14</sup> N, 4n) <sup>125</sup> Ba ( $\beta^+$ )			$M_A$ 124.90978(5) $\Delta$ -84.040(40)	
126	1.64 m	$\beta^+$ 82% EC 18%	$\beta^+$	3.40 3.80 (~30) (~52)	0.3886 0.4912 0.511( $\gamma^\pm$ )	42 5.3 165		<sup>120</sup> Ba →			$M_A$ 125.90947(15) $\Delta$ -84.330(140)	
127	6.25 h	EC 96.3% $\beta^+$ 3.7%	$\beta^+$	0.657 1.068 (1.4) (1.4)	0.1247 0.4111 0.4618 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.5867 → <sup>127</sup> Xe	9.07 63 5.2 7.4 4.5	8.93	<sup>127</sup> I( $\alpha$ , 4n)			$M_A$ 126.907455(22) $\Delta$ -86.206(21)	
128	3.62 m	$\beta^+$ 61% EC 39%	$\beta^+$	1.30 1.90 2.415 2.885 (0.3) (1.0) (19) (48)	0.44287 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.5265 0.6135 0.9695 1.1399	34 136 2.5 0.32 0.54 1.4	25.8	<sup>128</sup> Ba →			$M_A$ 127.907746(7) $\Delta$ -85.935(6)	
129	32.06 h	EC 100%			0.03958 0.27861 0.31818 0.37192 0.41149 0.54895	2.99 1.33 2.46 30.8 22.5 3.42	36.6 0.06 0.07 0.6 0.3 0.02	<sup>127</sup> I( $\alpha$ , 2n) <sup>129</sup> Ba →			$M_A$ 128.905998(26) $\Delta$ -87.563(24) $\Gamma_s$ 0.232	
130	29.9 m	EC 54.4% $\beta^+$ 44 %	$\beta^+$	1.997 (43.4)	0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.5361 0.5861 0.8945 1.6150	86 3.7 0.45 0.37 0.25		<sup>127</sup> I( $\alpha$ , n)			$M_A$ 129.906750(13) $\Delta$ -86.863(12)	
			$\beta^-$ 1.6%	$\beta^-$	0.440 (1.6)	1.6874 1.7070 1.9973	0.19 0.13 0.16					
131	9.69 d	EC 100%						<sup>130</sup> Ba(n, $\gamma$ ) <sup>131</sup> Ba(EC)			$M_A$ 130.905457(8) $\Delta$ -88.066(8) $\Gamma_s$ 0.0637	
132	6.475 d	EC 97.7% $\beta^-$ 2.0% $\beta^+$ 0.3%	$\beta^-$	0.240 0.810 0.403 (0.4) (1.6) (0.3)	0.46455 0.50590 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.63022 0.66767	1.87 0.80 0.6 1.01 97.5		<sup>130</sup> Cs(p, pn) <sup>132</sup> Xe(p, n) <sup>133</sup> Cs(n, 2n) <sup>132</sup> Ba(n, p)	0.24(4) 1.542(72) 0.0053	60 14.4 fast	$M_A$ 131.906415(21) $\Delta$ -87.175(23) $\Gamma_s$ 0.457	
<133>		100%							$\sigma_c$ 30.6			$M_A$ 132.905433(9) $\Delta$ -88.089(8)
134	2.062 y	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.089 0.415 0.658 (27.4) (2.5) (70.1)	0.47635 0.56323 0.56932 0.60170 0.79585 0.80193 1.03857 1.16794 1.36515	1.46 8.38 15.43 97.6 85.4 8.73 1.00 1.80 3.04	0.01 0.06 0.17 0.6 0.3 0.03	<sup>133</sup> Cs(n, $\gamma$ ) <sup>133</sup> Cs(d, p)	29.0(15) 0.120(10)	9	$M_A$ 133.906700(9) $\Delta$ -86.909(8) $\Gamma_s$ 0.879	
134m	2.90 h	IT 100%			0.12750 0.13872	12.5 0.001	87.4	<sup>133</sup> Cs(n, $\gamma$ ) <sup>133</sup> Cs(d, p)	2.6(2) 0.041(2)	10	$M_A$ 133.906849(9) $\Delta$ -86.770(8)	
135	$3 \times 10^6$ y	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.205 (100)				<sup>135</sup> Xe → fission			$M_A$ 134.905888(9) $\Delta$ -87.665(9)	
135m	53 m	IT 100%			0.7869 0.840	99.7 96.0	0.3 4.0	<sup>134</sup> Xe(d, n) <sup>132</sup> Xe( $\alpha$ , p) <sup>132</sup> Ba(n, p) p + Ba			$M_A$ 134.907635(9) $\Delta$ -86.038(9)	
136	13.16 d	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.341 (94)	0.06691 0.08629 0.15322 0.16389 0.17655 0.27365 0.34057 0.81850 1.04807 1.23534	12.5 6.31 7.47 4.62 13.6 12.7 46.8 99.7 79.7 19.7	8.6 2.17 3.2 10.4 0.06 1.84 1.5 0.29	<sup>139</sup> La(n, $\alpha$ ) <sup>136</sup> La(d, $\alpha$ ) <sup>136</sup> Ba(n, p)	0.003 0.0383(38)	14.6 14.5	$M_A$ 135.907292(8) $\Delta$ -86.358(8) $\Gamma_s$ 1.19	
137	30.0 y	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.511 1.173 0.187 (91.6) (5.4)	0.66165 → <sup>137m</sup> Ba	85.0	9.7	fission			$M_A$ 136.907075(8) $\Delta$ -86.560(7) $\Gamma_s$ 0.326	
138	32.2 m	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	2.65 2.84 2.98 3.07 3.39 3.85 (8.7) (43.0) (7.9) (13.0) (13.7) (4.6)	0.46279 0.54694 0.87180 1.00978 1.43586 2.21800 2.63959	30.7 10.8 5.1 29.8 76.3 15.2 7.6	0.4 0.1	fission <sup>138</sup> Ba(n, p)	0.0025(10)	14.8	0.321(+KX) $M_A$ 137.91114 SYST $\Delta$ -82.770 SYST $\Gamma_s$ 1.11	
138m	2.90 m	IT $\beta^-$	75% 25%	3.28 (20)	0.0799 0.1917 0.4630 1.4360	0.5 20.0 24.7 25.0	74.7 4.0 0.3	fission <sup>138</sup> Ba(n, p) <sup>137</sup> Cs(n, $\gamma$ )			$M_A$ 137.91123 SYST $\Delta$ -82.690 SYST	

表-2. 19 セシウム核データ

2/2

原子量	132.9054(1)	イオン化エネルギー(1)	3.894 eV	融点	301.8 K	K X線エネルギー					
電子配置	[Xe] 6s <sup>1</sup>	イオン化エネルギー(2)	25.1 eV	(1.2 × 10 <sup>-6</sup> mmHg)	$K\alpha_1 = 30.973$ keV						
		原子半径	2.62 Å	沸点	958 K	$K\beta_1 = 34.987$ keV					
密度	1.8785 g/cm <sup>3</sup>	イオン半径	1+(6)1.70 Å								
			1+(12)1.82								
核種 <i>A</i>	半減期 <i>T½</i>	崩壊形式 または 存在比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)				おもな生成反応			$M_A$ 原子質量 (u) $\Delta$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_t$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )	
			$E_\gamma$	(%)	$E_T$	$I_T$	$I_{\text{es}}$	$A_T(a, b)$	$\sigma$ barn		$E_a$ MeV
139	9.5 m	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	1.94 (1.25) 3.01 (6.5) 4.29 (83.6)	0.62724 1.28323 1.42066 1.68072 2.11091 2.34992 → <sup>139</sup> Ba	1.56 7.3 0.80 0.61 0.66 0.57	0.47	fission			$M_A$ 138.91344(8) $\Delta$ -80.630(70)
140	63.7 s	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	5.700 (20.5) 6.177 (14)	0.52826 0.60232 0.90836 1.12996 1.20049 1.39136 1.63492 1.85327 2.10163 2.23725 2.33058 2.52197	4.08 70.4 11.3 3.10 6.05 2.18 3.18 4.02 3.94 3.87 4.63 4.08		fission			$M_A$ 139.91709(27) $\Delta$ -77.240(250)
141	24.94 s	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	4.980 (60.0)	0.04854 0.55511 0.56157 0.58865 0.69186 1.14708 1.19404	9.90 4.71 5.80 5.15 3.73 3.83 5.37		fission			$M_A$ 140.91949(15) $\Delta$ -74.000(100)
142	1.8 s	$\beta^-$ 99.7 % $\beta^-n$ 0.28 %	$\beta^-$	3.370 (33.9) 3.750 (14.4) 4.260 (33.4) 5.550 (18.3)	0.35960 0.96685 1.17593 1.32649	100 r 28.3 r 10.3 r 34.3 r		fission			$M_A$ 141.92383(14) $\Delta$ -70.950(130)

## (7) トリチウム (H-3)

トリチウムは水素の放射性同位元素で、エネルギー最大18KeV、平均5.7KeVの $\beta$ 線を放出してHe-3に壊変する。半減期は12.3年である。

トリチウムは原子力発電によって生成される他、宇宙線によっても環境中で生成される。

化学的性質は、H<sub>2</sub>OやD<sub>2</sub>Oと同一であると考えてよく、H<sub>2</sub>Oとして取り扱うことが出来る。

トリチウムの核データを表-2.20に示す。

表-2. 20 トリチウム核データ

原子量 1.0079(1)			イオン化エネルギー(1) 13.599 eV			融点 13.84 K			$M_A$ 原子質量 (u) $A$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_t$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )					
電子配置 1s <sup>1</sup>			イオン化エネルギー(2) - eV			(52.8 mmHg)								
原子半径 0.37 Å			沸点 20.26 K											
密度 0.0763 g/cm <sup>3</sup> (13 K)			イオン半径 1+ 0.00 Å 1-(6) 1.5											
核種 $A$	半減期 $T_1$	崩壊形式 または 存在比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)					おもな生成反応			$M_A$ 原子質量 (u) $A$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_t$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )			
			$\gamma$	$E_\gamma$ (%)	$E\gamma$	$I\gamma$	$I_{\alpha}$	$A_t(a, b)$	$\sigma$ barn	$E_a$ MeV				
<1>		99.9852%									$M_A$ 1.007825037(10) $A$ 7.289034(23)			
<2>		0.0148%									$M_A$ 2.014101787(21) $A$ 13.13584(4)			
3	12.3 y	$\beta^-$ 100%	$\frac{\beta}{\bar{\beta}}$	0.0186 0.00568							$M_A$ 3.016049286(32) $A$ 14.94994(5)			

## (8) ヨウ素 (I-129)

ヨウ素は、1811年にフランスのCourtoisによって海藻灰から作ったソーダの中から発見され、その後1815年にGay lussacによってその蒸気の色から Iodeと命名された。核分裂によって生成するヨウ素の放射性同位体には、I-129、I-131、I-132、I-134、I-135、I-136などがある。この中で I-129は非常に長い半減期をもっており、取り扱い上非常に重要な核種である。また、公衆に対する被曝として問題とされているI-131についても、重要な核種である。これらヨウ素の核データについて表-2. 21に示す。

ヨウ素は、水溶液中で+5価、+7価の状態で存在でき、それらはI<sup>-</sup>（ヨウ素イオン）、IO<sub>3</sub><sup>-</sup>（ヨウ素酸イオン+5価）、IO<sub>4</sub><sup>-</sup>（過ヨウ素酸イオン+7価）である。ヨウ素単体は、水にわずかにしか溶けない（0°Cの水で100gに0.018gが溶ける）が、有機溶媒には、多量に溶解する。単体ヨウ素を水に溶かした状態では不安定であるが、そこにアルカリ剤やKI（ヨウ化カリウム）を混合することにより、アルカリの場合はヨウ素イオンへ、ヨウ化カリウムの場合はKI<sub>3</sub>を生成し安定となる。放射性廃棄物固化体中のヨウ素の化学形態は、明かでないが、それらを単純に加熱あるいは酸を添加すると元素状ヨウ素となり、気中へ飛散するので注意を要する。

表-2.21 ヨウ素核データ

1/2

原 子 量	126.9045(1)	イオン化エネルギー(1)	10.451 eV	融 点	386.8 K	KX線エネルギー							
電子配置	[Kr] 4d <sup>10</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>5</sup>	イオン化エネルギー(2)	19.135 eV	沸 点	457.6 K	$K\alpha_1 = 28.612 \text{ keV}$							
原 子 半 径			1.34 Å			$K\beta_1 = 32.295 \text{ keV}$							
イオン半径	7+(4)	0.48 Å											
密 度	4.93 g/cm <sup>3</sup>	5+(4)	0.59										
		5+(6)	0.62										
		1-(6)	2.20										
核種	半減期	崩壊形式 または 存在比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)				おもな生成反応			$M_A$ 原子質量 (u) $A$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_i$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )			
$A$	$T_{1/2}$		$E_\alpha$ (%)	$E_\gamma$	$I_\gamma$	$I_{\alpha}$	$A_\gamma(a, b)$	$\sigma$ barn	$E_a$ MeV				
117	2.3 m	$\beta^+$ EC	~78% ~22%	$\beta^+$	3.50 3.25	0.2744 0.3259 0.511( $\gamma^\pm$ )	20.8 77			$M_A$ 116.91320(11) $A$ -80.850(110)			
118	13.7 m	$\beta^+$ EC	~54% ~46%	$\beta^+$	4.30 4.90 5.44	0.511( $\gamma^\pm$ ) 0.5448 0.6052 1.1499 1.3384	~108 12.3 95 5.0 12.4			$M_A$ 117.91265 STSY $A$ -81.370 STSY			
118m	8.5 m	IT $\beta^+$ EC				0.104 0.511( $\gamma^\pm$ ) 0.600 0.6052 0.614	100 100 54						
119	19.1 m	$\beta^+$ EC	~51% ~49%	$\beta^+$	2.35	0.2575 0.3206 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.5570 0.6356 $\rightarrow^{110}\text{Te}$	90 2.0 ~102 1.8 2.6			$M_A$ 118.91002(11) $A$ -83.820(100)			
120	81 m	$\beta^+$ EC	81.3% 18.7%	$\beta^+$	2.510 3.391 3.432 4.033 4.593	(8.2) (8.1) (3.3) (37.8) (19)	0.511( $\gamma^\pm$ ) 0.5604 0.6011 0.6411 1.5230 2.5644	162.6 73 5.8 9.1 11.2 2.0	$p + I$ $^{120}\text{Xe} \rightarrow$	$M_A$ 119.90982(22) $A$ -84.000(200)			
121	2.12 h	EC	93.6% 6.4%	$\beta^+$	1.13	0.21219 0.5319 0.5987 0.5110( $\gamma^\pm$ ) $\rightarrow^{121}\text{Te}$	84.0 6.13 1.54 14.8	7.4	$^{121}\text{Sb}(\alpha, 4n)$ $^{121}\text{Sb}(^3\text{He}, 3n)$ $\text{Te}(p, xn)$ $^{121}\text{I}(d, p7n)$	0.449(82) 0.021 0.045	25.8 19.3 90	$M_A$ 120.90753(5) $A$ -86.140(40)	
122	3.62 m	$\beta^+$ EC	76% 24%	$\beta^+$	1.76 2.56	(0.50) (10)	0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.5640	152 17.7	$^{121}\text{Sb}(\alpha, 3n)$ $^{122}\text{Te}(p, n)$			$M_A$ 121.90750(4) $A$ -86.160(40)	
					3.12	(66)	0.6926 0.7930	1.3 1.2					
123 v	13.2h	EC	100%				0.15897 0.44002 0.52896 0.53854 $\rightarrow^{123m}\text{Te}$	82.8 0.425 1.38 0.379	13.7	$^{121}\text{Sb}(\alpha, 2n)$ $^{121}\text{Sb}(^3\text{He}, xn)$ $\text{Te}(p, xn)$ $^{121}\text{I}(d, p5n)$	0.816(40) 0.366(49) 0.050 0.100	27 22.2 19.3 80	$M_A$ 122.90557(11) $A$ -87.970(100) $\Gamma_i$ 0.161
124	4.15 d	EC	77.1% 22.9%	$\beta^+$	0.810 1.532 2.135 0.824	(0.29) (11.4) (11)	0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.60272 0.72278 1.32550 1.3760 1.50949 1.69102	45.8 61.4 10.1 1.45 1.69 3.03 10.6		$\text{Sb}(\alpha, xn)$ $^{123}\text{Sb}(^3\text{He}, 2n)$ $^{121}\text{I}(p, p3n)$ $^{121}\text{I}(d, p4n)$	0.189(22) 0.0434(130) 0.201(13) 0.120	12 12.4 50 70	$M_A$ 123.906215(6) $A$ -87.361(5) $\Gamma_i$ 0.631
125 v	60.14 d	EC	100%				0.03549	6.67	93.3	$^{123}\text{Sb}(\alpha, 2n)$ $^{125}\text{Xe} \rightarrow$ $d + Te$			$M_A$ 124.904626(5) $A$ -88.841(5) $\Gamma_i$ 0.146
126 v	13.02 d	EC	53.0% 43.7% 3.34%	$\beta^-$ $\beta^+$	0.371 0.862 1.251 1.134	(3.6) (32) (8) (3.34)	0.38863 0.49124 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.66633 0.75382	34.0 2.85 6.68 33.1 4.2	0.5	$^{123}\text{Sb}(\alpha, n)$ $^{120}\text{Te}(d, 2n)$ $^{121}\text{I}(n, 2n)$ $^{121}\text{I}(p, pn)$ $^{121}\text{I}(d, p2n)$	0.75 1.28(13) 0.274(14) 0.200	15 14.6 30 45	$M_A$ 125.905624(7) $A$ -87.911(6) $\Gamma_i$ 0.294
<127>			100%							$\sigma_e$ 6.4			$M_A$ 126.904477(5) $A$ -88.980(5)
128	24.99 m	$\beta^-$ EC	93.6% 6.4% 0.0035%	$\beta^-$ $\beta^+$	1.125 1.665 2.120 1.232(2 × 10 <sup>-3</sup> )	(1.9) (15) (77) (10)	0.44291 0.52662 0.7435 0.9604	16 1.5 0.14 0.38		$^{121}\text{I}(n, \gamma)$ $^{128}\text{Te}(p, n)$ $^{128}\text{Te}(d, 2n)$	6.2(2) 0.090(9) 0.60(10)	6.7 12	$M_A$ 127.905815(5) $A$ -87.734(5)
129	1.57 × 10 <sup>7</sup> y	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	0.150	(100)	0.03958	7.50	92.5	fission			$M_A$ 128.904986(5) $A$ -88.505(4) $\Gamma_i$ 0.0643
130	12.36 h	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	0.624 1.042 1.178	(46.0) (47.7) (1.45)	0.41801 0.53609 0.66854 0.73948 1.15747	34.2 99.0 96.1 82.3 11.3	0.6	$^{120}\text{I}(n, \gamma)$ $^{120}\text{Te}(d, 2n)$ $^{120}\text{Te}(p, n)$ $^{123}\text{Cs}(n, \alpha)$ $^{120}\text{Xe}(n, p)$	0.770 0.26 0.0006 0.0067	12 10.5 14.8 14.4	$M_A$ 129.906713(11) $A$ -86.897(10) $\Gamma_i$ 1.21
130m	9.16 m	IT $\beta^-$	83% 17%	$\beta^-$	1.870 2.490	(1.2) (14.8)	0.0482 0.53609 0.58605 $\rightarrow^{130}$	17.0 1.16		$^{123}\text{Cs}(n, \alpha)$ $^{120}\text{I}(n, \gamma)$	0.00054(8)	14.8	$M_A$ 129.906765(11) $A$ -86.849(10)
131 v	8.04 d	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	0.248 0.304 0.334 0.606 0.807 0.183	(2.1) (0.6) (7.4) (89.4) (0.4) $\rightarrow^{131m}\text{Xe}$	0.08018 0.28430 0.36448 0.63697 0.72289 0.5059	2.62 6.06 81.2 7.27 1.80	4.1 0.3	fission $^{120}\text{Te}(p, \gamma)$ $^{120}\text{Te}(d, n)$ $^{121}\text{Xe}(n, p)$	0.00085 0.090(10) 0.0053	12 10 14.4	$M_A$ 130.906119(5) $A$ -87.451(5) $\Gamma_i$ 0.220
132 v	2.30 h	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	0.741 0.967 0.996 1.155 1.185 1.470 1.617 2.140 0.490	(12.8) (8.1) (3.8) (2.1) (19.0) (10.2) (12.7) (17.6) (17.6)	0.5059 0.52265 0.63022 0.66769 0.6698 0.6716 0.7271 0.77260 0.8122 0.95455 1.39857	5.03 16.1 13.7 98.7 4.9 5.2 5.4 76.2 5.6 18.1 7.1	0.7	$^{122}\text{Te} \rightarrow$ fission $^{122}\text{Xe}(n, p)$	0.0025	14.4	$M_A$ 131.907992(22) $A$ -85.706(21) $\Gamma_i$ 1.23

表-2. 21 ヨウ素核データ

2/2

原子量	126.9045(1)	イオン化エネルギー(1)	10.451 eV	融点	386.8 K	K X線エネルギー						
電子配置	[Kr] 4d <sup>10</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>3</sup>	イオン化エネルギー(2)	19.135 eV	沸点	457.6 K	$K\alpha_1 = 28.612 \text{ keV}$						
原子半径		1.34 Å				$K\beta_1 = 32.295 \text{ keV}$						
イオン半径	7+(4) 5+(4) 5+(6) 1-(6)	0.48 Å 0.59 0.62 2.20										
密度	4.93 g/cm <sup>3</sup>											
核種	半減期	崩壊形式 または 存 在 比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)		おもな生成反応	$M_A$ 原子質量 (u) $A$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_s$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )						
$A$	$T_{1/2}$		$E_\gamma$ (%)	$E_\gamma$	$I_\gamma$	$I_{\text{es}}$	$A_\tau(a, b)$	$\sigma$ barn	$E_a$ MeV			
132m	83.1 m	IT $\beta^-$	86% 14%	$\beta^-$	0.0980 0.1750 0.5998 0.6100 0.6140 0.6677 0.7726	3.7 8.3 13.2 1.4 2.4 13.2 13.2	82.3 2.1			$M_A$ 131.908121(22) $A$ -85.586(21)		
133	20.9 h	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	0.375 (1.3) 0.464 (3.3) 0.523 (3.1) 0.885 (4.4) 1.016 (1.4) 1.231 (83.4) 1.527 (1.4)	0.26270 0.51053 0.52987 0.68025 0.70658 0.85628 0.87533 1.05230 1.23641 1.29822 → <sup>133</sup> Xe, <sup>135m</sup> Xe	0.36 1.81 86.0 0.64 1.49 1.23 4.45 0.55 1.49 2.32	fission			$M_A$ 132.907781(34) $A$ -85.902(31) $\Gamma_s$ 0.343	
134	52.6 m	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	1.283 (32.4) 1.496 (8.1) 1.562 (16.4) 1.602 (4.0) 1.742 (7.3) 1.798 (11.1) 2.419 (11.6)	0.40545 0.54083 0.59536 0.62179 0.67734 0.84703 0.85729 0.88409 1.07255 1.13616 1.80684	7.35 7.82 11.4 10.6 8.5 95.4 6.96 65.3 15.3 9.73 5.68	0.1 0.1	fission <sup>134</sup> Xe( $n, p$ )	0.0022	14.4	$M_A$ 133.90985(6) $A$ -83.970(60) $\Gamma_s$ 1.30
134m	3.5 m	IT $\beta^-$	98% 2%	$\beta^-$	2.501 (2)	0.0444 0.2343 0.2719 0.3163	10.4 1.6 79.8 0.8	86	fission		$M_A$ 133.91019(6) $A$ -83.654(60)	
135	6.61 h	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	0.743 (7.9) 0.920 (8.7) 1.033 (22) 1.146 (7.9) 1.253 (7.4) 1.451 (23.4)	0.28845 0.41763 0.52656 0.54656 0.83680 1.03876 1.12400 1.13151 1.26041 1.45756 1.67803 1.70646 1.79120 → <sup>135m</sup> Xe, <sup>135</sup> Xe	3.1 3.56 13.5 7.2 6.7 7.9 3.6 22.5 28.6 8.6 9.5 4.1 7.7	0.1 0.01 3.0	fission		$M_A$ 134.910042(31) $A$ -83.796(29) $\Gamma_s$ 0.786	
136	83.4 s	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	4.37 (34) 4.71 (10) 5.69 (30)	1.3130 1.3211 2.2896 2.4146 2.6342	68.0 25.3 10.6 6.9 6.9		fission		$M_A$ 135.91473(11) $A$ -79.430(100)	

## (9) ニッケル (Ni - 63)

ニッケルは、1751年にA. F. Cronstedtによってニコライト（紅砒ニッケル鉱）を含む鉱石から発見された。ニッケル単体は、鉄やコバルトと同様、室温で強磁性を示す。ニッケル化合物は、通常2価で安定なものをつくり、3価及び4価の化合物は錯体で安定なものだけが知られている。溶液中でも $\text{Ni}^{2+}$ として溶存し $\text{Fe}^{2+}$ などと類似の行動をする。ただし、鉄と異なる点は、コバルトと同様錯体をはるかに作り易いことであり、例えばアンモニアを加えると、 $[\text{Ni}(\text{NH}_3)_6]^{3-}$ などの錯体をつくり沈澱を生じない。

ニッケルは酸に溶けやすく、化学的に活性な元素である。熱硝酸中では不動態を生ずる。

ニッケルの核データを表-2. 22に示す。

表-2. 22 ニッケル核データ

原子量 58.69(1) 電子配置 [Ar] 3d <sup>8</sup> 4s <sup>2</sup>			イオン化エネルギー(1) 7.635 eV イオン化エネルギー(2) 18.15 eV			融点 1726 K 沸点 3110 K	K X線エネルギー $K_{\alpha_1} = 7.4782 \text{ keV}$ $K_{\beta_1} = 8.2647 \text{ keV}$				
密度 8.8 g/cm <sup>3</sup> 9.04*			原子半径 1.25 Å イオン半径 2+(6) 0.69 Å								
核種 <i>A</i>	半減期 <i>T<sub>1/2</sub></i>	崩壊形式 または 存 在 比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)				おもな生成反応		$M_A$ 原子質量 (u) $\Delta$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_s$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )		
			$E_{\gamma}$ (%)	$E_{\gamma}$	$I_{\gamma}$	$I_{\text{co}}$	$A_{\tau}(a, b)$	$\sigma$ barn			
56 γ	6.10 d	'EC 100%		0.15838 0.26950 0.48044 0.74995 0.81185 1.56180 → <sup>56</sup> Co	98.8 34.0 31.8 47.8 74.1 13.1	1.4 0.1 0.06	<sup>54</sup> Fe( $\alpha, 2n$ ) <sup>56</sup> Fe( <sup>3</sup> He, 3n) <sup>56</sup> Fe( $\alpha, 4n$ ) <sup>56</sup> Co( $p, 4n$ ) <sup>58</sup> Ni( $d, p3n$ )	0.011 0.0021(3) 0.0005 0.00047(12) 0.0020(2)	33 29.3 65 55 40	$M_A$ 55.942134(12) $\Delta$ -53.902(11) $\Gamma_s$ 0.855	
57	35.94 h	EC 60% $\beta^+$ 40%	$\beta^+$	0.739 (5) 0.866 (34)	0.12719 0.5110( $\gamma^{\pm}$ ) 1.37759 1.75748 1.91943 → <sup>57</sup> Co	12.9 80 77.6 7.06 14.7	0.3	<sup>58</sup> Co( $p, 3n$ ) <sup>58</sup> Ni( $n, 2n$ ) <sup>54</sup> Fe( $\alpha, n$ ) <sup>58</sup> Ni( $p, pn$ ) <sup>58</sup> Ni( $d, p2n$ ) <sup>56</sup> Fe( <sup>3</sup> He, 2n)	0.0161(47) 0.0296(23) 0.18 0.110(10) 0.09(1) 0.048(5)	42 14.4 17 18.9 36 18	$M_A$ 56.939775(8) $\Delta$ -56.099(7)
<58>		67.76%						$\sigma_e$ 4.4		$M_A$ 57.9353471(16) $\Delta$ -60.2243(15)	
59 γ	$7.5 \times 10^4$ y	EC 100%					<sup>58</sup> Ni( $n, \gamma$ ) <sup>60</sup> Ni( $n, 2n$ ) <sup>58</sup> Co( $p, n$ )	4.6(3) 0.112(12) 0.275(25)	thermal 14.7 6.5	$M_A$ 58.9343502(16) $\Delta$ -61.1529(15)	
<60>		21.16%						$\sigma_e$ 2.6		$M_A$ 59.9307890(16) $\Delta$ -64.4702(15)	
<61>		1.25%						$\sigma_e$ 2		$M_A$ 60.9310586(16) $\Delta$ -64.2191(15)	
<62>		3.66%						$\sigma_e$ 15		$M_A$ 61.9283464(16) $\Delta$ -66.7454(15)	
63 γ	100.1 y	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.0659 (100) 0.0171			<sup>62</sup> Ni( $n, \gamma$ ) <sup>62</sup> Cu( $n, p$ ) <sup>56</sup> Cu( <sup>3</sup> He, 3p, 2n)	14.2(3) 0.027(23) 0.014	14.7 24.1	$M_A$ 62.9296699(16) $\Delta$ -65.5126(15)	
<64>		1.16%						$\sigma_e$ 1.5		$M_A$ 63.9279680(17) $\Delta$ -67.0979(16)	
65	2.520 h	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.655 (28.1) 1.022 (9.8) 2.137 (60.7)	0.36627 1.11553 1.48184	4.75 15.1 23.5		<sup>64</sup> Ni( $n, \gamma$ ) <sup>65</sup> Cu( $n, p$ ) <sup>68</sup> Zn( $n, \alpha$ )	1.49(3) 0.020(1) 0.0105(16)	14.5 14.5	$M_A$ 64.9300866(18) $\Delta$ -65.1245(17) $\Gamma_s$ 0.281
66	54.8 h	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.236 (100)	→ <sup>66</sup> Cu			<sup>70</sup> Zn( $n, n\alpha$ )	0.00089(40)	14.7	$M_A$ 65.929124(21) $\Delta$ -66.021(19)
67	18 s	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$		0.1000 0.2080 0.7085 0.8741 1.0722 1.6539 1.975	50 r 68 r 92 r 88 r 136 r 100 r 65 r		<sup>70</sup> Zn( $n, \alpha$ )	0.0114(32)	14.8	$M_A$ 66.93186(10) $\Delta$ -63.470(90)

## (10) ニオブ (Nb - 95)

1844年にRoseは、ニッケルの酸化物中に含まれるニオブを発見した。ニオブはタンタルと共に産出され、しかもその化学的な性質は似ているのでニオブの分離は困難なものであった。

Nb - 95は原子炉構成材中に含まれるZr - 94の( $n, \gamma$ )反応によって生成されたZr - 95の $\beta$ 壊変によって生じる。ニオブの核データを表-2. 23に示す。

ニオブは、化学的に極めて強いものであって、塩酸・硝酸及び王水などにも侵されない。ただし、濃硫酸と煮沸すれば徐々に侵されまた、融解したアルカリによっても侵される。ニオブに対し最も良い溶剤は、フッ化水素酸である。ニオブが酸化性の酸に溶けないのは、ニオブの表面が不動態化するためである。組成の明らかなニオブの化合物は、ほとんど+5価であり、その他低位の化合物も存在するが、それらは一般的にきわめて不安定である。

しかしながらニオブの原子価は、+1, +2, +3, +4, +5の価数をもつことができる。

溶液中のニオブの存在状態は不明なところが多く、またそれらに関する文献も少ない。

このなかで、5価のニオブは $10^{-11} M$ の濃度でpH 2~6の場合、コロイドで存在することが明らかになっている。

表-2. 23 ニオブ核データ

1/2

原子量	92.9064(1)	イオン化エネルギー(1)	6.883 eV	融点	2741 K	K X線エネルギー							
電子配置	[Kr] 4d <sup>1</sup> 5s <sup>1</sup>	イオン化エネルギー(2)	14.32 eV	沸点	5015 K	$K\alpha_1 = 16.615 \text{ keV}$							
原子半径			1.43 Å			$K\beta_1 = 18.623 \text{ keV}$							
密度	8.57 g/cm <sup>3</sup>	イオン半径	5+(6) 0.69 Å										
			4+(6) 0.74										
核種 A	半減期 $T^{1/2}$	崩壊形式 または 存 在 比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)				おもな生成反応			$M_A$ 原子質量 (u) $\Delta$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_A$ ( $R \cdot h^{-1} \cdot m^2 \cdot Ci^{-1}$ )			
			$\gamma$	$E_\gamma$ (%)	$E_\gamma$	$I_\gamma$	$I_{\text{es}}$	$A_T(a, b)$	$\sigma$ barn		$E_n$ MeV		
88 A	14.3 m	$\beta^+$ 91% EC 9%	$\beta^+$	2.788 (75) 3.291 (16)	0.0767 0.2719 0.3996 0.5028 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.6711 1.0569 1.0825	23.5 29.4 31.5 80.0 182 66.3 99.9 98.0				$^{90}\text{Br}(^{12}\text{C}, 3n)$	$M_A$ 87.91796 SYST $\Delta$ -76.420 SYST		
88 B	7.8 m	$\beta^+$ 94.3% EC 5.7%	$\beta^+$	3.120 (10.9) 3.146 (5.7) 3.188 (37.2) 3.377 (14.1) 3.639 (8.6) 3.722 (17.8)	0.2625 0.3996 0.4510 0.5341 0.6382 0.6618 0.7607 0.9184 1.0569 1.0825 1.8179 1.9754	10.2 44 25.0 13.7 25.9 4.3 16.9 11.3 93.0 59.0 10.2 6.0					$M_A$ 87.91796 SYST $\Delta$ -76.420 SYST		
89 A	66 m	$\beta^+$ 81.9% EC 18.1%	$\beta^+$	1.418 (4.4) 1.538 (0.5) 2.188 (65) 2.698 (12)	0.5074 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.5880 0.6503 0.7696 1.2775 $\rightarrow^{90}\text{Zr}$	85 163.8 100 0.8 6.5 1.6				$^{12}\text{C} + \text{Br}$ $^{89}\text{Y}(\alpha, 4n)$	$M_A$ 88.913451(20) $\Delta$ -80.621(19)		
89 B	122 m	$\beta^+$ 75.4% EC 24.6%	$\beta^+$	0.726 (0.36) 1.170 (0.16) 1.197 (0.21) 1.786 (0.28) 3.298 (74)	0.5110( $\gamma^\pm$ ) 1.127 1.5114 1.6272 1.8334 2.5723 2.9601 3.0927 $\rightarrow^{90}\text{Zr}$	150.8 2.2 2.0 3.6 3.4 2.8 1.8 3.1				$^{12}\text{C} + \text{Br}$ $p + \text{Zr}$	$M_A$ 88.913451(20) $\Delta$ -80.621(19)		
90	14.60 h	$\beta^+$ ~53.1% EC ~46.9%	$\beta^+$	1.500 (53.1)	0.14114 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 1.12920 1.61172 2.18619 2.31890 $\rightarrow^{90}\text{Zr}$	66.7 106.2 92.7 2.38 18.0 82.0	23.5			$^{90}\text{Zr}(p, n)$ $^{90}\text{Zr}(d, 2n)$ $^{90}\text{Mo} \rightarrow$ $^{89}\text{Y}(\alpha, 3n)$	0.150(15) 2.0 0.50	12 20.3 42	$M_A$ 89.911268(5) $\Delta$ -82.654(5)
90m	18.8 s	IT 100%			0.12250	64	36			$^{90}\text{Mo} \rightarrow$		$M_A$ 89.911402(5) $\Delta$ -82.529(5)	
91	~10 <sup>4</sup> y	(EC)								$^{90}\text{Zr}(d, n)$		$M_A$ 90.906992(4) $\Delta$ -86.6369(38)	
91m	62 d	IT 97% EC 3%			0.1045 1.2049	~1.89	94.7			$^{90}\text{Y}(\alpha, 2n)$ $^{90}\text{Zr}(p, n)$	0.05(1)	6.7	$M_A$ 90.907104(4) $\Delta$ -86.532(4)
<92>	1.2 × 10 <sup>4</sup> y	EC 100%			0.5611 0.93446	100 100				$^{92}\text{Zr}(p, n)$ $^{90}\text{Y}(\alpha, n)$	0.180(18) 0.415(42)	6.7 14.1	$M_A$ 91.9071915(36) $\Delta$ -86.4481(34)
92m	10.15 d	EC 99+ % 0.06% $\beta^+$	$\beta^+$	0.186 (0.06)	0.9128 0.93446 1.8473	1.68 99.15 0.85				$^{90}\text{Y}(\alpha, n)$ $^{93}\text{Nb}(n, 2n)$	0.464(14)	14.4	$M_A$ 91.9073395(36) $\Delta$ -86.313(4)
<93>		100%								$\sigma_e$ 1.1		$M_A$ 92.9063780(31) $\Delta$ -87.2090(29)	
93m	13.6 y	IT 100%			0.0304					$^{92}\text{Zr} \rightarrow$ $^{93}\text{Nb}(n, n')$		$M_A$ 92.9064106(31) $\Delta$ -87.1786(29)	
94 v	2.03 × 10 <sup>4</sup> y	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.471 (100)	0.70263 0.87110	100 100				$^{93}\text{Nb}(n, \gamma)$	1.15(5)		$M_A$ 93.9072819(32) $\Delta$ -86.3671(30) $\Gamma_v$ 0.882
94mv	6.26 m	IT 99.52% $\beta^-$ 0.48%	$\beta^-$	1.214 (0.48)	0.04095 0.87110	0.13 0.48	99.39			$^{93}\text{Nb}(n, \gamma)$ $^{94}\text{Mo}(n, p)$	0.0060(15)	14.7	$M_A$ 93.9073226(32) $\Delta$ -86.326(30)
95 v	35.0 d	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.1597(99.96) 0.0435	0.76579	99.8				$^{94}\text{Zr}(d, n)$ $^{90}\text{Zr}(p, 2n)$ $^{95}\text{Zr} \rightarrow$	0.133(10) 0.0206(16)	7.8 250	$M_A$ 94.9068316(26) $\Delta$ -86.7865(25) $\Gamma_v$ 0.424
95m	86.6 h	IT 100%			0.23569 $\rightarrow^{93}\text{Nb}$	31.15	68.85			$^{97}\text{Mo}(d, \alpha)$ $^{94}\text{Zr}(d, n)$ $^{95}\text{Zr} \rightarrow$	0.00235	7.8	$M_A$ 94.9070846(26) $\Delta$ -86.5508(25) $\Gamma_v$ 0.0350
96	23.35 h	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.746 (2.8) 0.749 (95.9)	0.46003 0.56886 0.71954 0.77822 0.81025 0.84990 1.09131	28.2 55.9 7.28 96.93 9.88 20.8 49.5				$^{96}\text{Zr}(p, n)$ $^{96}\text{Mo}(n, p)$ $^{99}\text{Ta}(n, \alpha)$ $^{96}\text{Zr}(d, 2n)$	0.320(32) 0.0213(15) 0.0071(10) 1.10(20)	6.7 14.4 14.7 10.9	$M_A$ 95.908097(5) $\Delta$ -85.608(5)
97 v	72.1 m	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.911 (1.0) 1.278 (98.5)	1.20019 0.65798 1.02453	20.1 98.34 1.08				$^{97}\text{Zr} \rightarrow$ $^{97}\text{Mo}(n, p)$ $^{96}\text{Zr}(d, n)$	0.068(14) 0.090(5)	14.6 7	$M_A$ 96.9080930(33) $\Delta$ -85.6116(31) $\Gamma_v$ 0.372
97m	1.0 m	IT 100%			0.74336 $\rightarrow^{97}\text{Nb}$	98.0	2.0			$^{97}\text{Zr} \rightarrow$			$M_A$ 96.9088910(31) $\Delta$ -84.8682(31) $\Gamma_v$ 0.415

表-2. 23 ニオブ核データ

2/2

原 子 量	92.9064(1)	イオン化エネルギー(1)	6.883 eV	融 点	2741 K	KX線エネルギー				
電子配置	[Kr] 4d <sup>1</sup> 5s <sup>1</sup>	イオン化エネルギー(2)	14.32 eV	沸 点	5015 K	$K\alpha_1 = 16.615 \text{ keV}$				
		原子半径	1.43 Å			$K\beta_1 = 18.623 \text{ keV}$				
密 度	8.57 g/cm <sup>3</sup>	イオン半径	5+(6) 0.69 Å							
			4+(6) 0.74							
核種 <i>A</i>	半減期 <i>T<sub>1/2</sub></i>	崩壊形式 または 存 在 比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)				おもな生成反応			<i>M<sub>A</sub></i> 原子質量 (u) <i>A</i> 質量欠損 (MeV) <i>F<sub>i</sub></i> (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )
			$E_\gamma$ (%)	$E_T$	$I_T$	$I_{ce}$	$A_T(a, b)$	$\sigma$ barn	$E_a$ MeV	
98m	51.3 m	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	1.647 (6.3) 1.901 (7.5) 1.990 (28) 2.445 (16) 3.159 (5)	0.33526 0.71382 0.72263 0.78736 0.79105 0.83356 1.16883 1.51168 1.54603 1.70150	9.51 9.13 73.6 93.2 7.81 10.8 17.8 4.81 3.92 8.85	<sup>98</sup> Mo( <i>n, p</i> )	0.009(2)	14.7	$M_A$ 97.910417(7) $A$ -83.446(6)
99	15.0 s	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	3.388 (100)	0.0977 0.1376	45 90	fission			$M_A$ 98.911599(17) $A$ -82.346(16)
99m	2.6 m	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	3.20	0.098 0.1375 0.254 0.352 0.451 0.631 0.70263 0.793 2.642 2.854	100 22 57 42 20 19 100 20 50 48	<sup>100</sup> Mo( <i>r, p</i> ) fission			$M_A$ 98.911991(17) $A$ -81.981(16)
101	7.0 s	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	4.1 4.30	0.273 0.399	100 50	fission			$M_A$ 100.91525(11) $A$ -78.950(100)

## (11) プルトニウム (Pu-238, Pu-239, Pu-240)

プルトニウムは、1940年後半に、Seaborg, McMillam, Kennedy, Wahlにより、 $^{238}\text{U} (\text{d}, 2\text{n}) ^{238}\text{Np} \xrightarrow{\beta^-} ^{238}\text{Pu}$  反応によってつくられた。

また、Kennedy, Seaborg, SegreおよびWahlによる実験でPu-239は遅い中性子で核分裂することが確かめられた。その後、多数のプルトニウム同位体が作り出されたが、そのどれもが放射能をもっている。これらの核データを表-2. 24に示す。

この中で、廃棄物中に存在する核種としてPu-238, Pu-239, Pu-240の比較的長半減期の同位体がある。その他の同位体も生成されるが、短半減期のものがほとんどである。

水溶液中で、プルトニウムは+3, +4, +5, +6, +7の五種類の酸化状態を取ることができる。また、これら五種類の酸化状態は、ある濃度においてたがいに同時に平衡に存在することができ、したがって非常に複雑な系を形成している。

+4価のプルトニウムは、中程度の酸性溶液中で水和イオン  $\text{Pu}(\text{H}_2\text{O})^{+4}$  として存在する。

また、+3価のプルトニウムは希土類元素と同様に  $\text{pH}=7$  で加水分解することが確かめられている。図-2. 7に25°C, 1バールの圧力におけるPu-C-O-H系に対するEh-pH線図を示す。

プルトニウムは通常  $\text{Pu}^{+3}$ ,  $\text{PuO}_2^{+2}$ ,  $\text{PuO}_2$  の形態で存在しているものと考えられている。また、+4価のプルトニウムは、+4価のトリウムと化学的にかなり性質が似ており、しばしば類縁元素として用いられる。

プルトニウムの錯イオン形成反応に関して、+3価のプルトニウムは錯イオンを形成する傾向が小さい。

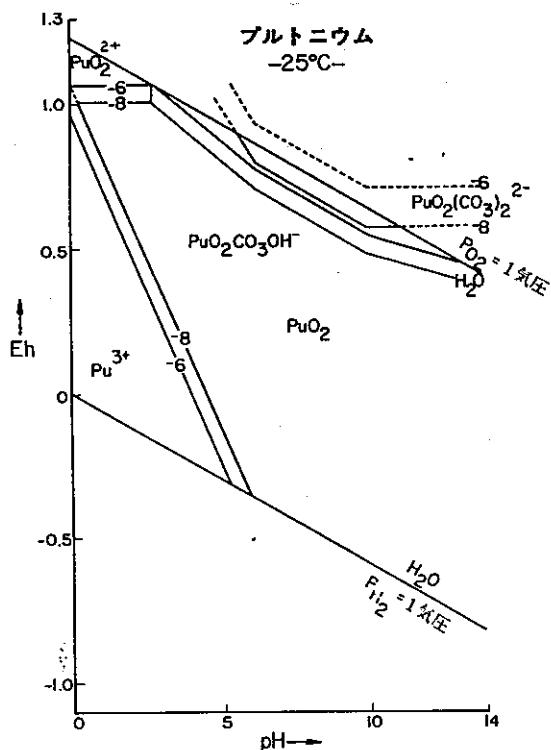


図-2. 7 25°C, 1バールの圧力におけるPu-C-O-H系 (部分) に対するEh-pH線図

一方、+4価のプルトニウムは、錯イオンを作りやすい。

錯イオン形成に際して、陰イオンの結合性は、



の順になっている。その他、硫酸、シュウ酸、リン酸、亜硫酸、クエン酸、炭酸塩錯体など種々の錯体が形成される。2価の陰イオンは、次の順序でプルトニウムと錯イオンを作る。



その他、+5価、+6価のプルトニウムは、錯イオン形成の傾向が少ない。

表-2. 24 プルトニウム核データ

原子量 (244)			イオン化エネルギー(1)		5.8 eV	融点	913 K	KX線エネルギー
電子配置 [Rn] 5f <sup>1</sup> 7s <sup>2</sup>			イオン化エネルギー(2)		eV	沸点	3500 K	$K\alpha_1 = 103.761 \text{ keV}$
密度 19.816 g/cm <sup>3</sup> (単斜294K)			原子半径	1.64 Å				$K\beta_1 = 117.261 \text{ keV}$
イオン半径			5+(6)	0.83 Å				
核種 <i>A</i>	半減期 <i>T<sub>1/2</sub></i>	崩壊形式 または 存在比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)				おもな生成反応	
			$\gamma$	<i>E<sub>γ</sub></i> (%)	<i>E<sub>γ</sub></i>	<i>I<sub>γ</sub></i>	<i>I<sub>α</sub></i>	<i>A<sub>r</sub>(a, b)</i>
								$\sigma$ barn
232	34.1m	EC $\alpha$ ≥80% ≤20%	$\alpha$	6.60 (62r) 6.542 (38r)	$\rightarrow^{232}\text{Np}$ $\rightarrow^{228}\text{U}$			$^{233}\text{U}(\alpha, 5n)$ $^{235}\text{U}(\alpha, 7n)$
233	20.9m	EC $\alpha$ 99.9% 0.12%	$\alpha$	6.30	0.2354 0.5003 0.5348 $\rightarrow^{232}\text{Np}$ , $^{228}\text{U}$	100 r 38.6 r 90.2 r		$^{233}\text{U}(\alpha, 4n)$
234	8.8 h	EC $\alpha$ 94% 6%	$\alpha$	6.151 (4) 6.202 (2)	$\rightarrow^{234}\text{Np}$ $\rightarrow^{230}\text{U}$			$^{235}\text{U}(\alpha, 3n)$ $^{235}\text{U}(\alpha, 5n)$
235	25.6 m	EC $\alpha$ ~100% 0.003%	$\alpha$	5.85	0.0493 0.7564 0.9101	1.97 0.40 0.14		$^{235}\text{U}(\alpha, 4n)$ $^{233}\text{U}(\alpha, 2n)$
236	2.851 y	$\alpha$ 100%	$\alpha$	5.721 (27.6) 5.768 (72.4)	0.0476 0.1090 $\rightarrow^{232}\text{U}$	0.031 0.012	20	$^{235}\text{U}(\alpha, 3n)$ $^{236}\text{U}(\alpha, 4n)$ $^{238}\text{Np} \rightarrow$
237	45.3 d	EC $\alpha$ 100% 0.0033%	$\alpha$	5.36 (0.0026) 5.65 (0.0007)	0.05954	6.4		$\sigma_t$ 170 $^{239}\text{Pu}(n, 3n)$ $^{235}\text{U}(\alpha, 2n)$ $^{241}\text{Cm} \rightarrow$
238	87.7 y	$\alpha$ 100%	$\alpha$	5.456 (28.5) 5.499 (71.5)	0.04349 0.09087 0.15277	0.0394 0.0074 0.0010	28.6 0.13	$\sigma_t$ 500 $^{238}\text{Np} \rightarrow$ $^{242}\text{Cm} \rightarrow$ $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$ $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$
239	2.413 × 10 <sup>4</sup> y	$\alpha$ 100%	$\alpha$	5.105 (11.5) 5.144 (15.1) 5.157 (73.3)	0.03869 0.05163 0.12928	0.0059 0.021 0.0062	2.5 9.0	$\sigma_t$ 274 $^{239}\text{Np} \rightarrow$ $^{239}\text{Pu}(n, \gamma)$ $^{239}\text{Pu}(n, \gamma)$
240	6570 y	$\alpha$ 100%	$\alpha$	5.124 (26.4) 5.168 (73.5)	0.04524 0.10423 0.16035	0.045 0.0070		$\sigma_e$ 286 $\sigma_t < 0.08$
241	14.36 y	$\beta^-$ $\alpha$ 100% 0.00245%	$\beta^-$ $\alpha$	0.0208 0.4853 (0.0005) 0.4897 (0.002)	0.10367 0.14860 $\rightarrow^{241}\text{Am}$	$0.93 \times 10^{-4}$ $1.9 \times 10^{-4}$		$\sigma_e$ 425 $\sigma_t$ 950
242	3.76 × 10 <sup>5</sup> y	$\alpha$ 100%	$\alpha$	4.856 (23) 4.901 (77)	0.04492 0.10350 $\rightarrow^{238}\text{U}$	0.042 0.0091		$\sigma_e$ 19 $\sigma_t < 0.2$
243	4.955 h	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.510 (28) 0.552 (13) 0.594 (58)	0.0422 0.0840 0.3817	1 21 0.7	16 4.2	$^{242}\text{Pu}(n, \gamma)$
244	8.1 × 10 <sup>7</sup> y	$\alpha$ SF ~100% ~0.1%	$\alpha$	4.546 (19.4) 4.589 (80.6)	$\rightarrow^{240}\text{U}$			$\sigma_e$ 1.8
245	10.5 h	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.30 (10) 0.40 (17) 0.93 (48) 1.21 (~10)	0.3081 0.3273 0.3766 0.4915 0.5600 0.6300 $\rightarrow^{241}\text{Am}$	4.6 23.8 3.0 2.5 5.1 2.5	5.5 25 3 0.2 0.3 0.6	$^{244}\text{Pu}(n, \gamma)$ multiple n-capt. from $^{238}\text{U}$ , $^{239}\text{Pu}$
246	10.9 d	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.150 (73) 0.330 (27)	0.02758 0.04381 0.17994 0.22375 $\rightarrow^{240}\text{Am}$	3.6 25.5 9.9 24.0		multiple n-capt. from $^{238}\text{U}$ , $^{239}\text{Pu}$

## (12) ルテニウム (Ru-103, Ru-106)

ルテニウムは、1845年にロシアの化学者C. C. Claußによって見いだされた。

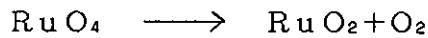
ルテニウムは、白金鉱の精製物であるオスミリジウムの中から少量含まれ産出されている。

ルテニウムは、核分裂生成物に含まれる多くの種類の元素の一つである。その核分裂生成物ルテニウムは表-2. 25に示す核種を含んでいる。放射性同位体のなかでもRu-103とRu-106が重要であり代表される。

ルテニウムは周期表で第8族に属し、白金族元素の一つである。酸化状態としては、0価のカルボニルから、+2、+3、+4、+5、+6、+7、+8価までの8種の状態が可能であり、とりうる酸化状態の多い元素である。

この内、おもなものは+2、+3価である。

ルテニウム酸化物には、 $\text{RuO}_2$ と $\text{RuO}_4$ が知られており、 $\text{RuO}_4$ は昇華性であり常温でたやすく蒸発する。



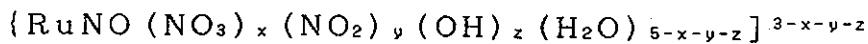
$\text{RuO}_4$ は、水や有機溶媒に溶けやすく、酸性溶液や四塩化炭素の中では $\text{RuO}_4$ として存在し、アルカリ性溶液では過ルテニウム酸 ( $\text{RuO}_4^-$ ) やルテニウム酸 ( $\text{RuO}_2^{2-}$ ) へ還元されて溶ける。このルテニウム酸は、過マンガン酸や過レニウム酸などと同様に着色している。

+3価のルテニウムは、 $\text{MRuCl}_4$  (Mはアルカリ金属) や $\text{RuCl}_3$ などの形で安定に存在する。また、ハロゲン錯体やアンミン錯体を生成することが知られている。

+2価のルテニウムは $\text{NO}^+$ と強く結合し、見かけ上+3価のNO錯体にみえる。

この+2価の錯体は安定で、鉱酸中で煮沸した程度では分解出来ないとされている。また、このNO錯体は $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Br}^-$ 、 $\text{I}^-$ 、 $\text{SCN}^-$ 、 $\text{CN}^-$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NO}_2^-$ 、 $\text{OH}^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、しゅう酸イオン、アセチルアセトナイト、 $\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{NH}_3$ 、ピリジンなどと多種類にわたり、配位する。

再処理の過程において、使用済み燃料を硝酸で溶解する時に酸化窒素が発生し、その酸化窒素との反応によってルテニウムはNO錯体を形成するといわれている。このときのNO錯体は、次頁のような化合物となる。



このNO錯体は溶液中の硝酸濃度や亜硝酸濃度、又は酸性度によって、その化学種に変化を生じる。

また分離分析においてもルテニウムの化学的性質、酸化状態と化学種の多様性のために定量的扱いがむずかしい。

表-2. 25 ルテニウム核データ

原 子 量	101.07(3)	イオン化エネルギー(1)	7.306 eV	融 点	2583 K	K X線エネルギー					
電子配置	[Kr] 4d <sup>7</sup> 5s <sup>1</sup>	イオン化エネルギー(2)	16.76 eV	沸 点	4170 K	$K\alpha_1 = 19.279 \text{ keV}$					
原 子 半 径						$K\beta_1 = 21.657 \text{ keV}$					
密 度	12.30 g/cm <sup>3</sup> (292K)	イオン半径	4+(6) 0.67 Å								
核種 <i>A</i>	半減期 <i>T<sub>1/2</sub></i>	崩壊形式 または 存在比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)				おもな生成反応			$M_A$ 原子質量 (u) $\Delta$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_s$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )	
			$\gamma$	$E_\gamma$ (%)	$E_\gamma$	$I_\gamma$	$I_{\text{co}}$	$A_T(a, b)$	$a$ barn		$E_a$ MeV
95	1.63 h	EC 82.9% $\beta^+$ 17.1%	$\beta^+$	0.94 (1.7) 1.23 (15.4)	0.29038 0.30101 0.33640 0.5110( $\gamma^*$ ) 0.62683 0.80628 1.05068 1.09680 1.1787 1.41063 1.45932 $\rightarrow^{105m}\text{Tc}, ^{105}\text{Tc}$	3.9 2.3 70.7 34.2 18.0 4.2 2.5 22.0 5.3 2.4 2.2	0.74	$^{92}\text{Mo}(\alpha, n)$ $^{90}\text{Ru}(n, 2n)$ $^{94}\text{Mo}(\alpha, 3n)$	0.574(60) 0.569(30) 0.544(55)	20 14.4 39	$M_A$ 94.910411(13) $\Delta$ -83.452(12)
<96>		5.46%						$\sigma_e$ 0.2		$M_A$ 95.907596(9) $\Delta$ -86.075(9)	
97	2.9 d	EC 100%			0.21568 0.32455 0.56921	86.0 10.2 0.86	3.3 0.17	$^{96}\text{Ru}(n, \gamma)$ $^{94}\text{Mo}(\alpha, n)$ $^{93}\text{Ru}(n, 2n)$ $^{94}\text{Mo}(\alpha, 2n)$	0.25(3) 0.702 1.169(96) 1.293(130)	18 14.4 28	$M_A$ 96.90760(11) $\Delta$ -86.070(100) $\Gamma_s$ 0.282
<98>		1.9%						$\sigma_e$ <8		$M_A$ 97.905287(7) $\Delta$ -88.226(6)	
<99>		12.63%						$\sigma_e$ 11		$M_A$ 98.9059371(28) $\Delta$ -87.6198(26)	
<100>		12.6 %						$\sigma_e$ 10		$M_A$ 99.9042175(28) $\Delta$ -89.2216(26)	
<101>		17.02%						$\sigma_e$ 3		$M_A$ 100.9055808(31) $\Delta$ -87.9516(29)	
<102>		31.6 %						$\sigma_e$ 1.4		$M_A$ 101.9043475(31) $\Delta$ -89.1005(29)	
103	39.35 d	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.112 (6.4) 0.225 (87.1)	0.03976 0.05329  0.467 (0.2) 0.722 (6) 0.29498 0.44380 0.49708 0.55704 0.61033	0.07 0.38  99.7 0.69		$^{102}\text{Ru}(n, \gamma)$ fission	1.30(15)		$M_A$ 102.9063218(32) $\Delta$ -87.2614(30) $\Gamma_s$ 0.284
<104>		18.58%						$^{104}\text{Ru}(n, 2n)$ $^{103}\text{Rh}(n, p)$ $^{100}\text{Mo}(\alpha, n)$ $^{101}\text{Pd}(n, \alpha)$	1.44(8) 0.011(3) 0.089(9) 0.0056(7)	14.4 13.2 15 14.4	$M_A$ 103.905422(6) $\Delta$ -88.099(6)
105	4.44 h	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.567 (3.48) 0.952 (3.9) 1.109 (18.6) 1.134 (16.6) 1.187 (47.3) 1.457 (3.3)	0.12961 0.14910 0.26283 0.31641 0.32614 0.35018 0.39336 0.41353 0.46937 0.49926 0.65621 0.67636 0.72421 0.87585 0.96944 $\rightarrow^{105m}\text{Rh}, ^{105}\text{Rh}$	5.6 1.74 6.49 11.0 1.05 1.0 3.73 2.22 17.3 2.03 2.03 15.5 46.7 2.47 2.08	20 0.27 0.18 0.1	$^{101}\text{Ru}(n, \gamma)$ $^{103}\text{Pd}(n, \alpha)$	0.47(20) 0.0027(3)	14.4	$M_A$ 104.907743(6) $\Delta$ -85.938(6) $\Gamma_s$ 0.412
106	368 d	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.0391 (100) 0.0101	$\rightarrow^{106}\text{Rh}$			fission		$M_A$ 105.907319(11) $\Delta$ -86.333(10)	
107	4.2 m	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	1.88 (3) 2.11 (13) 2.48 (2) 2.58 (5) 2.69 (2) 3.15 (75)	0.1939 0.3741 0.4055 0.4625 0.5791 0.8488 1.0429 1.2724	14.3 4.72 3.43 5.72 3.43 7.15 2.57 3.00		$^{100}\text{Pd}(n, \alpha)$ fission	0.0138(60)	14.5	$M_A$ 106.91013(32) $\Delta$ -83.710(300)
108	4.5 m	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	1.04 (30) 1.20 (70)	0.16495 $\rightarrow^{101}\text{Rh}$	28		fission		$M_A$ 107.91001(64) $\Delta$ -83.820(600)	

### (13) アンチモン (Sb - 125)

アンチモンは、古代エジプトの昔から知られていた金属で原鉱の輝安鉱 $Sb_2S_3$ （スチブナイト）とも呼ばれ、その埋蔵量は中国に最も多い。アンチモンは、周期表で5族のヒ素の下、ビスマスの上にある非遷移元素である。金属アンチモンは融点以上に加熱すると空気中で燃え、揮発性の $Sb_2O_3$ を生ずる。

赤熱したアンチモンは、水蒸気と反応して $Sb_2O_3$ を生ずる。 $Sb_2O_3$ は空気中で加熱すると、 $Sb_2O_4$ となる。これは $Sb$  (III)、 $Sb$  (V) の混合酸化物である。水、酸、アルカリには、いずれも少ししか溶けず、溶けたときの化学種はいまだよくわかっていないが、水溶液中では、酸化状態として+3価のみが安定であるとされている。しかしこれも加水分解しやすく、酸素と結合した $K SbO_2$ や $SbOC_1$ の様な形となりやすい。ハロゲン化物、水素化物などは揮発しやすい化合物が多く試料の加熱溶解では、揮発による損失がないよう注意しなければならない。

アンチモンの核データを表-2. 26に示す。

表-2.26 アンチモン核データ 1/2

原子量 121.75(3)			イオン化エネルギー(1) 8.642 eV			融点 903.7 K	KX線エネルギー				
電子配置 [Kr] 4d <sup>10</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>3</sup>			イオン化エネルギー(2) 16.5 eV			沸点 2023 K	$K\alpha_1=26.359 \text{ keV}$				
原子半径 1.45 Å							$K\beta_1=29.726 \text{ keV}$				
密度 6.684 g/cm <sup>3</sup>			イオン半径 5+(4) 0.59 Å								
			5+(6) 0.62								
			3+(6) 0.76								
核種 A	半減期 $T_{1/2}$	崩壊形式 または 存在比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)					おもな生成反応		$M_A$ 原子質量 (u) $A$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_s$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )	
			$\gamma$	$E_\gamma$ (%)	$E_\gamma$	$I_\gamma$	$I_{\text{tot}}$	$A_x(a, b)$	$\sigma$ barn		$E_a$ MeV
112	54 s	$\beta^+$ EC	$\beta^+$	3.50 4.53	0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.9910 1.2572	14.3 95.0		<sup>112</sup> Sn( $p, n$ )		$M_A$ 111.91225(11) $A$ -81.740(100)	
113	6.74 m	$\beta^+$ EC 65.1% 34.9%	$\beta^+$	1.82 (3, 6) 2.34 (57) 2.43 (4, 1)	0.090 0.3303 0.4965 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.9360 1.0145 1.1468 1.556 $\rightarrow^{118m}$ Sn	2 9 83 130.2 5.5 1.4 0.6 1.1		<sup>112</sup> Sn( $d, n$ ) <sup>114</sup> Sn( $p, 2n$ )		$M_A$ 112.909348(34) $A$ -84.443(32)	
114	3.52 m	$\beta^+$ EC 88.4% 11.6%	$\beta^+$	2.356 (4, 1) 2.688 (3, 4) 3.072 (6, 5) 3.960 (74, 4)	0.322 0.392 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.7166 0.8877 1.2998	5.5 1.1 176.8 4.9 18.6 95.1		<sup>114</sup> Sn( $p, n$ ) <sup>115</sup> Sn( $p, 2n$ )		$M_A$ 113.90889(5) $A$ -84.870(50)	
115	31.8 m	EC $\beta^+$ 66% 34%	$\beta^+$	1.509 (33)	0.4910 0.4980 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 1.2368	3.0 99.1 68 0.76	0.6	<sup>114</sup> Sn( $d, n$ ) Sn( $p, xn$ ) <sup>113</sup> In( $\alpha, 2n$ )	0.084	19.2	$M_A$ 114.906597(22) $A$ -87.005(20)
116	15.8 m	EC $\beta^+$ 72% 28%	$\beta^+$	1.30 2.29	0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.93180 1.29354 2.22533	56 24.7 84.8 14.2		<sup>116</sup> Te $\rightarrow$ <sup>115</sup> In( $\alpha, 3n$ )			$M_A$ 115.90668(4) $A$ -86.930(40)
116m	60.3 m	EC $\beta^+$ 80.8% 19.2%	$\beta^+$	1.18	0.09982 0.13552 0.40735 0.43668 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.54287 0.84402	33.2 30 42 4.1 51.7 12.0	50 6	<sup>115</sup> In( $\alpha, 3n$ ) <sup>115</sup> In( $\alpha, n$ ) Sn( $p, xn$ )	0.009	19.2	$M_A$ 115.90733(4) $A$ -86.320(40)
117	2.80 h	EC $\beta^+$ 97.5% 2.5%	$\beta^+$	0.564 (1, 7)	0.15856 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.86135 1.00451	85.9 3.4 0.31 0.21	14	<sup>115</sup> In( $\alpha, 2n$ ) <sup>117</sup> Sn( $p, n$ ) Sn( $p, xn$ )	0.0282 0.809	5.39 18.8	$M_A$ 116.904827(20) $A$ -88.654(18) $\Gamma_s$ 0.181
118	3.5 m	$\beta^+$ ~75.5% EC ~24.5%	$\beta^+$	1.44 (~0.5) 2.67 (~75)	0.511( $\gamma^\pm$ ) 0.5282 0.8269 1.2295 1.2670	151 0.39 0.36 2.5 0.58		<sup>118</sup> Te $\rightarrow$ <sup>115</sup> In( $\alpha, n$ ) <sup>115</sup> Sn( $p, n$ )	0.858(86) 0.0246	17.9 5.33	$M_A$ 117.905564(5) $A$ -87.967(5)
118m	5.00 h	EC 99.8% $\beta^+$ 0.16%	$\beta^+$	0.311 (0.16)	0.0410 0.25368 1.05069 1.22964	99 97 100	1	<sup>115</sup> In( $\alpha, n$ ) Sn( $p, xn$ )	0.019	19.2	$M_A$ 117.905800(5) $A$ -87.75
119	38.1 h	EC 100%			0.02387	16.1	89.9	<sup>119</sup> Sn( $p, n$ ) <sup>115</sup> In( $\alpha, \gamma$ )	0.0208 0.000186(2)	5.12 16.7	$M_A$ 118.903937(13) $A$ -89.483(12)
120A	15.9 m	EC 56.1% 43.9%	$\beta^+$	1.659 (44)	0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.7032 1.1710	88 0.269 2.16		<sup>120</sup> Sn( $p, n$ ) <sup>120</sup> Sn( $d, 2n$ ) <sup>119</sup> Sn( $d, n$ ) <sup>121</sup> Sb( $n, 2n$ )	0.0295	5.29	$M_A$ 119.905077(9) $A$ -88.421(8)
120B	5.8 d	EC 100%			0.0898 0.1973 1.0233 1.1717	80.2 87.2 99 100	19.8 12.8	<sup>119</sup> Sn( $d, n$ ) <sup>120</sup> Sn( $2d, n$ )	1.54(10)	14.1	$M_A$ 119.905077(9) $A$ -88.421(8)
<121>		57.25%							$\sigma_e$ 6.06		$M_A$ 120.9038237(38) $A$ -89.5884(35)
122+	2.70 d	$\beta^-$ 97.6% EC 2.4% $\beta^+$ 0.006%	$\beta^-$	0.724 (4, 6) 1.417 (66.6) 1.981 (26.4)	0.56424 0.69265 1.14067 1.25693	70.0 3.82 0.74 0.81	0.4	<sup>121</sup> Sb( $n, \gamma$ ) <sup>122</sup> Sb( $n, 2n$ ) <sup>122</sup> Sn( $p, n$ )	6.2(2) 1.27(14) 0.0251	14.8 5.15	$M_A$ 121.9051818(39) $A$ -88.3233(36) $\Gamma_s$ 0.255
122m	4.2 m	IT 100%			0.06145 0.07608 $\rightarrow^{122}$ Sb	44.3 18.4		<sup>121</sup> Sb( $n, \gamma$ ) <sup>123</sup> Sb( $n, 2n$ )	0.055(10) 1.013(122)	14.8	$M_A$ 121.9053567(39) $A$ -88.1603(36)
<123>		42.75%							$\sigma_e$ 3.345		$M_A$ 122.904222(4) $A$ -89.2175(38)
124+	60.20 d	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.212 (8, 8) 0.612 (52.0) 0.866 (3, 63) 0.948 (2, 0) 1.580 (5, 39) 1.657 (2, 45) 2.803 (22, 61) 0.38	0.60272 0.64582 0.70931 0.71382 0.72278 0.96825 1.04524 1.32549 1.36823 1.43666 1.69102 2.0910	97.9 7.21 1.42 2.39 11.2 1.83 1.84 1.41 2.35 1.02 48.8 5.58	0.42	<sup>123</sup> Sb( $n, \gamma$ ) <sup>127</sup> I( $n, \alpha$ ) <sup>124</sup> Te( $n, p$ ) <sup>124</sup> Sn( $p, n$ )	4.28(16) 0.0011(2) 0.144(40) 0.0852	14.1 14.2 5.85	$M_A$ 123.905944(4) $A$ -87.6134(38) $\Gamma_s$ 0.954

表-2. 26 アンチモン核データ

2/2

原子量	121.75(3)	イオン化エネルギー(1)	8.642 eV	融点	903.7 K	KX線エネルギー							
電子配置	[Kr] 4d <sup>10</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>3</sup>	イオン化エネルギー(2)	16.5 eV	沸点	2023 K	$K\alpha_1 = 26.359 \text{ keV}$							
原子半径			1.45 Å			$K\beta_1 = 29.726 \text{ keV}$							
密度	6.684 g/cm <sup>3</sup>	イオン半径	5+(4) 0.59 Å 5+(6) 0.62 3+(6) 0.76										
核種	半減期	崩壊形式 または 存 在 比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)				おもな生成反応	$M_A$ 原子質量 (u) $A$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_i$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )					
$A$	$T_{1/2}$		$E_\gamma$ (%)	$E_T$	$I_T$	$I_{\text{ee}}$	$A_n(a, b)$	$\sigma$ barn	$E_a$ MeV				
124m <sub>1</sub>	93 s	IT $\beta^-$ ~80% ~20%		0.4964 0.60272 1.700 (~20) 0.6458 (<1)	19.7 20 20		$^{123}\text{Sb}(n, \gamma)$ $^{124}\text{Te}(n, p)$	0.035(20) 0.0045(31)	14.2	$M_A$ 123.905955(4) $A$ -87.6027(38)			
124m <sub>2</sub>	20.2 m	IT	100%		~0.025 $\rightarrow^{124m}1\text{Sb}$		$^{123}\text{Sb}(n, \gamma)$ $^{124}\text{Te}(n, p)$	0.0114(25) <0.0004	14.2	$M_A$ 123.905982(4) $A$ -87.5784(38)			
125	2.77 y	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	0.094 (13.5) 0.124 (5.7) 0.130 (18.1) 0.241 (1.5) 0.302 (40.2) 0.445 (7.1) 0.621 (13.6) 0.0861	0.17629 0.32113 0.38051 0.42795 0.46351 0.60077 0.60682 0.63615 0.67166 $\rightarrow^{125m}\text{Te}$	6.06 0.44 1.52 29.6 10.4 17.7 4.87 11.2 1.74	1.86 0.02 0.03 0.7 0.1 0.1 0.02	$^{124}\text{Sn}(n, \gamma)^{125}\text{Sn}(\beta)$		$M_A$ 124.905259(5) $A$ -88.252(5) $\Gamma_i$ 0.241		
126	12.4 d	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	0.479 (32) 1.175 (15.4) 1.896 (16.6)	0.4148 0.6663 0.6950 0.7205 0.8567	89.7 99.7 99.7 57.8 16.9	1.3 0.3 0.3	fission $^{120}\text{Sn} \rightarrow$ $^{124}\text{Sn}(\alpha, pn)$	0.033	38.9	$M_A$ 125.907245(35) $A$ -86.402(32) $\Gamma_i$ 1.60	
126m	19.0 m	$\beta^-$	86% 14%	IT	0.990 (<1.3) 1.297 (3.3) 1.918 (82) 2.331 (<4)	0.4148 0.6663 0.6950 0.6950	86 86 83		$^{120}\text{Te}(n, p)$ fission $^{120}\text{Sn} \rightarrow$ $^{124}\text{Sn}(\alpha, pn)$	0.016(5)	40.1	$M_A$ 125.907264(35) $A$ -86.384(32)	
127	3.91 d	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	0.501 (5.2) 0.795 (7.9) 0.797 (17.4) 0.890 (34.8) 0.949 (4.4) 1.104 (22.4)	0.2524 0.4121 0.4451 0.4730 0.5433 0.6035 0.6857 0.6985 0.7837 $\rightarrow^{127m}\text{Te}, ^{127}\text{Te}$	8.3 3.7 4.2 25.1 2.9 4.3 35.7 3.5 14.7		fission $^{127}\text{Sn} \rightarrow$ $^{124}\text{Sn}(\alpha, p)$ $^{128}\text{Te}(n, np)$	0.019(3) 0.00033(5)	27 14.5	$M_A$ 126.906920(7) $A$ -86.704(7) $\Gamma_i$ 0.379	
127m	10.4 m	$\beta^-$	96.4%	$\beta^-$	1.61 (3.9)	0.31400	91.2		fission			$M_A$ 127.90906(16)	
		IT	3.6%		1.66 (8.4) 1.86 (4.6) 2.45 (78)	0.74324 0.75390 0.78760	96 96 7.1	$^{128}\text{Sn} \rightarrow$ $^{128}\text{Te}(n, p)$	0.065(19)	14.2	$A$ -84.710(150)		
128	9.10 h	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	0.51 (6.9) 0.82 (15.6) 1.09 (13) 1.48 (7.0) 1.90 (20)	0.31400 0.5265 0.6362 0.74324 0.75390	59 44.9 36 99.8 99.8	2 0.1 0.2 0.2	fission $^{120}\text{Te}(n, p)$	0.0025(5)	14.2	$M_A$ 127.0904(16) $A$ -84.730(150)	
129	4.41 h	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	0.570 (15.0) 0.677 (6.0) 0.686 (24.8) 1.600 (9.2) 1.868 (6.8) 2.307 (10.4)	0.5447 0.6836 0.7610 0.8128 0.9146 0.9664 1.0301 1.7365 $\rightarrow^{129}\text{Te}$	18.1 5.2 3.8 43.5 20.2 7.8 12.7 6.0		fission $^{120}\text{Te}(n, np)$	0.00017(2)	14.5	$M_A$ 128.909146(23) $A$ -84.630(22)	
130A	40.9 m	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	2.90 (18.3)	0.1823 0.3309 0.7320 0.7934 0.8394	65 78 22 100 100		$^{130}\text{Te}(n, p)$ fission	0.0026(8)	14.2	$M_A$ 129.91156(9) $A$ -82.380(80)	
130B	6.51 m	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	2.14	0.1823 0.7934 0.8163 0.8394 1.0175	41 86 12 100 30		$^{130}\text{Te}(n, p)$ fission $^{130}\text{Sn} \rightarrow$	0.013(5)	14.2	$M_A$ 129.91156(9) $A$ -82.380(80)	
131	23 m	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	0.603 (6.6) 1.032 (7.9) 1.223 (27) 2.156 (5.3) 2.457 (9) 2.918 (6.8)	0.6423 0.6579 0.9331 0.9434 1.1236 $\rightarrow^{131}\text{Te}, ^{131m}\text{Te}$	22 6.5 25 44 8.3		fission			$M_A$ 130.91186 SYST $A$ -82.100 SYST	
132A	4.2 m	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	2.8 (14) 3.2 (14) 3.7 (43)	0.1034 0.1506 0.6968 0.9739	35 66 100 100		fission			$M_A$ 131.91453(22) $A$ -79.610(200)	
132B	2.80 m	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	3.9	0.1034 0.6356 0.6968 0.9739	14 9.9 86 98.9					$M_A$ 131.91453(22) $A$ -79.610(200)	
133	2.7 m	$\beta^-$	100%	$\beta^-$	1.20	0.30824 0.83689 1.02683 1.09620 1.11518 1.26532 1.30523 1.72863 2.41604 2.75543 $\rightarrow^{133m}\text{Te}$	10.1 r 25.8 r 12.8 r 100 r 11.2 r 12.7 r 13.2 r 16.9 r 20.0 r 30.0 r			fission			$M_A$ 132.91521(23) $A$ -78.980(210)

#### (14) ストロンチウム (Sr-90)

1787年にW. Cruikshankによってスコットランド西部のストロンチャン鉱山で産出され  
鉱石ストロンチャナイトの中から発見された。ストロンチウムは、比較的軟らかい銀白色の金属  
である。しかし空気中にさらすと直ちに黒色の酸化被膜ができ、更に長時間おけば表面が白色の  
酸化物及び炭酸塩で覆われてしまう。また、水と激しく反応して水酸化物を生成し、水素を発生  
する。ストロンチウムは、カルシウムやラジウムと共にアルカリ土類金属に属し、アルカリ金属  
よりは高い融点をもっている。ストロンチウムは、水溶液中では+2価が安定で硫酸イオン、炭  
酸イオン、しう酸イオンなどと不溶性の塩を作る。硫酸塩は水ばかりではなく、酸にも溶けな  
い。

ストロンチウムの核データを表-2. 27に示す。

核分裂生成物中のストロンチウムのうちSr-90は量も多く半減期が長い。

表-2. 27 ストロンチウム核データ

原 子 量 87.62(1)			イオン化エネルギー(1) 5.696 eV			融 点 1043 K	K X線エネルギー				
電子配置 [Kr] 5s <sup>2</sup>			イオン化エネルギー(2) 11.030 eV			沸 点 1657 K	$K\alpha_1 = 14.165 \text{ keV}$				
原 子 半 径 2.15 Å							$K\beta_1 = 15.836 \text{ keV}$				
密 度 2.60 g/cm <sup>3</sup>			イオン半径 2+(6) 1.16 Å								
核種 A	半減期 $T_{1/2}$	崩壊形式 または 存 在 比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率(%)				おもな生成反応				
			$E_\gamma$	$E_\gamma$ (%)	$I_\gamma$	$I_{\text{co}}$	$A_T(a, b)$	$\sigma$ barn	$E_a$ MeV		
									$M_A$ 原子質量 (u) $\Delta$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_s$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )		
80	106.3 m	EC + $\beta^+$			0.1750 0.2359 0.3788 0.4141 0.5534 0.5890	10.4 4.28 4.28 3.32 7.04 40	$^{14}\text{N} + \text{Ga}$ $^{72}\text{Ge}(^{12}\text{C}, 4n\gamma)$		55~68	$M_A$ 79.92443 SYST $\Delta$ -70.390 SYST	
81	25.5 m	$\beta^+$ EC 85.6% 11.8%	$\beta^+$	1.586 (3.7) 2.102 (5.9) 2.393 (9.0) 2.524 (15.9) 2.657 (24.4) 2.780 (10.2) 2.968 (10.7)	0.1423 0.1478 0.1534 0.1883 0.4435 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.5746 $\rightarrow^{81m}\text{Rb}, ^{81}\text{Rb}$	4.09 30.4 36 20.6 17.0 173 6.13	$^{85}\text{Rb}(p, 5n)$			$M_A$ 80.92329(5) $\Delta$ -71.460(50)	
82	25.0 d	EC 100%			$\rightarrow^{82}\text{Rb}$		$^{85}\text{Rb}(p, 4n)$ $^{75}\text{As}(^{12}\text{C}, 5n)^{82}\text{Y}(\text{EC})$			$M_A$ 81.918413(9) $\Delta$ -75.999(9)	
83	32.4 h	EC 75.7% $\beta^+$ 24.3%	$\beta^+$	0.422 (0.9) 0.803 (1.4) 1.185 (9.7) 1.227 (12.3)	0.0423 0.3815 0.3892 0.4186 0.4235 0.5110( $\gamma^\pm$ ) 0.7627 0.7784 1.1604 1.5623 $\rightarrow^{83}\text{Rb}$	1.6 11.7 1.6 5.0 1.6 48.6 30 1.9 1.5 2.0	$^{85}\text{Rb}(p, 3n)$ $^{84}\text{Sr}(n, 2n)$ $^{89}\text{Y}(p, 2p5n)$	0.91(6) 0.0275(40)	14.1 240	$M_A$ 82.917620(32) $\Delta$ -76.737(30)	
<84>		0.56%						$\sigma_e$ 1.45		$M_A$ 83.913428(4) $\Delta$ -80.641(4)	
85	64.84 d	EC 100%			0.51399 0.8685	98.0 0.010	0.71	$^{84}\text{Sr}(n, \gamma)$ $^{85}\text{Rb}(p, n)$ $^{85}\text{Rb}(d, 2n)$ $^{86}\text{Sr}(n, 2n)$	0.26(6)	$M_A$ 84.912942(7) $\Delta$ -81.095(7) $\Gamma_s$ 0.565	
85m	68.0 m	IT 87.9% EC 12.1%			0.15128 0.23169 0.23865	11.6 85.0 0.27	0.5 2.0 0.63	$^{84}\text{Sr}(n, \gamma)$ $^{85}\text{Rb}(p, n)$ $^{85}\text{Rb}(d, 2n)$ $^{86}\text{Sr}(n, 2n)$	0.55(4) 0.312(50)	14.6 14.6	$M_A$ 84.913198(7) $\Delta$ -80.856(7)
<86>		9.86%						$\sigma_e$ 1.3		$M_A$ 85.9092732(29) $\Delta$ -84.5121(28)	
<87>		7.02%								$M_A$ 86.9088902(29) $\Delta$ -84.8689(27)	
87m	2.806 h	IT 99.70% EC 0.30%			0.38840	82.26	17.4	$^{87}\text{Y} \rightarrow$ $^{85}\text{Sr}(n, \gamma)$ $^{87}\text{Rb}(p, n)$ $^{86}\text{Sr}(n, 2n)$	0.84(6) 0.19(4) 0.212(12)	6.7 14.1	$M_A$ 86.9093071(29) $\Delta$ -84.481(3) $\Gamma_s$ 0.224
<88>		82.56%						$\sigma_e$ 0.006		$M_A$ 87.9056249(29) $\Delta$ -87.9106(27)	
89	50.5 d	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.580 (0.001) 1.489 (99.99) 0.573	0.9091 $\rightarrow(^{89m}\text{Y} \text{を含む})$	0.001		$^{86}\text{Sr}(d, p)$ $^{85}\text{Sr}(n, \gamma)$ $^{89}\text{Y}(n, p)$ $^{92}\text{Zr}(n, \alpha)$	0.0058(4) 0.024(2) 0.0099(9)	14.4 14.3	$M_A$ 88.907458(4) $\Delta$ -86.203(4)
90	29.12 y	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.546 (100) 0.1963	(100) $\rightarrow^{89}\text{Y}$			fission		$M_A$ 89.907746(4) $\Delta$ -85.9347(38)	
91	9.5 h	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.62 (1.9) 1.10 (34.9) 1.38 (24.6) 2.03 (3.6) 2.682 (30.5)	0.6523 0.6529 0.7498 0.9258 1.0243 $\rightarrow^{81m}\text{Y}, ^{81}\text{Y}$	2.90 7.68 23.0 4.0 33.4		$^{86}\text{Zr}(n, \alpha)$	0.0057(4)	14.3	$M_A$ 90.910182(6) $\Delta$ -83.666(5) $\Gamma_s$ 0.562
92	2.71 h	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.546 (96.5) 1.930 (3.3)	0.24152 0.43056 0.95332 1.1423 1.38994 $\rightarrow^{82}\text{Y}$	2.97 3.33 3.60 2.88 90.0		fission		$M_A$ 91.911013(36) $\Delta$ -82.892(34)	
93	7.4 m	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	1.38 (12) 2.30 (23) 3.36 (11)	0.16845 0.26014 0.59018 0.71019 0.87586 0.88826 1.26928 $\rightarrow^{85}\text{Y}$	19.7 7.67 73 21.2 25.2 24.5 7.96		$^{86}\text{Zr}(n, \alpha)$ fission	0.0011	14.5	$M_A$ 92.91382(16) $\Delta$ -80.280(150)
94	75 s	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	1.99 (99.3)	1.4283 $\rightarrow^{84}\text{Y}$	95.4		fission		$M_A$ 93.91523(8) $\Delta$ -78.960(70)	
95	24.4 s	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	6.09 (53)	0.6859 0.8269 2.2473 2.7173 2.9332 $\rightarrow^{84}\text{Y}$	24 3.04 4.03 4.90 4.32		fission		$M_A$ 94.91933(10) $\Delta$ -75.140(90)	

## (15) ウラン(全ウラン)

ウランは、1789年にM. H. KlaprothがSaxony地方からのピッチブレンドの標本から発見したものである。ウランは自然界に広く分布されていて、海水中にもさまざまな岩石中にもかなりの濃度で見いだされている。地殻中のウランの平均濃度は、4 ppm程度であるといわれている。天然に産出するウランは、三種の同位体U-238、U-235及びU-234の混合物である。ウランの人工的同位体も多数作られており、ウランのトレーサとして利用されるものがある。

たとえば、 $\beta$ 線を出すU-237、 $\alpha$ 線を出すU-232などがそれであり、この2つの同位体は化学・物理の分野で広く利用されている。ウランの核データを表-2. 28に示す。

溶液中のウランイオンは、+3、+4、+5及び+6の酸化状態をとる。また、溶液中のウランの原子価状態の安定性は、



の順である。

ウランイオンは、他の金属イオンと同様に加水分解をうけ、錯体を作る傾向がきわめて強い。

ウランイオンの錯形成の相対的傾向は、



の順である。pH=1~5の範囲ではウランは基本的に陰極に移動し、逆にpH5以上では陽極に移動する。このことは、pH5以上で錯形成していることに由来する。またpH5~8ではウランの+6価がコロイド状となり、pH8以上では溶液中に炭酸イオンが存在すると極めて安定な $UO_2(CO_3)^{4-}$ のウラニル炭酸錯体を生成する。

表-2. 28 ウラン核データ

原 子 量	238.0289(1)	イオン化エネルギー(1)	6.08 eV	融 点	1406 K	KX線エネルギー					
電子配置	[Rn] 5f <sup>3</sup> 6d <sup>1</sup> 7s <sup>2</sup>	イオン化エネルギー(2)	eV	沸 点	4091 K	$K\alpha_1 = 98.439 \text{ keV}$					
原子半径	1.38/1.50 Å					$K\beta_1 = 111.300 \text{ keV}$					
密 度	19.05 g/cm <sup>3</sup>	イオン半径	6+(6) 0.80 Å 5+(6) 0.87 4+(8) 1.01 3+(8) 1.16								
(286K)											
核種	半減期	崩壊形式 または 存 在 比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)				おもな生成反応	$M_A$ 原子質量 (u) $A$ 質量欠損 (MeV) $\Gamma_A$ (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )			
$A$	$T_{1/2}$		$E_\alpha$ (%)	$E_\gamma$	$I_\gamma$	$I_{\alpha}$	$A_T(a, b)$	$\sigma$ barn	$E_a$ MeV		
228	9.1 m	$\alpha$ >95% EC <5%	$\alpha$	6.590 (29r) 6.684 (70r)	0.152 0.187 0.246 $\rightarrow^{224}\text{Th}$	0.2 r 0.3 r 0.4 r	$^{222}\text{Th}(\alpha, 8n)$			$M_A$ 228.031370(22) $A$ 29.221(21)	
229	58 m	EC $\geq 80\%$ $\alpha$ $\leq 20\%$	$\alpha$	6.297 (2.2) 6.382 (4.0) 6.360 (19)	$\rightarrow^{225}\text{Th}$ $\rightarrow^{220}\text{Pa}$		$^{222}\text{Th}(\alpha, 7n)$			$M_A$ 229.033495(12) $A$ 31.201(11)	
230	20.8 d	$\alpha$ 100%	$\alpha$	5.818 (31.9) 5.888 (67.5)	0.07220 0.15423 0.15818 0.23037 $\rightarrow^{226}\text{Th}$	0.60 0.13 0.07 0.12	$^{230}\text{Pa} \rightarrow$ $^{230}\text{Th}(\alpha, 4n)$	$\sigma_t$ 25 0.0129(9)	42.6	$M_A$ 230.033931(6) $A$ 31.607(6)	
231	4.2 d	EC ~100%			0.02564 0.08418 0.220	12 7 1	$^{230}\text{Th}(\alpha, 3n)$ $^{231}\text{Pa}(d, 2n)$ $^{232}\text{Th}(\alpha, 5n)$	$\sigma_t$ ~400		$M_A$ 231.03627(5) $A$ 33.780(50)	
232	72 y	$\alpha$ 100%	$\alpha$	5.2634(31.7) 5.3202(68.2)	0.05778 0.12908 $\rightarrow^{226}\text{Th}$	0.202 0.067	30.3 0.2	$^{232}\text{Th}(\alpha, 4n)$ $^{232}\text{Pa} \rightarrow$	$\sigma_t$ 78 $\sigma_t$ 77		$M_A$ 232.037141(6) $A$ 34.597(6)
233	$1.591 \times 10^5$ y	$\alpha$ 100%	$\alpha$	4.729 (1.6) 4.783 (13.23) 4.796 (0.28) 4.824 (84.4)	0.02916 0.04244 0.05469 0.09714 0.14634 0.16454 0.29134 0.31715	0.012 0.062 0.015 0.022 0.0064 0.0062 0.0055 0.0080		$^{233}\text{Pa} \rightarrow$	$\sigma_t$ 49 $\sigma_t$ 524		$M_A$ 233.0396293(35) $A$ 36.9147(33)
234	$2.45 \times 10^5$ y	$\alpha$ 100%	$\alpha$	4.604 (0.3) 4.723 (27.5) 4.775 (72.5)	0.05322 0.12090 $\rightarrow^{230}\text{Th}$	0.119 0.0405	27.5 0.3	$^{233}\text{U}(n, \gamma)$ $^{238}\text{Pu} \rightarrow$ $^{234}\text{Th} \rightarrow$ $^{235}\text{U}(n, 2n)$	$\sigma_t$ 95 47.7(20)		$M_A$ 234.0409474(26) $A$ 38.1426(24)
<235>	$7.038 \times 10^5$ y	$\alpha$ 0.7205% 100%	$\alpha$	4.218 (6.2) 4.368 (12.3) 4.374 (6.1) 4.400 (57) 4.599 (4.6)	0.10914 0.14376 0.16335 0.18572 0.20212 0.20531 $\rightarrow^{231}\text{Th}$	1.5 10.5 4.7 54.0 1.0 4.7			$\sigma_t$ 101 $\sigma_t$ 577	14.1	$M_A$ 235.0439252(26) $A$ 40.9164(24)
235	24.7 m	IT 100%			$\rightarrow^{235}\text{U}$			$^{239}\text{Pu} \rightarrow$			$M_A$ 235.0439252(26) $A$ 40.9165(24)
236	$2.34 \times 10^7$ y	$\alpha$ 100%		4.331 (0.26) 4.445 (26) 4.494 (74)	0.04937 0.11275	0.079 0.019	27	$^{235}\text{U}(n, \gamma)$ $^{235}\text{U}(n, \gamma)$ $^{238}\text{U}(n, 3n)$	$\sigma_t$ 6 98.6(15) 1.06 0.49	0.012	$M_A$ 236.0455629(25) $A$ 42.4420(23)
237	6.75 d	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.248 (96)	0.05954 0.20801	37.4 20.2	38 56	$^{238}\text{U}(n, 2n)$ $^{238}\text{U}(n, 2n)$ $^{238}\text{U}(n, \alpha n)$ $^{237}\text{Np}(n, p)$ $^{238}\text{U}(n, \gamma)$ $^{238}\text{U}(n, \gamma)$	0.85(6) 0.0047 0.15 0.0013(3) 5.2(3) 0.35(4)	14.1 fast 45 14.5 1.0	$M_A$ 237.0487264(27) $A$ 45.3887(25)
<238>	$4.468 \times 10^8$ y	$\alpha$ 99.2741% ~100%	$\alpha$	4.040 (0.23) 4.150 (23) 4.197 (77)	0.04955 $\rightarrow^{234}\text{Th}$	0.32	23		$\sigma_t$ 2.73 $\sigma_t$ <0.0005		$M_A$ 238.0507858(24) $A$ 47.3070(22)
239	23.54 m	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	1.211 (80) 1.285 (20)	0.04353 0.07467 $\rightarrow^{230}\text{Np}$	5.6 59.3	6 16	$^{238}\text{U}(n, \gamma)$ $^{238}\text{U}(n, \gamma)$ $^{238}\text{U}(n, \gamma)$ $^{238}\text{U}(d, p)$	$\sigma_t$ 22 $\sigma_t$ 14 2.70(2) 0.69 0.21 0.20	0.011 1.0 13	$M_A$ 239.0542910(24) $A$ 50.5722(22)
240	14.1 h	$\beta^-$ 100%	$\beta^-$	0.36 (>80)	0.0441 $\rightarrow^{240}\text{Np}$	1.7		$^{238}\text{U}(n, \gamma)$ $^{239}\text{U}(n, \gamma)$			$M_A$ 240.056588(5) $A$ 52.712(5)

## (16) ジルコニウム (Zr - 95)

ジルコニウムは1824年スウェーデンのJ. J. Berzeliusによってジルコンという鉱石から発見されたが、1925年に至ってやっと純度のある金属を得られた比較的新しい金属である。

ジルコニウム金属の特徴は、高融点で耐酸性、耐食性があること、また熱中性子断面積が小さいこと、及び酸素と窒素に対し親和力があることである。粉末・削りくずなどは、空気中で燃えるが塊は表面に酸化保護被膜を生じるため安定である。同様に不動態を生じ酸にはなかなか溶けない。しかしフッ化水素酸にはジルコニウムがフッ素イオンと錯体を生じるため激しく反応して溶け、水素を発生する。

二酸化ジルコニウムは水に溶けない硬い白色粉末である。水溶液中でも酸化状態は+4価が唯一安定なものである。しかし $Zr^{4+}$ の形では存在しない。1M以下の酸性、あるいは錯化剤の存在しない水溶液中では加水分解する。加水分解によって生成する化学種は、おもにジルコニルイオン $ZrO_2^{2+}$ と見られている。 $ZrO_2^{2+}$ も次のように加水分解する。



ジルコニウムの核データを表-2. 29に示す。

核分裂生成物のジルコニウムは安定同位体が多く生成し、元素としては核分裂生成物中生成量のもっとも多いものである。放射性同位体には $Zr-95$  (64.0日)、 $Zr-97$  (16.8時間) がある。いずれも娘核種がニオブであり放射性核種となる。トレーサ量のジルコニウムは加水分解しやすい性質のためラジオコロイドになりやすく器壁に吸着されやすい。

表-2. 29 ジルコニウム核データ

原子量 91.22(1) 電子配置 [Kr] 4d <sup>2</sup> 5s <sup>2</sup> 密度 6.49 g/cm <sup>3</sup>			イオン化エネルギー(1) 6.837 eV イオン化エネルギー(2) 13.13 eV イオン半径 1.62 Å			融点 2130 K 沸点 4650 K K <sub>α1</sub> =15.775 keV K <sub>β1</sub> =17.668 keV						
核種 <i>A</i>	半減期 <i>T<sub>1/2</sub></i>	崩壊形式 または 存在比	放射線のエネルギー (MeV) と放出率 (%)				おもな生成反応			<i>M<sub>A</sub></i> 原子質量 (u) <i>A</i> 質量欠損 (MeV) <i>Γ<sub>s</sub></i> (R·h <sup>-1</sup> ·m <sup>2</sup> ·Ci <sup>-1</sup> )		
			<i>E<sub>γ</sub></i> (%)	<i>E<sub>T</sub></i>	<i>I<sub>γ</sub></i>	<i>I<sub>ee</sub></i>	<i>A<sub>T</sub>(a, b)</i>	<i>σ barn</i>	<i>E<sub>a</sub> MeV</i>			
85	7.9 m	EC, β <sup>+</sup>		0.4163 0.4543 1.1984	24.9 41.0 4.39		<sup>89</sup> Y(p, 5n)			<i>M<sub>A</sub></i> 84.92149 SYST <i>A</i> -73.130 SYST		
85m	10.9 s	IT, EC, β <sup>+</sup>		0.2922			<i>p+<sup>89</sup>Y</i>			<i>M<sub>A</sub></i> 84.92180 SYST <i>A</i> -72.648 SYST		
86	16.5 h	EC 100%		0.0291 0.2428 0.6120 → <sup>88</sup> Y	21.6 95.8 5.7	78.4 4.2	<sup>89</sup> Y(p, 4n)	0.0815(13)	55	<i>M<sub>A</sub></i> 85.91633 SYST <i>A</i> -77.940 SYST <i>Γ<sub>s</sub></i> 0.586		
87	1.73 h	β <sup>+</sup> EC 80% 20%	β <sup>+</sup>	2.18 (79)	0.5110( <i>γ<sup>±</sup></i> ) 0.7940 1.0240 1.2100 1.2270 → <sup>87m</sup> Y, <sup>87</sup> Y	160 0.30 0.85 1.00 3.03		<sup>89</sup> Y(p, 3n)	0.385(46)	40	<i>M<sub>A</sub></i> 86.91473(9) <i>A</i> -79.430(80)	
88	83.4 d	EC 100%		0.3929 → <sup>88</sup> Y	97.3	2.7	<i>p+Nb</i> <sup>89</sup> Y(p, 2n)	1.318(171)	27.5	<i>M<sub>A</sub></i> 87.910230(11) <i>A</i> -83.621(10) <i>Γ<sub>s</sub></i> 0.220		
89	78.4 h	EC 77.36% β <sup>+</sup> 22.64%	β <sup>+</sup>	0.905 (22.64)	0.5110( <i>γ<sup>±</sup></i> ) 0.9092 1.7129 →( <sup>89m</sup> Yを含む)	45.28 99.87 0.77		<sup>89</sup> Y(p, n) <sup>90</sup> Zr(n, 2n) <sup>92</sup> Mo(n, α)	0.33 0.572(30) 0.020(8)	15 14.4 14.7	<i>M<sub>A</sub></i> 88.9089003(34) <i>A</i> -84.8595(32)	
89m	4.18 m	IT 94% EC 4.7% β <sup>+</sup> 1.5%	β <sup>+</sup>	0.890 (1.34) 2.397 (0.17)	0.5110( <i>γ<sup>±</sup></i> ) 0.5878 1.5074	3.0 87.0 6.2	7.0	<sup>89</sup> Y(p, n) <sup>90</sup> Zr(n, 2n) <sup>92</sup> Mo(n, α)	0.34 0.0795(56) 0.0074(6)	12 14.4 14.8	<i>M<sub>A</sub></i> 88.909532(4) <i>A</i> -84.272(3)	
<90>		51.46%						σ <sub>e</sub> 0.1			<i>M<sub>A</sub></i> 89.9047080(31) <i>A</i> -88.7646(29)	
<91>		11.23%						σ <sub>e</sub> 1			<i>M<sub>A</sub></i> 90.9056442(31) <i>A</i> -87.8925(29)	
<92>		17.11%						σ <sub>e</sub> 0.2			<i>M<sub>A</sub></i> 91.9050392(30) <i>A</i> -88.4561(28)	
93	1.53 × 10 <sup>6</sup> y	β <sup>-</sup> 100%	β <sup>-</sup>	0.60 ( $\geq 95$ ) 0.90 ( $\leq 5$ )	→ <sup>93m</sup> Nb			fission <sup>92</sup> Zr(n, γ)	0.26(8)		<i>M<sub>A</sub></i> 92.9064771(30) <i>A</i> -87.1167(28)	
<94>		17.40%							σ <sub>e</sub> 0.08			<i>M<sub>A</sub></i> 93.9063191(33) <i>A</i> -87.2639(31)
95	64.0 d	β <sup>-</sup> 100%	β <sup>-</sup>	0.366 (54.7) 0.398 (44.3) 0.888 (0.9) 1.122 (0.1) 0.119	0.28569 0.72418 0.75672 → <sup>95</sup> Nb, ( <sup>95m</sup> Nbを含む)	0.23 43.1 54.6	0.8	<sup>94</sup> Zr(n, γ) <sup>94</sup> Zr(d, p) <sup>98</sup> Zr(p, pn) fission	0.056(4) 0.265(15) 0.0698(54)	9.5 250		<i>M<sub>A</sub></i> 94.9080373(36) <i>A</i> -85.6634(34) <i>Γ<sub>s</sub></i> 0.417
<96>		2.80%	β <sup>-</sup>						σ <sub>e</sub> 0.05			<i>M<sub>A</sub></i> 95.908272(4) <i>A</i> -85.4447(37)
97	16.90 h	β <sup>-</sup> 100%	β <sup>-</sup>	0.559 (5.5) 0.901 (2.1) 1.414 (4.1) 1.922 (86)	0.25415 0.35539 0.50763 0.60241 0.74336 1.0213 1.14795 1.36266 1.75046 → <sup>97m</sup> Nb, <sup>97</sup> Nb	1.28 2.32 5.25 1.4 92.7 1.37 2.69 1.37 1.37	0.05 0.03 0.04 1.8	<sup>96</sup> Zr(n, γ) fission <sup>98</sup> Zr(d, p) <sup>100</sup> Mo(n, α)	0.017(3) 0.38(10) 0.014(6)	9.5 14.7		<i>M<sub>A</sub></i> 96.9109458(39) <i>A</i> -82.9542(37) <i>Γ<sub>s</sub></i> 0.0984

### 2-2-3 放射線計測

放射線粒子の検出は、粒子がある種の物質に作用してそれに与える効果を計ることによって行われる。下に掲げた種々の効果を示すものは、荷電粒子に限られており、光子や中性子を検出するためには、それが検出体に作用した結果、2次的に発生する荷電粒子を利用する。

利用される効果	検出器または、測定器の名称
○ 気体の電離	電離箱、計数管
○ 固体の電離	半導体検出器
○ 物質の発光 シンチレーション チェレンコフ効果	シンチレーション検出器 チェレンコフ検出器（一般的でない）
○ 物質の化学的变化	写真乳剤、化学線量計
○ 物質の物理的变化	熱ルミネッセンス線量計（TLD） 蛍光ガラス線量計
○ 物質の発熱	熱量計

これらの検出器はさらに色々の種類があり、目的に適したもののが使用される。対象核種の放出放射線核種と適用可能な検出器の関係を表-2. 30に示す。

以下、対象核種の測定に用いられる計測器について記す。<sup>15, 17, 19, 22, 44, 46)</sup>

#### (1) ゲルマニウム半導体検出器 ( $\gamma$ 線計測用)

##### a. 構造

$\gamma$ 線スペクトロメトリーに用いられるゲルマニウム半導体検出器は、ゲルマニウム検出器結晶冷却のためのクライオスタットとデュワびん、及び前置増幅器によりなる。その他に検出器しゃへい体、高圧電源、主増幅器、マルチチャンネル波高分析器及びデータ入出力装置などを附加してスペクトロメータシステムを形成する。

図-2. 8にその機器構成の例を示す。

表-2.30 対象核種とその主な特性・計測器 1/2

放射性核種	放出線種区分	半減期	主要放射線MeV(放出率%)	主な生成核反応	計測器*
U-238		$4.47 \times 10^9$ y	$\alpha: 4.197 (77)$ $4.150 (23)$		
Pu-238		87.7y	$\alpha: 5.456 (71.5)$ $5.499 (28.5)$	$Np-238 \xrightarrow{\beta^-}$ $Cm-242 \xrightarrow{\alpha}$	
Pu-239	$\alpha$ 核種 ( $\gamma$ :微弱)	$2.413 \times 10^4$ y	$\alpha: 5.157 (73.3)$ $5.144 (15.1)$ $5.105 (11.5)$	$Np-239 \xrightarrow{\beta^-}$	SSB
Pu-240		6570y	$\alpha: 5.168 (73.5)$ $5.124 (26.4)$	$Pu-239 (n, \gamma)$	
Cm-242		162.8d	$\alpha: 6.069 (26.2)$ $6.113 (73.8)$	$Am-242 \xrightarrow{\beta^-}$	
Cm-244		18.1y	$\alpha: 5.763 (23.6)$ $5.805 (76.4)$	$Am-244 \xrightarrow{\beta^-}$	
H-3		12.3y	$\beta^-: 0.0186 (100)$	$H-2 (n, \gamma)$	LSC
C-14		5730y	$\beta^-: 0.1561 (100)$	$N-14 (n, p)$ $C-13 (n, \gamma)$	
Ni-63		100.1y	$\beta^-: 0.0659 (100)$	$Ni-62 (n, \gamma)$	
Sr-90	$\beta$ 核種 (no- $\gamma$ )	29.12y	$\beta^-: 0.546 (100)$ $\rightarrow Y-90$ $\beta^-: 2.279 (99.99)$	$U (n, f)$	LSC又はGFC
Tc-99		$2.13 \times 10^5$ y	$\beta^-: 0.291 (100)$	$U (n, f)$ $Mo-99 \xrightarrow{\beta^-}$	
Co-60		5.271y	$\beta^-: 0.3179 (99.92)$ $\gamma: 1.173 (100)$ $1.333 (100)$	$Co-59 (n, \gamma)$	
Ru-106 (Rh-106)		368y	$\beta^-: 0.0394 (100)$ $\rightarrow Rh-106$ $\gamma: 0.512 (19.0)$ $0.622 (9.8)$	$U (n, f)$	
Ce-144		284.3d	$\beta^-: 0.316 (75.8)$ $\gamma: 0.134 (11.1)$	$U (n, f)$	
Ru-103		39.4d	$\beta^-: 0.225 (87.1)$ $\gamma: 0.497 (90.1)$	$U (n, f)$	
Sb-125		2.77y	$\beta^-: 0.302 (40.2)$ $\gamma: 0.428 (29.6)$	$Sn-124 (n, \gamma)$	

表-2.30 対象核種とその主な特性・計測器 2/2

放射性核種	放出線種区分	半減期	主要放射線MeV(放出率%)	主な生成核反応	計測器*
Zr-95	$\beta$ ・ $\gamma$ 核種	64.0d	$\beta^-$ : 0.366 (54.7) $\gamma$ : 0.757 (54.6) 0.724 (43.1)	$U(n, f)$	Ge
Nb-95		35.0d	$\beta^-$ : 0.160 (99.96) $\gamma$ : 0.766 (99.8)	$Zr-95 \xrightarrow{\beta^-}$	
Cs-134		2.06y	$\beta^-$ : 0.658 (70.1) $\gamma$ : 0.605 (97.6)	$Cs-133(n, \gamma)$	
Cs-137		30.0y	$\beta^-$ : 0.511 (94.6) $\gamma$ : 0.662 (85.0)	$U(n, f)$	
I-129		$1.57 \times 10^7$ y	$\beta^-$ : 0.150 (100) $\gamma$ : 0.040 (7.50)	$U(n, f)$	LSC又はGe
Am-241	$\alpha$ ・ $\gamma$ 核種	432y	$\alpha$ : 5.486 (85.2) $\gamma$ : 0.060 (36.0)	$Pu-241 \xrightarrow{\beta^-}$	SSB又はGe

\* SSB: 表面障壁型シリコン半導体検出器

LSC: 液体シンチレーションカウンタ

Ge: ゲルマニウム半導体検出器

GFC:  $2\pi$ ガスフローカウンタ

## しゃへい体

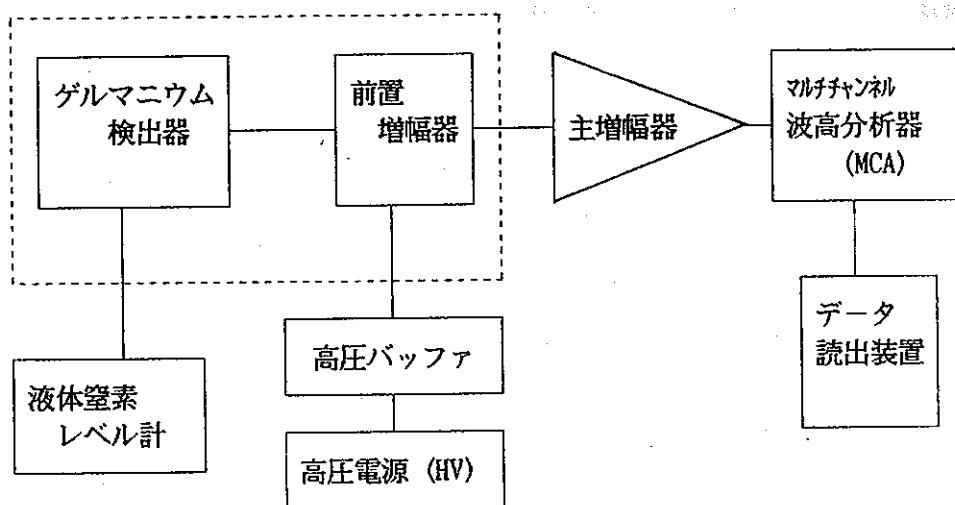


図-2.8 Ge- $\gamma$ 線スペクトルメータ機器構成

### b. 原理

半導体検出器は、その動作原理が気体の電離箱に類似していることから、固体の電離箱と呼ばれることがある。気体の電離箱では、荷電粒子の入射によって気体中に生じた電化担体（電子と陽イオン）が電極間につくられた外部電場によって移動して電極に電荷出力を誘起する。同じようく半導体検出器では、半導体結晶中に生じた電化担体（電子と正孔）が結晶に加えられた電場によって移動し、電極に電荷を誘起してから信号をつくる。したがって固体電離箱として必要な条件は、結晶中における電荷担体の移動が大きく、また寿命が長いこと、さらに十分な強さの電場をつくることができることなどである。

さらに $\gamma$ 線検出器として必要な条件は、 $\gamma$ 線の相互作用が大きいこと、すなわち大きな結晶であること、原子番号が大きいほど良いことなどである。

$\gamma$ 線スペクトルの一例を図-2.9に示す。

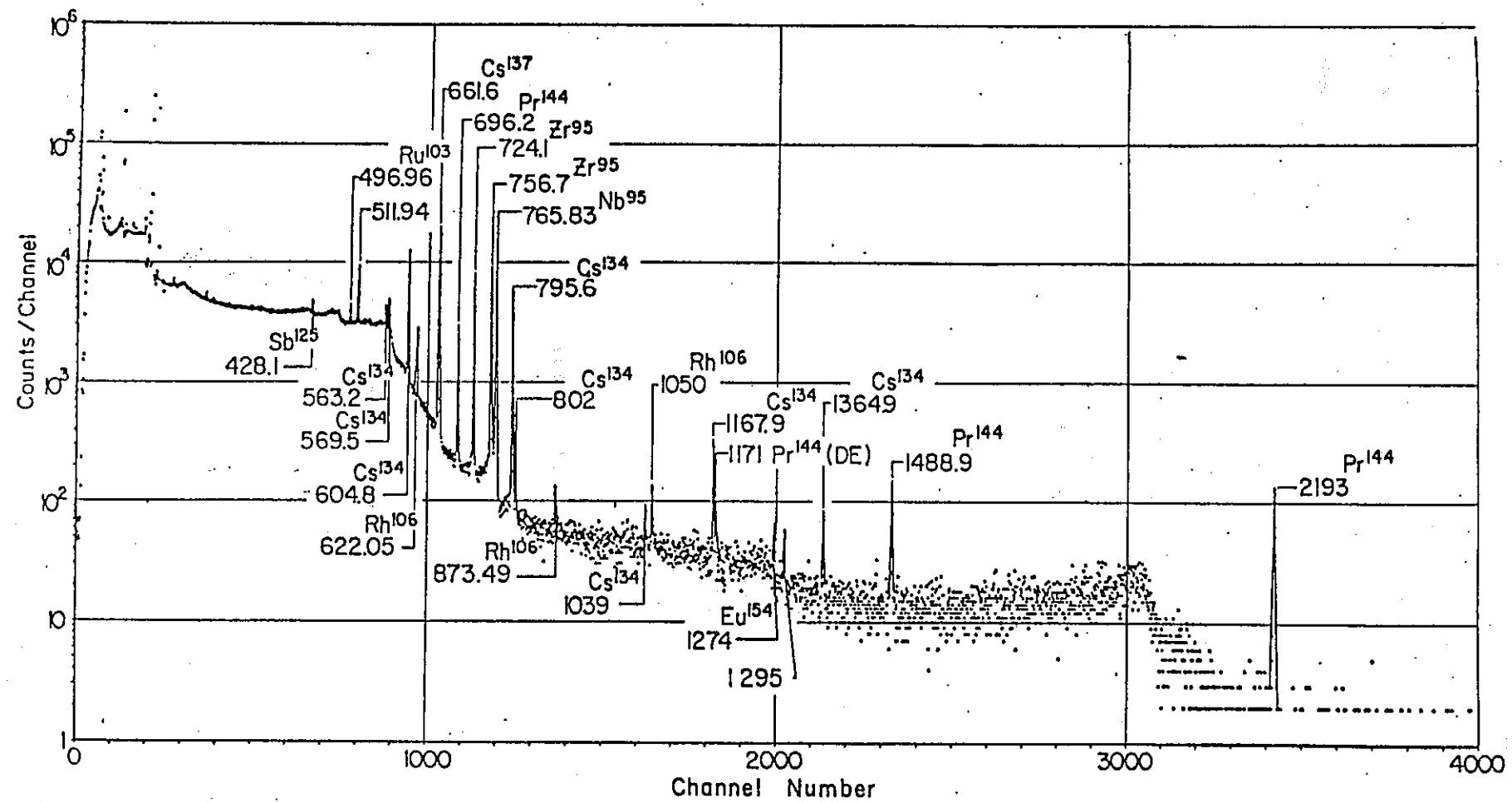


図-2.9 核分裂生成物のガンマ線スペクトル。 $^{235}\text{U}$ を燃焼率50%まで照射し、  
250日冷却したもの。

## (2) 表面障壁形シリコン半導体検出器 (SSB)

### a. 構造

$\alpha$ 線スペクトロメトリーに用いられる表面障壁形シリコン半導体検出器は、シリコン検出器と線源を真空とするための真空ポンプ及び前置増幅器よりなる。その他バイアス電源、主増幅器、マルチチャンネル波高分析器およびデータ入出力装置などを付加して、スペクトロメータシステムを形成する。

下図-2.10にその機器構成の例を示す。

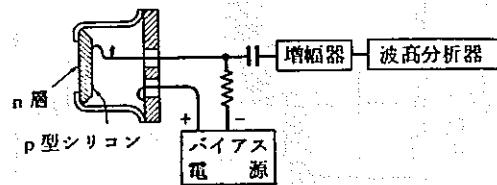


図-2.10 シリコン半導体検出器 機器構成

### b. 原理

$\alpha$ 線粒子のような重荷電粒子の計数およびエネルギー測定に、シリコン半導体検出器が用いられる。空乏層の厚さは、 $100 \mu\text{m}$ 程度であるが、これは通常の $\alpha$ 放射体からの $\alpha$ 粒子の飛程に比べて十分大きい。

空乏層：P型シリコン単結晶の片側にリチウム等をドリフトさせ、いわゆる整流作用をもたせ、整流方向と逆方向に電圧（バイアス電圧）をかけることによって電離箱内の気体と同じ働きをする空間を空乏層という。

### (3) 液体シンチレーションカウンタ

液体シンチレーション測定法では、測定すべき放射性物質を直接液体シンチレータ中に溶かしこんで内部試料計数法を行うために H-3 及び C-14などの低エネルギー $\beta$ 線を効率よく測定することが出来る。一般的な放射線測定法と比較すると液体シンチレーション測定法は、次のような長短所がある。

#### 長所

- 通常、試料自体の自己吸収を無視でき、さらに試料—検出体間の吸収が存在しない。
- 4π計数が可能である。

#### 短所

- 測定試料あるいは、混入不純物などによるクエンチング（消光作用）が生じて計数効率が減少する。

- 試料によっては、ケミルミネッセンスが発生する場合がある。

液体シンチレーション計数装置は、低エネルギー $\beta$ 線の測定には、特に効果的な装置であるが、純 $\alpha$ 線、 $\beta-\gamma$ 線、内部転換電子、オージェ電子、チレンコフ光などの測定にも適用される。

#### a. 構造

##### 液体シンチレーション計

数装置は、液体シンチレータにより発せられる可視光を検出する光電子増倍管とそれから雑音を除去するための同時計数回路、その他增幅器、波高分析器等からなり、一部のものは試料を冷却できるよう冷蔵機器を有する。

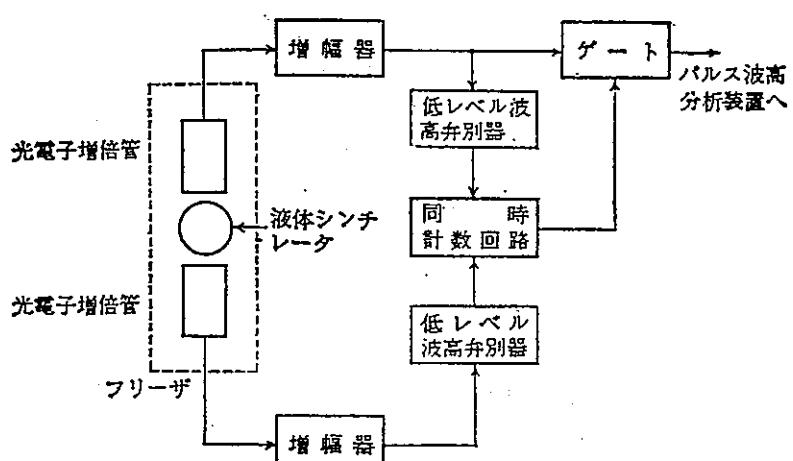


図-2.11 液体シンチレーション計数装置の機器構成

図-2. 11に液体シンチレーション計数装置の機器構成を示す。

b. 原理

放射線における蛍光体の発光現象を利用した測定器で蛍光体にPPO(一次蛍光体)やPO-PPOP(二次蛍光体)が用いられる。

蛍光体は、その溶質分子の化学名が複雑なので通常略号を用いている。図-2. 12に化学名の略号と対応する溶質構造を示す。また、液体シンチレーションに使用される溶質の種類と特性について表-2. 31に示す。

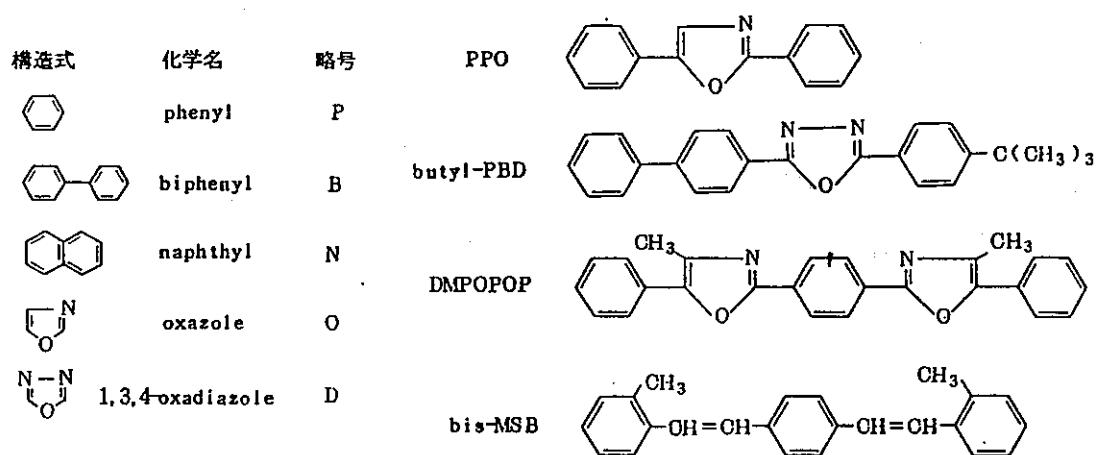


図-2. 12 化学名の略号及び対応する溶質の分子構造

C-14, H-3のような低エネルギー $\beta$ 線試料を溶解すると、試料から放出された $\beta$ 線は溶媒に吸収されて、エネルギー損失を起こす。このエネルギーは、一次蛍光体を励起して紫外線(330nm~380nm)を放出するが、光電子増倍管の分光感度域と合致しないため、この紫外線でさらに二次蛍光体を刺激することにより約440nm程度の可視光線に変換する。このように検出可能な波長域として測定する。

表-2. 31 液体シンチレーションに使用される溶質

溶 質	吸 収 スペクトル $\lambda_{\text{max}}^*$	発光スペクトル		使用濃度 ( g / l )	シンチレー ションの 減衰時間(ns)
		$\lambda_{\text{max}}^*$	$\lambda_{\text{mean}}^{**}$		
第1溶質 PPO butyl-PBD	303.0	364.0	370.3	4~7	1.6
	307.0	367.0	-	~12	1.2
第2溶質 DMPOPOP bis-MSB	363.0	429.0	427.3	0.2~0.5	1.5
	347.0	412.0	421.9	~0.5	1.3

\* 最大値を与える波長 (nm)

\*\* 平均値を与える波長 (nm)

参考文献：（略）

### C. クエンチング

液体シンチレーション測定の際に最も考慮を要するのは、クエンチングの現象である。クエンチングは、液体シンチレータのエネルギー移行過程におけるエネルギー損失に起因するもので、クエンチャーハーの存在により下記の過程にしたがって最終的に計数効率の減少をまねく。

①エネルギー移行の際にエネルギー損失が生ずる。

②溶質から放出される光子数が減少したり、あるいは発生した光子の一部が溶液中で吸収される。

③光電子増倍管から取り出される電気的パルス波高が低下する。

④パルス波高分布が低波高側に変位する。

⑥測定可能領域におけるパルス数が減少するため計数効率が低くなる。

クエンチャーハーとしての強弱は、物質によって異なり表-2. 32に示すように分類出来る。

クエンチングは、①化学クエンチング②色クエンチング③酸素クエンチング④濃度クエンチングに分類される。これらのうち、化学クエンチングと色クエンチングが重要である。

表-2. 32 クエンチャーの強弱の分類

弱いクエンチャー	塩化水素、エーテル、エステル、アルコール、水、フッ化物、シアン化合物
中程度のクエンチャー	ケトン、臭化物
強いクエンチャー	ヨウ化物、アミン類、アルデヒド、フェノール、ニトロ化合物

#### (4) ガスフローカウンタ

##### a. 構造

$\beta$ 線計数装置に用いられるガスフローカウンタは比例計数管（試料室）、前置増幅器及び増幅器、さらに波高分別器と計数回路、PRガス供給系からなる。図-2. 13にその機器構成の例を示す。

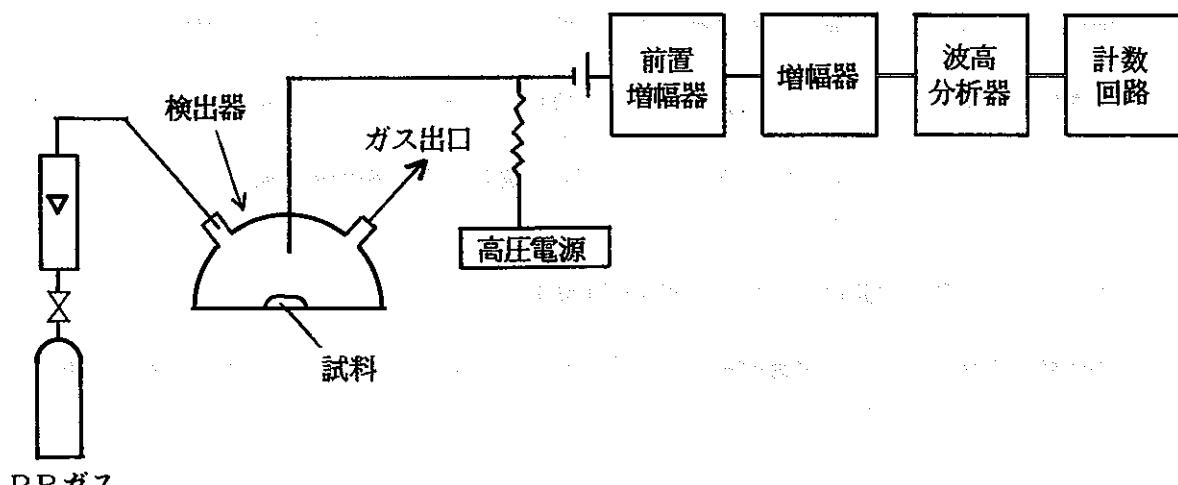


図-2. 13 ガスフローカウンタの機器構成

##### b. 原理

低エネルギーの $\beta$ 線や $\alpha$ 線を計測する際は、端窓型計数管の窓及び窓と試料間の空気層による吸収が大きくなつて計数効率が低く計測できない。このためPRガス（アルゴンとメタンの混合物）を大気中で検出器内に流し比例計数管領域（放射線が計数管内のガスを電離して作った電子の数と、計数管からの出力パルスが比例関係にある状態）で作動させ $\beta$ 線を検出する。

この場合、 $\beta$ 線と $\alpha$ 線の双方が検出されるため、必要に応じA1板などにより $\beta$ 線のみを検出させ、 $\alpha$ 線+ $\beta$ 線の値から $\beta$ 線の値を差し引く操作を必要とする。

## 2-3 化学的処理方法に関する調査

### 2-3-1 対象試料の前処理方法

対象試料の前処理法（溶液化）として、高分子化合物（アスファルト固化体、エポキシ固化体及びPVC固化体）並びに金属等に関し、以下その種類及び方法について記す。 8.9.35)

前処理には、①試料の粉末化②灰化③溶解④融解⑤抽出等がある。

#### (1) 試料の粉末化

##### a. 高分子化合物の粉末化

熱硬化性樹脂、硬化物、成形材料などの分析を行う場合には、粉末試料の調製が必要になる。

すなわち、表面積を大きくすることにより目的成分の溶解、抽出などの操作が能率よく行いうるし、またサンプリングのかたよりが小さくなり、分析誤差を小さくすることもできる。粉末化の方法としては、一般的に

###### ①スタンプミルによる方法

鉄製の乳ばちの中に試料を入れ、鉄棒の上下運動で粉末化

###### ②のこぎり刃による方法

試料を万力などではさみ固定し、のこぎり刃を15枚ほど重ねたものを用いて、やすりで削るようにして粉末化する。

###### ③乳ばちによる方法

乳ばちを用いた通常法

###### ④フリーザーミル

液体窒素を用いた方法

があり、得られた粉末は、粒度をそろえるために60～80meshぐらいのふるいで分け、十分に混合したのちに分析試料とする。

##### b. 金属の粉末化

金属の場合、直接、酸又はアルカリ剤による溶解、あるいは融解することが望ましい。

## (2) 灰化

灰化には湿式法と乾式法があり、前者は、硫酸、硝酸その他の酸などと共に加熱し、酸化分解する方法であり、後者は加熱燃焼法による方法で

①直火または電気炉で加熱灰化する方法

②酸素プラズマによる低温灰化

の2種類の方法がある。

酸素プラズマによる低温灰化は、高周波利用によりプラズマ状態に励起した酸素を用いて低温で灰化する方法で、Sb, Cd, Zn, Cs, As, Hgなど揮散しやすい無機金属も灰化中に残留する点が一般的の乾式法に無い利点である。

## (3) 溶解法

### a. 高分子有機化合物の溶解法

高分子有機化合物を酸（希硫酸、希リン酸等）によって分解する方法があるが、一般に分解速度が遅く、また分解率も良くない。

### b. 金属の溶解法

金属試料の処理は、一般に酸溶解である。

金属の標準単電位が水素より負の亜鉛、アルミニウム、鉄、クロムなどは、非酸化性の塩酸、希硫酸などに容易に溶解するが、ニッケル、コバルトなどは溶解が非常におそく酸化剤の添加が必要なものもある。水素より正の銅、銀、水銀、などは硫酸や王水、又は塩酸と過酸化水素水、臭素、塩素酸塩などを混合すると容易に溶解することができる。

硝酸は、多くの非鉄金属を溶解する最適の酸であるが、アルミニウム、クロムなどは表面に酸化被膜を生成し、不動態化して溶解が出来なくなり、スズ、アンチモン、タンクステンなどは難溶性の酸化物を生成する。

このように金属試料の溶解は、単純には行えない。

溶解に用いられる試薬の特徴を以下に示す。

### ①硫酸

主として脱水作用、アルカリ土類が多量に存在する試料では硫酸塩の沈澱が生じこの際鉛が共沈しやすい。

### ②硝酸

酸化作用がある。たん白の分解に良い。炭化水素、脂質の分解が劣る。過酸化水素と共に用いると良い。

### ③過塩素酸

熱時強力な酸化作用があり、有機物の存在で爆発の危険性があるので硝酸と共に用いられる。

### ④塩酸

単独では酸化力がない。過酸化水素と共に用いる。

### ⑤過酸化水素

酸化剤として、または還元剤として用いられる。加熱によって消失するので、あとの処理に都合がよい。

対象核種の固化体中の存在形態は不明であるが、前処理（固化体の灰化あるいは溶解・抽出）によって対象核種が酸化をうけ、不動態化するものもある。たとえば、Ru、Nb、Zr、Sbなどであり酸化を受けた核種は酸にはほとんど不溶である。このためこのような金属は、アルカリ溶融を行う方法がある。また、アルカリ溶融の場合、水に溶かすとアルカリ性となり、対象核種の分析操作でイオン交換分離を行う場合障害がある。アルカリ溶融後の溶液を酸溶液とすると、ここでまた酸化をうけ不動態化することになるので、このような金属の場合は塩酸ヒドロキシルアミン等の還元剤を入れた酸により、液性を調製する必要がある。

## (4) 融解法

### a. 金属ナトリウム法

金属ナトリウムと試料を加熱溶解したのち、融解物を水に溶解して試料液とする。

b. 炭酸ナトリウム法

炭酸ナトリウム、炭酸カリウムを試料と共に白金ルツボ中で加熱溶解し、冷却後水を加えて水溶液とする。その他融解剤として水酸化ナトリウム、水酸化カルシウム、塩化アンモニウムなども使用される。

c. フラスコ燃焼法

吸収液を入れたフラスコに、酸素を満たし試料を燃焼させる。燃焼ガスを吸収液に吸収させて試料液とする。

(5) 抽出法

固化体中の対象核種が、なんらかの塩化物で存在していると考えられる場合、本法が適用できる。高分子化合物が対象となる。

a. ソックスレー抽出

目的物の溶解度が小さく抽出速度が遅いため多量の溶媒で長時間抽出する必要がある場合に用いられる。

抽出溶媒を全還流蒸留させ、コンデンサ下部に試料を入れた円筒型ろ紙を設置して塩を抽出する。抽出する器具は一般に市販されている。

試料中の対象核種の存在形態が不明であるため、抽出回収率に問題がある。

b. 一般浸漬抽出

共栓付き三角フラスコ又はビーカー中で超音波洗浄器、マグネットスターラなどを用いてかき混ぜて抽出する。

c. 分別法

アセトン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン等により溶解し、加圧ろ過器、吸引ろ過器等を用いて固化体中の塩を抽出する。

## 2-3-2 対象核種の分離方法

分析化学的あるいは放射化学的な核種分離方法としては、次のような方法が上げられる。

- ① イオン交換法 : キレート樹脂による錯体形成分離  
イオン交換樹脂による吸着・分離  
無機イオン交換体による吸着・分離
- ② クロマトグラフ法 : 液体クロマトグラフィー  
分配クロマトグラフィー  
電気泳動方法  
ガスクロマトグラフィー 他
- ③ 溶媒抽出法
- ④ 蒸留分離法
- ⑤ 沈澱・共沈法

### (1) イオン交換法

放射性核種の分離及び精製の目的でイオン交換樹脂法は、多方面に利用されている。とくにアクチノイドの分離は、極めて多くの研究報告があり実用されている。<sup>3, 4, 5, 8, 10, 15, 23, 24, 29, 38, 40, 41, 42, 45)</sup>

陽イオン交換体及び陰イオン交換体によるアクチノイドの分離方法の代表的なものを表-2.

33～表-2. 36に示す。

Uに関しては陽イオン交換体・陰イオン交換体ともに有効であるが、とくにHCl系陰イオン交換樹脂による分離は共存マトリックス、共存核種との分離性の点で有効である。

Puに関してはHCl系、HNO<sub>3</sub>系の陰イオン交換樹脂による分離法が有効であり、いずれの方法でもPuを3価に還元して分離溶離する。

Amに関しては、陰イオン交換樹脂では有効な分離方法が少ないが、溶液系でLiCl溶離液を用いた分離 (Am、Cm、 Cf等の超プルトニウム元素の分離) 法がある。一方、陽イオン交換樹脂法ではHCl系、HClO<sub>4</sub>系とともに有効な分離方法である。その他一般金属類のイオン交換樹脂分離に関してはアクチノイド同様に陽イオン交換体、陰イオン交換体とともに種々の方法

がある。代表的な分離方法のフローシートを図-2. 14～2. 15に、また各種溶離液における容量分布係数( $D_v$ )図を図-2. 16～図-2. 18に示す。

一般金属の中ではRu・Sb等の核種について価数調整を行わなくてはならないと共に、特にRuについてはニトロシル錯体の形態のままイオン交換分離することはその化学的挙動の複雑さから難しい。

表-2. 33 陽イオン交換体によるアクチノイドの分離

No.	核種	分離	陽イオン交換体	溶離液
1	U (VI)	Biを除く全ての金属イオン	Dowex 50-X8	90%トリヒドロフラン 10%6N-HNO <sub>3</sub> (U)
2	U (VI)	R. E, Se, Y, Tr Al, Ga, Fe (II, III) Mg, Mn (II), Ni Cu (II), Zn, Cd	Dowex AG 50W-X8	1N H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> (U)
3	U (VI)	R. E (レアエлемент)	Amberlite IR-120	(a) 1N HCl (U) (b) 1.68N HCl (R. E)
4	U (VI)	Pu (III)	Dowex 50	1.5N HNO <sub>3</sub> (U)
5	U (VI)	Fe (III)	Lewatit S100	0.8N HCl (U)
		Cu (II)	Lewatit S100	0.6N HCl (U)
6	U (VI)	Fe, Tr, La	ジノルカタレン含浸紙	0.5N HCl (U)
7	U (VI)	Fe (III), Th, Ti	リン酸Zr含浸紙	(1+1) 2N·HCl+4M·NH <sub>4</sub> Cl (U)
8	Pu (IV)	U&F. P	リン酸Zr	(a) 0.5N·HNO <sub>3</sub> -0.02M·NaNO <sub>2</sub> (U, FP除去) (b) 8N·HNO <sub>3</sub> (Pu)
9	Pu (IV)	U&F. P	シリカゲル	4.5N HNO <sub>3</sub> (Pu)
10	Trans Pu	各Trans Pu	Dowex 50-12	0.4M-αヒドロキシイソブチル アンモニウム
11	Trans Pu	各Trans Pu	Dowex 50	pH3.5 クエン酸アンモニウム
12	Trans Pu	R. E	Dowex 50 Zeocarb 225	13N HCl
13	Cm (III)	La	Dowex 50-X12	13N HCl (Cm)
14	Am (III)	Pm (III)	Dowex 50	12~13N HCl (Am)
15	Am (III)	Ce (III)	Dowex 50-X12	1M 乳酸-乳酸アンモニウム pH3.1~3.0 (Am)
16	Am (VI)	Cm (III) 3価アクチノイド・ランタノイド	CaF <sub>2</sub> カラム	フッ化物溶液 (Am(VI), Pu(VI))

表-2. 34 陰イオン交換体によるアクチノイドの分離 ( $H_2SO_4$ 溶液)

No	核種	分離	陰イオン交換体	溶離液
1	U(VI)	U鉱石	Amberlite IRA-400	(a) dil $H_2SO_4$ , pH 1.0~1.5 (共存金属イオン除去)
2			Duolite A-101	(b) 熱 1M HClO <sub>4</sub> (U)
3	U(VI)	R.E., アルカリ及びアルカリ土類 Zn, Mn, Ni, Cd Co, Cu, Fe	Anionite EDE-10P	(a) dil $H_2SO_4$ , pH 1.0~1.5 (共存金属イオン除去)
4			Dowex 1	(b) 3% $NH_4NO_3$ + 5% $HNO_3$ (U)
4	U(VI), Th Pa, Zr	R.E., Am	Dowex 1 (2)	0.1N $H_2SO_4$ (R.E, Am)
5	U(VI)	R.E	Dowex 1-X8	0.5% $H_2SO_4$ (R.E)
6	U(VI), Th	Eu	Dowex 1	(a) 0.2N $H_2SO_4$ (Eu)
				(b) 0.8N $H_2SO_4$ (Th)
				(c) 3N $H_2SO_4$ (U)
7	U(VI)	U濃度 0.02~0.4 mg U/ml	Dowex 2	(a) dil $H_2SO_4$ pH 2 (不純物除去)
				(b) 1.2N HCl (U)
8	U(VI)	高純度U試料中の不純物	Dowex 1	dil $H_2SO_4$ pH 1.5 (不純物除去)

表-2. 35 陰イオン交換体によるアクチノイドの分離 (HCl溶液) 1/2

No	核種	分離	陰イオン交換体	溶離液
1	U(VI)	鉄鋼, 鉱物, 海水	Dowex 1-×8	(a) 90%メタノール 10% 6N-HCl (不純物除去)  (b) 80% メチレンジコール 20% 3N-HCl (Co, Mn(II), Cu(II))  (c) 1N-HCl (U, Pb)
2	U(VI)	Th, Fe(III), Ni Co, Al, Ti, Zr Cr その他多くの元素	Dowex 1-×8	(a) 80%メタノール 20%6N-HCl アスコルビン酸 (不純物除去)  (b) 1N HCl (U)
3	U(VI)	Th	Dowex 1-×8	(a) 90%メタノール 10%6N-HCl (不純物除去)  (b) 90%メタノール 10%6N-HCl (Th)  (c) 1N HCl (U)
4	U(VI)	Th	Dowex 1-×8	(a) 90%セトン 10%6N-HCl (不純物除去)  (b) 6N HCl (Th)  (C) 1N HCl (U)
5	U(VI)	Fe	Amberlite CG-400	(a) 5N HCl+アスコルビン酸 (Fe)  (b) 0.5N HCl (U)
6	U(VI)	Fe, Pu, Al	De-Acidite FF	(a) 10~11N HCl+HI (Fe(II), Pu(III), Al除去)  (b) 0.1N HCl (U)
7	U(VI) Pu(IV) Np(IV)	R.E, trans-Pu, Th Ti, Zr	De-Acidite FF	(a) 9N HCl (R.E, Trans-Pu, Th, Ti Zr 除去)  (b) 9N HCl+NH4I (Pu(III))

表-2. 35 陰イオン交換体によるアクチノイドの分離 (HCl 溶液) 2/2

No.	核種	分離	陰イオン交換体	溶離液
8	U (VI)	環境試料	Dowex AG 1-X 8	(c) 3N HCl (Np) (d) 0.25N HCl (U) (a) 8N-HCl (不純物除去) (b) 1N-HCl (U)
9	U (VI)	Th, Pa, U (IV)	Dowex 1	(a) 10N HCl (Th) (b) 9N HCl 1N HF (Pa) (c) 3N HCl (U(IV)) (d) 0.1N HCl (U(VI))
10	Np (IV)	Pu (III)	De-Acidite FF	(a) NH <sub>4</sub> I飽和12N HCl (Pu(III))
11	Pu (III)	Np (IV), U (VI)	Dowex 1	(a) 9N HCl+SO <sub>2</sub> (Pu(III)) (b) 6N HCl (Np(IV)) (c) 1N HCl (U(VI))
12	3価 Trans-Pu		Dowex 1	10or8.5M LiCl (Am, Cm, Cf)

表-2. 36 陰イオン交換体によるアクチノイドの分離 ( $HNO_3$ 溶液) 1/3

No.	核種	分離	陰イオン交換体	溶離液
1	U (VI)	鉱物	Amberlite IRA-400	(a) $NH_4NO_3$ 弱酸性溶液 (共存元素の除去)  (b) 1:9 $HNO_3$ (U)
2	U (VI)	多量他元素より	Dowex 1	(a) 2M 硝酸Al または3.5M硝酸Ni溶液 <0.1N $HNO_3$ 溶液> (共存元素の除去)  (b) $NaNO_3$ 飽和 0.1N $HNO_3$ (Al, Niの除去)  (c) 0.1N $HNO_3$ (U)
3	U (VI)	Th, Bi	Dowex 1- $\times$ 8	(a) 96% n- $7^{\circ}$ ロハル 4% 5N $HNO_3$ (共存元素の除去)  (b) 80%メタノール 20%5N $HNO_3$ (U)  (c) 80%メタノール 20%6N HCl (Th)  (d) 1N $HNO_3$ (Bi)
4	U (VI)	Th, R.E., etc (群分離)	Dowex 1- $\times$ 8	(a) 90~95% n- $7^{\circ}$ ロハル (Sc, Al, Ga, In, Fe, V, Mo)  (b) 90~95%メタノール 10~5%5N $HNO_3$ (U, Y, R.E., (Gd-Lu))  (c) 0.5~0.25N $HNO_3$ (Th, R.E., (La~Eu))
5	U (VI)	Th, R.E., etc (群分離)	Dowex 1- $\times$ 8	(a) 90%酢酸 10%5N $HNO_3$ (Sc, Cu, Mg, Ca, Sr, Zn, Al Al, Ga, In, Ti, Zr, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni)  (b) 1N $HNO_3$ (U, Th, Cd, Pb, Bi, R.E.)

表-2.36 陰イオン交換体によるアクチノイドの分離 ( $\text{HNO}_3$ 溶液) 2/3

No.	核種	分離	陰イオン交換体	溶離液
6	Pu (IV)	共存金属イオン Am (III)	Dowex 1	(a) 7.2N $\text{HNO}_3$ (共存金属イオン Am(III))  (b) 0.35N $\text{HNO}_3$ (Pu)
7	Pu (IV)	不純物	De-Acidite FF	(a) 8N $\text{HNO}_3$ (不純物除去)  (b) 0.1% 塩酸ヒドロキシルアミン (Pu(III))
8	Pu (IV)	照射U	Dowex 1- $\times$ 8	(a) 7N $\text{HNO}_3$ (U, FP)  (b) 0.3N $\text{HNO}_3$ & 5% 塩酸ヒドロキシルアミン (Pu(III))
9	Pu (IV)	全元素	Dowex 1- $\times$ 2	(a) 7.2N $\text{HNO}_3 + \text{H}_2\text{O}_2$ (共存元素除去)  (b) 0.36N HCl-0.01N HF (Pu(IV))
10	Pu (IV)	硫酸Pu中の不純物 Pu中のAm	Dowex AG 1	(a) 8N $\text{HNO}_3$ (不純物, Am)  (b) 0.35N $\text{HNO}_3$ (Pu(IV))
11	Pu (IV)	Np, Am	Dowex 1	(a) 8N $\text{HNO}_3$ (Am(III))  (b) 0.02M ルフェニン酸鉄(II) 4.5N $\text{HNO}_3$ 溶液 (Pu(III))  (c) 0.001M Ce(IV) 硫酸塩 0.25N $\text{HNO}_3$ 溶液 (Np(IV))
12	Pu (IV)	Th, Np, Am	Dowex 1	(a) 8N $\text{HNO}_3$ (Am(III))  (b) 12N HCl (Th)  (c) 12N HCl 0.1M $\text{NH}_4\text{I}$ (Pu(III))  (d) 4N HCl (Np)
13	Np (IV)	Pu, U, Am, Cm F, P	Dowex 1- $\times$ 4	(a) 8N $\text{HNO}_3$ -ルフェニン酸鉄(II) セミカルバジド

表-2. 36 陰イオン交換体によるアクチノイドの分離 (HNO<sub>3</sub>溶液) 3/3

No.	核種	分離	陰イオン交換体	溶離液
14	Np (IV)	不純物	Dowex 1-X4	還元剤含有4.5N HNO <sub>3</sub> Pu(VI), U(VI), Am(III) Cm(III), FP  (b) 0.005M Ce(IV)硫酸塩 (Np(VI))
15	Am (III)	Cm (III)	Dowex 1-X8	(a) 7~8N HNO <sub>3</sub> ヒドロジン 及びスルファミン酸含有 (不純物除去)  (b) 0.35N HNO <sub>3</sub> (Np(IV)) 8MLiNO <sub>3</sub> 20%メタノール (Cm → Am)

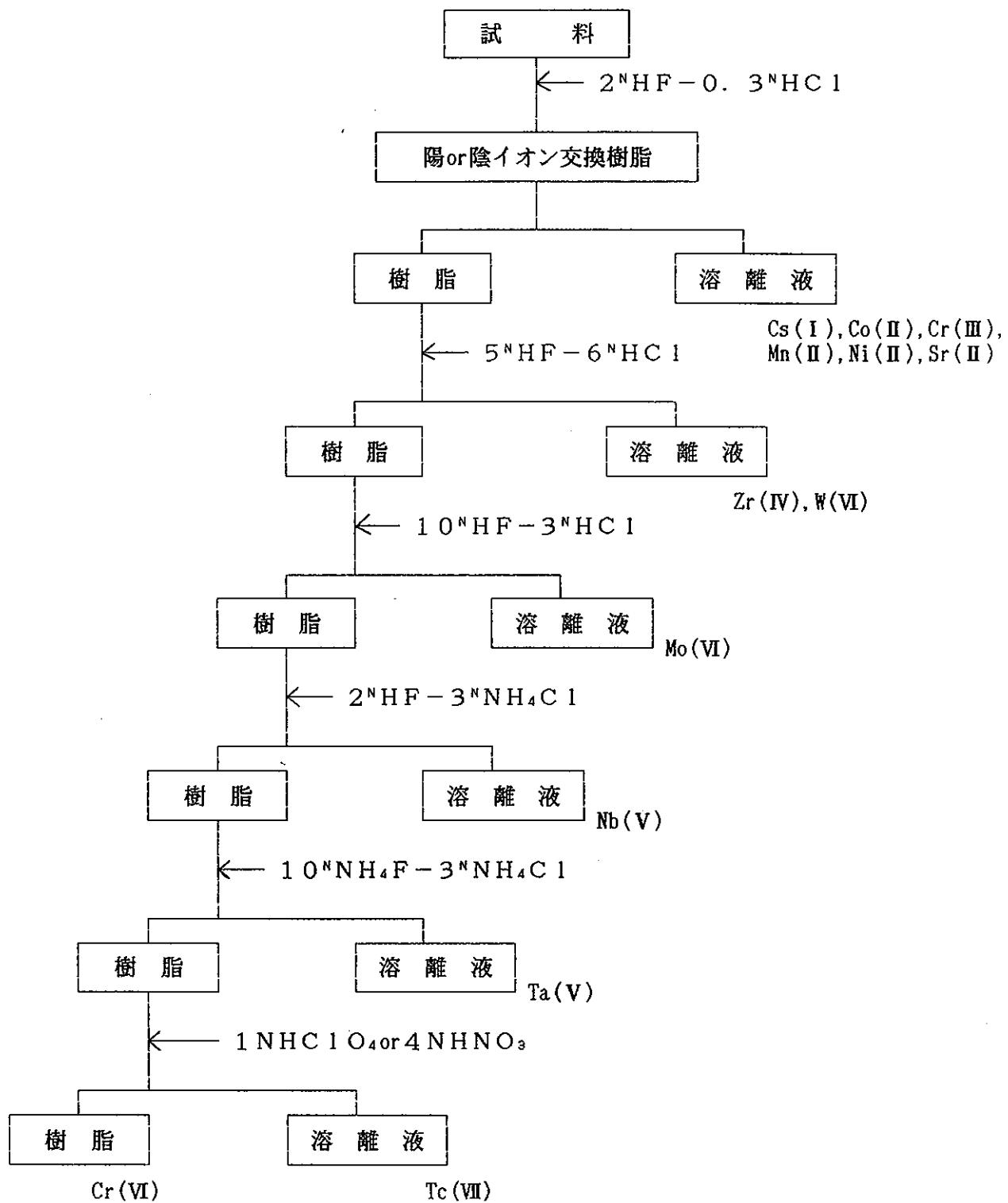


図-2. 14 イオン交換分離のフローシート（代表例-1）  
(HF-HCl系 Gr o u p 分離)

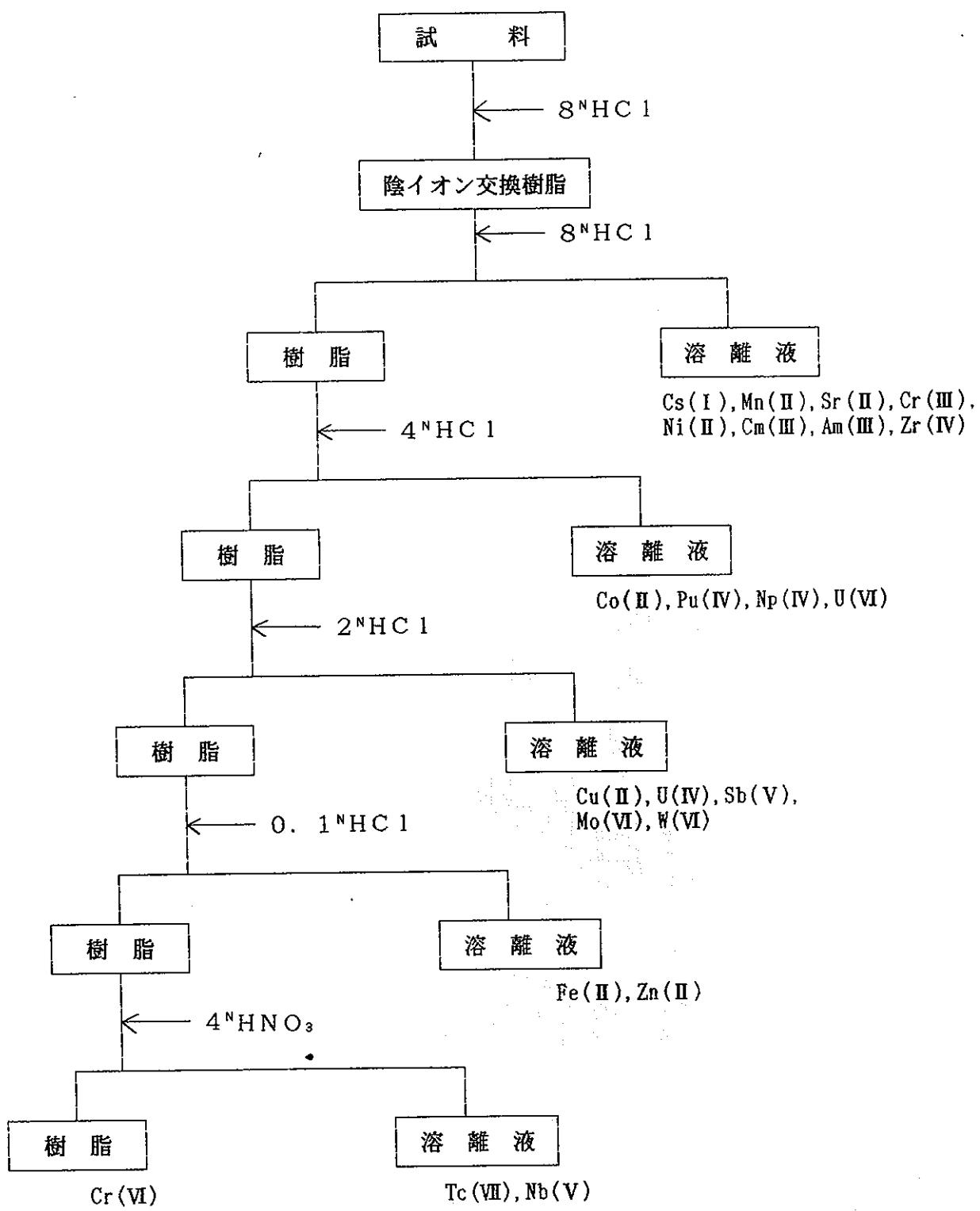


図-2. 15 イオン交換分離のフローシート（代表例-2）  
(HCl系 Group 分離)

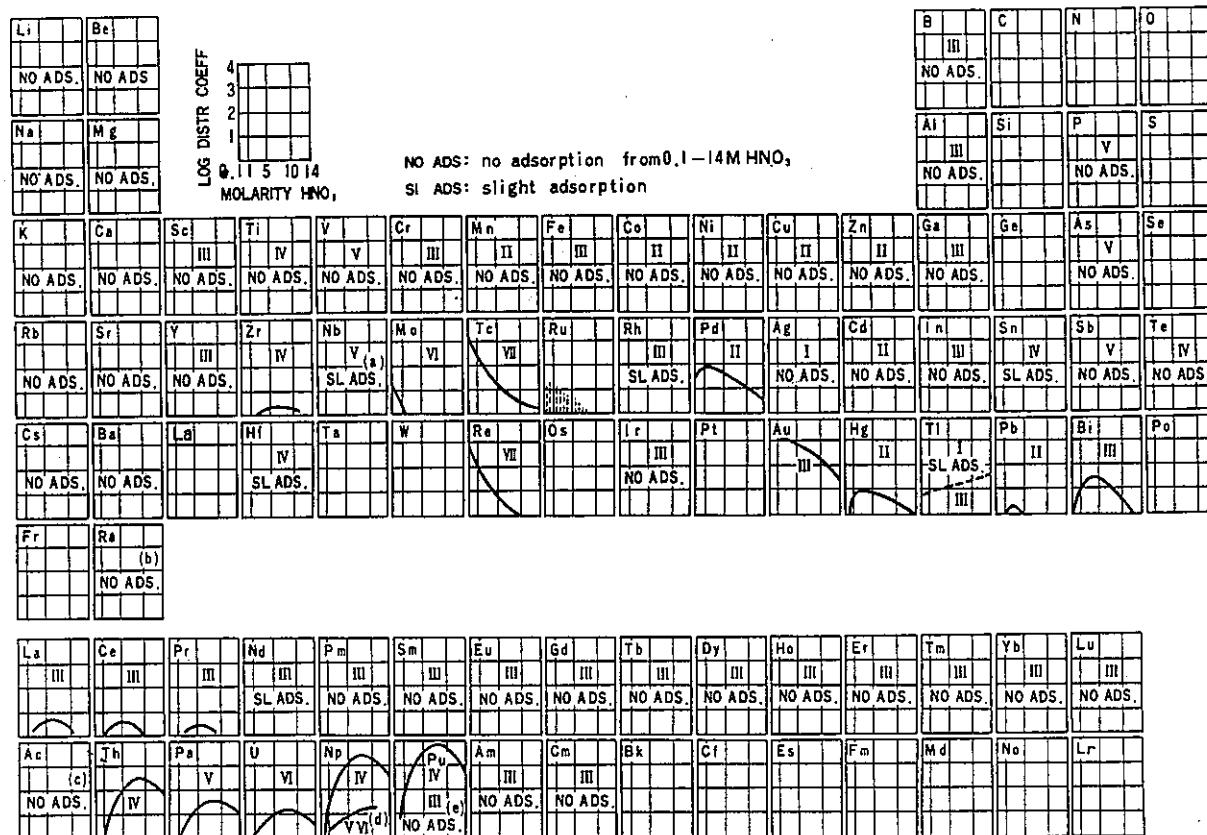


図-2.16 硝酸溶液における陰イオン交換樹脂による元素の吸着

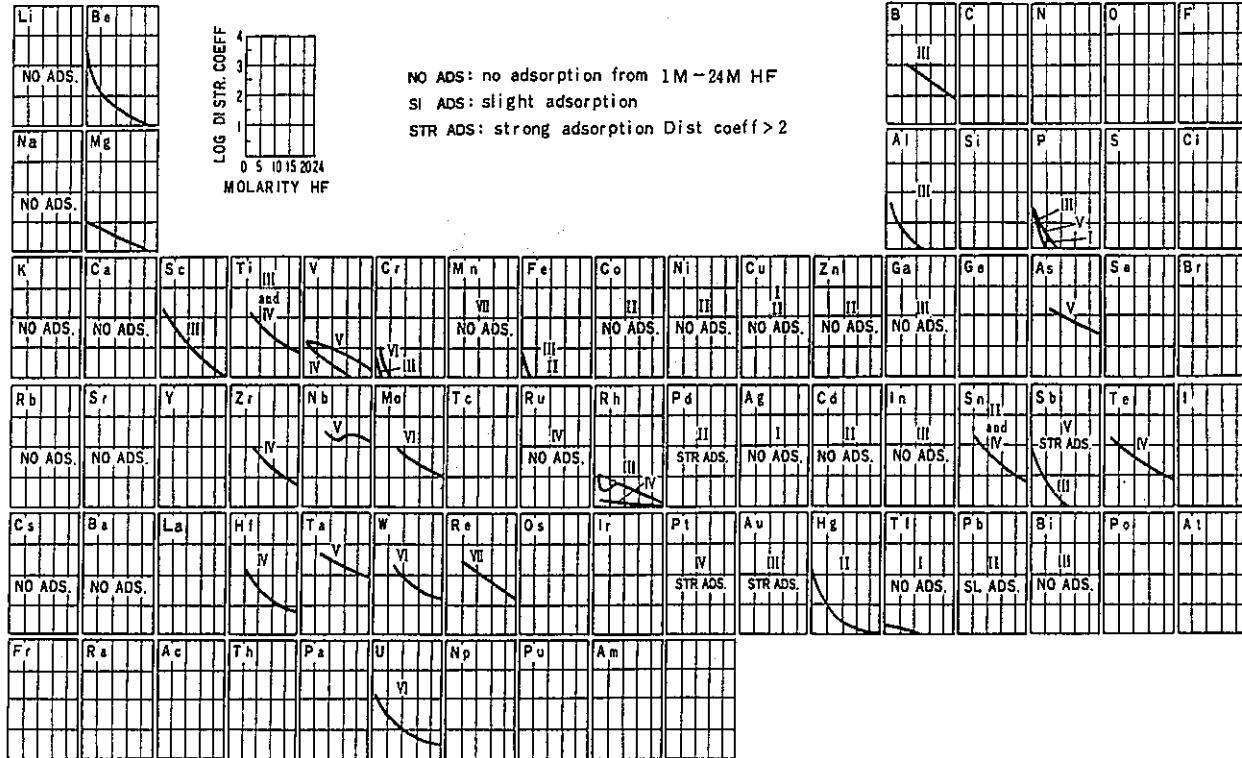


図-2.17 フッ酸溶液における陰イオン交換樹脂による元素の吸着

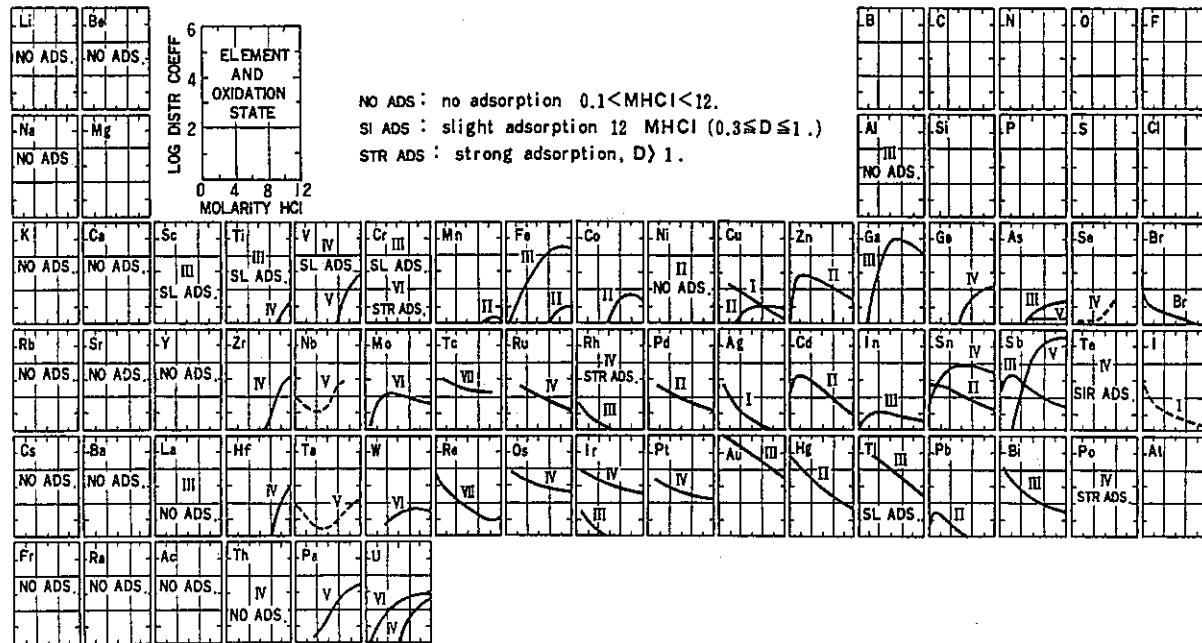


図-2. 18 塩酸溶液における陰イオン交換樹脂による元素の吸着

## (2) 溶媒抽出法 2, 8, 10, 16, 20, 23, 24, 36, 40, 47)

溶媒抽出法のうち最も普通に扱われるのは、目的元素を水溶液から有機溶媒相に抽出する液相-液相分配である。

溶媒抽出法は大別してイオン会合系とキレート系に分類できる。イオン会合系は、抽出される化学種がイオンの会合によって生成されるものであり、たとえば Fe(III)、Ga(III)、Ta(III)を  $6^n\text{-HCl}$  溶液からエチルエーテルによって抽出する方法、過レニウム酸 ( $\text{ReO}_4^-$ ) 並びに過テクネチウム酸 ( $\text{TeO}_4^-$ ) を塩酸テトラフェニルアルソニウム (TPAC) によりクロロホルムへ抽出する方法が古くから行われている。

一方キレート系は、オキシン、ジチゾン、クペロン、テノイルトリフルオロアセトン等の金属とキレート化合物を作る有機試薬を用いてクロロホルム、四塩化炭素、ベンゼン等により抽出する方法であり、これらも古くから行われている方法である。

抽出操作は、目的とする核種1つだけを選択的に分離するのに有効であり、粗分離、群分離するためには余り用いられない。ただし共存する妨害物質の除去には有効であり、例えば前記した Fe 除去操作等はその例である。

## (3) 沈澱法・共沈法 1, 8, 10, 23, 37, 40)

放射性核種を含む溶液に担体（捕集剤）を加え、この担体を適当な沈澱剤によって沈澱させ、沈澱とともに目的とする放射性核種を随伴捕集する方法（共沈法）がある。この場合目的以外の放射性核種の一部も沈澱に入り、汚染を起こすことがあるので予め溶液内に存在する目的以外の核種の単体（保持担体）を加えておくことが一般的に行われている。

また共沈法が目的とする核種を捕集剤と共に沈澱させるのに対し、目的以外の核種を適当な担体（スカベンジャー）によって沈澱させて除去する方法がある（溶液残留法）。

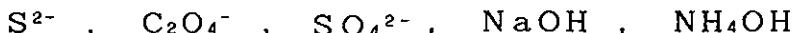
いずれの方法も目的核種を分離するために担体を添加し、分離能を向上させている。

これらの捕集担体としては、通常次のようなものが望ましい。

- 少量で迅速に定量的に目的成分を共沈捕集できること。共沈の多くは表面吸着であるので、この点から比表面積が大きな沈澱作るのがよく、難溶性水酸化物、硫化物などがよく用いられる。

- 共沈澱捕集の後、更に分析操作がある場合は、その操作の妨害とならないものであること。
- 目的成分のみを特異的に共沈澱する担体であること

沈澱剤としては沈澱の溶解度等の関係から次のものがよく用いられる。



共存成分による汚染を防止するためには、沈澱生成時のpH、温度、沈澱剤濃度、添加量、添加速度、熟成、等考慮すべき点が多いが、目的成分の選択性を向上させるためにマスキング剤を添加することがある。

マスキング剤としては、 $F^-$ ,  $Cl^-$ ,  $Br^-$ ,  $SCN^-$ ,  $CN^-$ , 酒石酸, クエン酸, カルボン酸, トリエタノールアミン, 1.10-フェナントロリン, EDTAなど種々存在する。

これらマスキング剤は個々のイオンに対して特異的なものではなく、限られたいいくつかの金属イオンに対し同様な錯体を形成するのが普通である。

アクチノイドからのAm, Csの分離や、Fe, Co等の一般金属からのSr, Ceの分離には、しうう酸が有効である。

しかし、希土類元素がすべて沈澱するため注意を要する。

Csは液性をアルカリにしても沈澱を作らないので水酸化物を生成する金属と分離できる。またNi, Coについてはアンモニア錯体を形成するためアンモニアアルカリとすると他の金属と分離できる。

### 2-3-3 対象核種の単離方法

放射線計測前に行われる核種の単離は、対象核種の精製（クリーンナップ）を意味している。

とくに $\alpha$ 線、 $\beta$ 線を計測しようとしている核種（U, Pu, Np, Am, Cm, Sr, I, Tc, Ni）が対象となる。単離手法としては、前記したイオン交換法、抽出法、沈澱・共沈法等が考えられるが、大きなDF（除去係数）を得るためにには、イオン交換法あるいは抽出法が優れている。粗分離等でイオン交換法を採用している場合は、単離においては抽出法が有効であると考えられる。

以下、各対象核種の抽出単離方法について記す。

アクチノイド系金属一般の溶媒抽出は種々の抽出系で広く行われている。  
2.3, 4, 8, 10, 20, 23,  
24, 36, 37, 40, 41)

TTA（テノイルトリフルオロアセトン）によるアクチノイドの抽出は中性有機リン化合物により顕著な協同効果（金属キレート抽出系における分配比が有機相に他の抽出剤あるいは溶媒を加えることによって著しく増加する現象）を示し、TBP（リン酸トリブチル）よりもTOPO（トリオクチルfosfinオキシド）の方が効果が大であるといわれている。

第3アミンに属するTOA（トリオクチルアミン）-キシレンによる塩酸溶液から4価及び6価のアクチノイド抽出がなされており、特にNp(IV), Pu(IV)がよく抽出されている。

TIOA（トリス（2-メチルヘプチル）アミン）の20%キシレン溶液により $1.2^m\text{LIC1}$ 、 $0.001^m\text{HC1}$ からAm, Cm>Th>Eu, Pm>Ce>Y, Tmの順で抽出されやすい。

第2アミンであるLA-1-ケロシンによるウラン、トリウム、プルトニウムの抽出において、硝酸溶液での分配比がU>Th>Puであり、塩酸溶液ではU>PuでThはほとんど抽出されない。

Amは、その他の希土類元素との分離が困難であるが、分離効果の良い抽出剤はDBP（リン酸ジブチル）やDOP（リン酸ジオクチル）である。DBPによる抽出では、溶媒種によってかなり異なり、n-ヘキサン、CC14、クロロホルム等が有効である。

UのTTAによる抽出は、硝酸溶液からシクロヘキサンを用いてTBPあるいはTBPO（トリブチルfosfinオキシド）の添加による協同効果により抽出される。協同効果はTBPOの

方が大である。N-フェニルベンゾヒドロキサム酸の0.1%クロロホルム溶液は、pH 3.5でU(VI)を抽出する。pH 4.5で抽出するとLaは抽出されないのでU、ThとLaを分離することができる。さらにUはクペロンによっても抽出できる。また、TBPを用いた系では、硝酸ウラニルを含む硝酸-硝酸ナトリウム溶液からTBP-ケロシンで $UO_2^{2+}$ を抽出する。逆抽出には、炭酸アンモニウムまたは炭酸ナトリウムを用いる。その他、水相液性を変えることによってPuあるいはTh等と分離することができる。その他にDEHIPA(リン酸ビス(2-エチルヘキシル)アミン)-ケロシンを用いた方法や、TIOAによる抽出も行われている。

希土類元素はアクチノイド系金属よりも各金属間の性質が似ているので抽出系も希土類金属に共通しているものが多い。したがって希土類元素の分類は困難であることがわかる。一般に希土類元素はTTA、クペロン、TBP、TOPO、DEHIPA、及び第1～第3アミンによって抽出される。アセチルアセトンはCeの抽出に有効である。

Srの娘核種であるYは0.1%TTA-ベンゼンによりpH 6～9で抽出され、このときSrは抽出されない。これと同様にTBPやDEHIPA等の抽出剤が用いられている。

Re及びTcは、TBPに対し低濃度・硝酸系で高分配を示し、Moとの分離が可能である。塩酸系でも同程度の分配を示す。また、塩酸テトラフェニルアルソニウムは、硝酸系(pH 8～9)においてクロロホルムにより $(C_6H_5)_4AsReO_4$ の形態で抽出されMoを水相に残しRe、Tcと分離することができる。

塩酸系でTIOA-キシレン、La-1-キシレン、Primene JM-T-ジエチルベンゼンによりRe、Tcが抽出される。

メチルトリカプリルアンモニウム塩-クロロホルムによりTcは4%H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、9%HClの強酸性溶液あるいは弱アルカリ溶液(pH 13)で抽出される。Reも同様に抽出されるがHClO<sub>4</sub>を用いるとTcのみ抽出しReと分離できる。

Niの単離については、ジメチルグリオキシム-クロロホルム(キシレン)によって抽出され、単離することができる。

Iの単離についてはヨウ素を酸化し、四塩化炭素で抽出するのが一般的に行われている方法で

あり、抽出効率もよい。

## 2-4 まとめ

基礎調査として対象試料・対象核種の化学的特性並びに基礎的物性を記すとともにそれらの分析化学・放射化学的分析手法について記した。

対象核種の多くは、化学的に不明の点が多く、また文献数もアクチノイドは多いがその他の金属についてはきわめて少ない。

前処理方法については、分析化学的見地からまとめられたものは無く、一般分析の応用範囲で調査した。核種の分離・単離方法について、とくにアクチノイド系の文献等は多く分析モデルとなる分析法を選定することは困難である。一方その他の金属については、過去の実績等をふまえて評価できた。放射線計測器についても今まで実績のある方法について記した。以上対象試料・対象核種の基礎的事項について取りまとめ、各段階における分析方法の選定及び組立て方についての検討に資するものとする。

### 3. 放射性廃棄物に関する放射化学分析方法の調査及び検討

放射性廃棄物の放射化学分析手法に関する文献は乏しく全体の流れについて記された文献が入手困難であった。单一試料中から多核種を分析する場合、分析の流れとしては2種考えられる。

- 核種ごとに試料を準備する方法
- 1試料から対象核種全てを分析する方法

核種ごとに試料を準備する方法は、前処理を各核種ごとに行わなければならず、またサンプリング時の試料均一性に欠ける。一方、1試料から対象核種全てを分析する場合は、妨害物質を除きながら各核種ごとに分離でき、作業時間等が短縮できる。しかし、分析途中で不都合が生じた場合は、それ以降に分離する核種が取れることとなり、また各核種の回収率が他法に比較すると劣る傾向がある。

このようにこれらの方はいずれも長所・短所を持ち合わせるが一般的には後者の方法が採用されているようである。

1試料から対象核種全てを分析する場合は、前処理（溶液化）→粗分離→単離→計測の流れで実施するのが一般的な考え方である。しかし、対象となる核種あるいは試料の特性を考えた場合、単純にいかないことが多い。

#### (1) 前処理

対象試料の前処理については前記のように種々方法があるが、固化体中の核種存在形態（塩で存在するとは限らない）が不明である以上、対象核種の回収率の点で抽出法や溶解法などは採用できないこととなる。そうなると灰化法が優れていることになるが、加熱灰化法では対象核種であるCs、Sb（カチオン核種）などの飛散が問題になる他、アスファルトにあっては自燃の作用があるため200°C以下にしなければならない。また、プラスチック固化体の灰化率が問題である。そこで、飛散性核種の飛散率や、燃焼性、灰化率の点で優れている低温プラズマ灰化有望である。

## (2) 粗分離

核種の粗分離では、まず各核種の計測法並びに計測場所を考慮し適切な方法を選定しなければならない。

基本的に、対象核種が $\gamma$ 核種であり、前処理前あるいは前処理後の全核種共存系での計測で、定量出来るものがあれば、先ず実施すべきであると考えられる。このように、単離せずに定量出来るものは、出来るだけ早いうちに計測してしまい、その後の粗分離、単離操作を簡略化することが肝要である。

また、対象核種の化学的特性等を鑑み各核種の群分離をしておくことが必要である。対象核種中には、アニオン核種とカチオン核種、その他（トリチウム、炭素）がありそれらを更に分類するとカチオン核種にあっては、アルカリ土類系、希土類系、アクチニド系、アルカリ金属系、その他の系に分けられる。

アニオン核種、カチオン核種、その他（トリチウム、炭素）では粗分離するに当たり同一に考えることは不可能である。なぜならば、前処理方法が各々異なるからである。たとえば、アニオン核種であるヨウ素は、灰化した場合、アルカリ剤を加えておかないと飛散してしまう。

一方カチオン核種の灰化では、前記したように粗分離のためにアルカリ剤を加えない方が良い。このように、アニオン核種、カチオン核種、その他（トリチウム、炭素）はまったく別の前処理手法を採用しなければならない。

カチオン核種の粗分離に関して、アクチノイド系及び希土類系の核種は、 $\gamma$ 線計測が出来ず、したがって粗分離後、単離精製する必要がある。このような核種については、粗分離において各々群として取扱い、最終的に分離することがよいと思われる。

アニオン核種は、対象核種中2種類のみであり、単純にカチオン核種と分離したのち、各々分離することが出来るものと考えられる。ただし、アニオン核種の前処理時に行われる操作によって、カチオン核種が、アニオン核種の挙動を示すものもあると考えられるため注意が必要である。

### (3) 単離

核種の単離操作では、前記したように抽出によって精製することが良いようであるが、最終計測方法や、回収率の測定方法を考慮して分析手法を決めるべきである。 $\alpha$ 線放出核種は、基本的に $\alpha$ 線スペクトロメトリーで計測することになるため電着操作が必要である。このため電着できるような形態としておかなければならぬ。また、 $\beta$ 線放出核種は、 $2\pi$ ガスフローカウンターによる計測あるいは、液体シンチレーションカウンタによる計測があり、単離手法によりそれら計測方法が異なってくる。

一方、回収率計測方法についても、安定トレーサ（キャリア）を計測するのかあるいは放射性トレーサを計測するのかによって異なるが、基本的には最終計測状態かあるいは、その一段階手前で計測するのが望ましく、それにあった単離手法を考察しなければならない。

他方、全Pu、全Uの定量分析に関しては、前記の放射化学分析同様、前処理、粗分離する必要があると考えられ、放射化学分析手法の粗分離のフラクションを定量分析に供することが最もよい方法であると考えられる。

以上、放射化学分析手法の流れについて検討したが、これらを基に放射化学分析モデルを作成するものとする。

#### 4. 放射化学分析方法の検討

##### 4-1 放射化学分析方法のモデル化

放射化学分析モデルを作成するに当り、対象核種を表-4. 1の様に分類した。

表-4. 1 対象核種の分類

分類	核種
カチオン核種	直接 $\gamma$ 線計測が出来る核種 Co-60, Cs-134・137, Sb-125, Ru-103・106, Zr-95, Nb-95
	$\gamma$ 線を放出するが直接計測が困難な核種 Am-241, Cm-242, Ce-144, Np-239
	$\gamma$ 線を放出しない核種 Cm-244, Sr-90, Ni-63, Pu-238・239・240
	$\alpha$ 線計測が望ましい核種 Am-241, Cm-242・244, Pu-238・239・240, U, Np-239
	$\beta$ 線計測が望ましい核種 Sr-90, Ni-63
アニオン核種	Tc-99, I-129
その他の	H-3, C-14
	全Pu, 全U

カチオン、アニオン及びその他の核種の前処理並びに粗分離はその化学的性質の違いから、別々に処理することが必要である。また、より簡便な分析方法とするために、カチオン核種にあっては、各核種の放射能レベルによって粗分離の分析方法を変えなければならない。これらのことからカチオン核種の前処理、粗分離について2通りのモデルを考案し、またそれらの粗分離最終形態にあつた単離、計測方法を考案し分析モデルとした。  
12, 13, 14, 18, 20, 21, 23, 24, 25, 26,  
 27, 30, 31, 32, 33, 34, 35, 38, 39, 41)

分析項目と分析モデルフローシートの図面の対応表を表-4. 2に示す。

表-4.2 分析モデルフローシートと図番の対応表

項 目		対 象 核 種	図 番
カチオ ン核種	前処理・粗分離	全カチオン核種（モデル-2） $\gamma$ 測定以外の核種（モデル-1）	4.1～ 4.2
	単離・計測	Am, Cm, Np, Pu, Sr, Ni	4.1～4.8
アニオ ン核種	前処理・粗分離	全アニオン核種	4.9
	単離・計測	Tc, I	4.10～4.11
その他	単離・計測	H-3, C-14	4.11～4.16
		全Pu, 全U	—

## 4-2 モデル分析方法に対する検討並びに考察

## (1) カチオン核種

## a. カチオン前処理・粗分離

カチオン前処理・粗分離モデルとして2種の方法を提示した。モデル-1では、直接 $\gamma$ 線計測することによって定量可能と思われる核種(Co-60, Cs-134・137, Sb-125, Ru-103・106, Zr-95, Nb-95)は測定しておき、その他残った核種について粗分離する方法を採用している。

前処理方法としては、低温プラズマ灰化とし、測定核種の飛散を極力抑える方法とすると共に、完全灰化を目標とするために本法を採用している。ここで、灰化することによって生成される対象核種の酸化物の中で、Ru, Sb, Zr, Nb, は酸に不溶であり、Cs, Co, Ni, Sr, Ce, U, Np, Pu, Am, Cm, などと分離出来る。

粗分離方法としては、希土類に属するCe, Am, Cm群、U, Pu, Np群、その他、酸可溶性カチオン核種Cs, Co, Ni, Sr等に分けられる。そこで、第1回目にC1型のアニオンResinカラム処理を行い、Coを含むU, Np, Puとその他の核種を分離し、U, Np, PuはNO<sub>3</sub>型のアニオンResinで各々分離する。一方、他の核種は、H型カチオンResin(HClO<sub>4</sub>処理)カラム処理を行い、希土類元素と他の核種(Sr,

Ni等)に分離する。希土類元素は単離操作でCeとAm, Cmを分離することとし、ここでは処理しない。残された核種(Sr, Ni)は、Niのアンモニア錯体を形成させ、Srと分離する。

γ核種については前処理する前に計測し、定量してしまうが、ここで放射能レベルが低い為に検出不可能な核種としては、Ru-103, Zr-95, Nb-95があげられる。これらの核種はいずれも灰化後、酸に不溶な核種(HClに対して)である為、これらの不溶解性核種を回収して、改めてγ線計測を実施することにより検出出来るものと考えられる。もし、それが不可能であるならば、モデルー2に委ねることになる。

モデルー2は、直接γ線計測が不可能である場合、また各核種を粗分離・単離する場合に適用する。

前処理方法は低温プラズマ灰化するが、Ru, Nb, Zr, Sb等の酸不溶解性物質が生成される為、それらについてアルカリ溶融を実施し、同位体中に含まれる全てのカチオン核種(Nbを除く)を溶液化する。この時、酸不溶解性核種は、アニオン挙動の化学種になっている(Nbを除く)ものと思われる。アニオンResinカラム処理によって、U, Pu, Np, Ru, Sbとその他の核種に分けられる(モデルー1と同様)が、その前にCs分離の目的で、一旦アルカリ溶液にし、沈澱を生成させる。ただし、この方法は沈澱が多量に出来る場合、Csが沈澱と共に沈し回収率が悪くなる懸念があることと、UがCO<sub>3</sub><sup>2-</sup>イオンによって溶解し、Cs側へ移る心配がある。もし、この操作を実施しなかった場合は、NiのフラクションへCsが移行することになる。Ni単離においてCsは妨害とならない為、必要に応じて分析方法を変更するとよい。アンモニア錯体を作り、Niを分離したのち、H型カチオンResinカラム処理を行い、希土類のCe, Am, Cmと、残されたMn, Zr, Sr等と分離し、Srにあっては最終的にシュウ酸によって分離する。

## b. カチオン単離・計測

### (a) Am, Cm, Ce 単離・計測

Am, Cmは $\alpha$ 線スペクトル計測とし、Ceは $\gamma$ 線計測で各々定量する。Ceは、モデルー1, モデルー2のフラクション溶液を定容し、計測可能な形態にする。Ceの $\gamma$ 線計測を実施したのち希塩酸とし、H型のカチオンResinカラム処理を行い、Am, CmとCeを分離する。Am, CmはSUS板に電着させ、 $\alpha$ 線スペクトルから定量する。

回収率操作において、CeについてはH型カチオンResinカラム処理溶離液にシュウ酸(pH-4)を添加し、シュウ酸セリウムの沈澱を作り、重量法で評価する。Am, Cmは、Ceの回収率を用いることとする。

### (b) Sr 単離・計測

Sr-90の単離・計測法として、Y-ミルキング法を採用している。モデルー1では炭酸ストロンチウム、モデルー2ではシュウ酸ストロンチウムの形で粗分離されており、モデルー2のシュウ酸ストロンチウムは単離前に予め灰化する必要がある。灰化はSr飛散を考慮し、450°C以下の低温で灰化する。2週間のY-ミルキング前に、予めTBP抽出性物質を取り除き、ここでYのクリーンナップを実施する。Srの回収率は原子吸光で行う。また、Yの回収率測定は、 $\beta$ 線測定後再溶解し、Srと同じ原子吸光により測定する。

### (c) Ni 単離・計測

Niはジメチルグリオキシムによって錯体を形成し、キシレンに抽出される。これらは特異的な反応のため、単離・精製が可能である。しかし、ジメチルグリオキシム-Ni錯体がキシレンに抽出される量は少量(キシレン30mlに対しNi約120 $\mu$ g)であるため、モデルー1、モデルー2の粗分離液を予め原子吸光でNi量を定量しておき、約100 $\mu$ g-Niを供試料とする。

$\beta$ 線計測では、十分にクリーンナップが必要であることから、一度キシレン相に抽出されたジメチルグリオキシム-Ni錯体は、繰り返し洗浄する。最終的にキシレン相に共存物質が無

いことを確認(アチェック)したのち液体シンチレーションカウンタで $\beta$ 線計測する。

Niの量に比例して、計測用キシレンの色(黄色)が異なるので、色クエンチングの補正曲線を作成し、測定器を校正しておく必要がある。

(d) Pu単離・計測

モデルー1、モデルー2の粗分離液(12N-HCl+0.1M NH<sub>4</sub>I)を蒸発乾固し、硝酸で溶解後TOA-キシレンで抽出し、単離・精製する。有機相にあるPuをヨウ化水素酸-塩酸混液で逆抽出し、SUS板に電着後 $\alpha$ 線スペクトルを測定する。回収率は、Pu-236あるいはPu-231をトレーサーとして用い $\alpha$ 線スペクトルを試料と同時に測定し求める。

(e) U単離・計測

モデルー1、モデルー2の粗分離液(1N-HNO<sub>3</sub>)を蒸発乾固し、硝酸で溶解後TBP-キシレンで抽出し、単離・精製する。有機相にあるUを炭酸アンモニウムで逆抽出し、SUS板に電着後 $\alpha$ 線スペクトルを測定する。回収率は、U-232をトレーサーとして用い $\alpha$ 線スペクトルを試料と同時に測定し求める。

(f) Np単離・計測

モデルー1、モデルー2の粗分離液(4N-HCl)を蒸発乾固し、硝酸及びスルファミン酸鉄で溶解し、Npを4価に還元する。10%TOA-キシレンで抽出し、単離・精製したのち有機相にあるNpを炭酸アンモニウムで逆抽出し、SUS板に電着後 $\alpha$ 線スペクトルを測定する。回収率は、Np-234をトレーサーとして用い最終形態のSUS板の $\alpha$ 線を測定し求める。Np-234が使用できない、あるいは入手できない場合はUの回収率をもって代用する。

## (2) アニオン核種

### a. アニオン前処理・粗分離

前処理方法としては、カチオンの前処理と同様に低温プラズマ灰化とし、また粗分離操作は、すべてイオン交換樹脂を用いたカラムクロマト法を採用した。前処理の低温プラズマ灰化では灰化する前に、予めサンプルをアルカリとしておき、ヨウ素の飛散を極力抑える方法としている。有機物分解後は、溶解剤を用い共存金属に溶解する。

アニオン核種は、各々  $I^-$ 、 $TcO_4^-$  の形で存在していると考えられ、その他  $Sb$  についても ( $Ru$ 、 $Zr$  も考えられる) アニオン挙動で存在すると考えられる。粗分離には、C1型のアニオン Resin が用いられ、アルカリ溶液でカラムに負荷することにより、 $I$ 、 $Tc$  その他アニオン挙動核種が吸着する。

ヨウ素の溶離には  $NaOCl$  を用い、 $NaOCl$  によってヨウ素を酸化させ、樹脂より溶離させる。 $Tc$  については、 $8NHNO_3$  を用い溶離させる。

### b. アニオン単離・計測

#### (a) $I$ 単離・計測

$I$  は液体シンチレータ計測とし、単離・精製には四塩化炭素抽出法を採用した。 $NaOCl$  溶離液を  $HNO_3$  によって分解し、四塩化炭素で抽出、 $NaHSO_3$  溶液で逆抽出を行い、液体シンチレータを混合させ、液体シンチレーションカウンタによって計測する。回収率は、ヨウ素を四塩化炭素に抽出した時の抽出相の色の比較（吸光光度法）によって求める。

#### (b) $Tc$ 単離・計測

$Tc$  は液体シンチレータ計測とし、単離・精製は TPAC (テトラフェニルアルソニウム塩酸塩) 沈澱を生成し、クロロホルムで洗浄後エタノール溶液とし、液体シンチレータを加えて液体シンチレーションカウンタで計測する。回収率は粗分離液を一部分取し、 $KSCN$  (チオシアニ酸カリウム) による発色法で  $Tc$  を定量し求める。

### (3) その他の核種 (H-3、C-14) の単離・計測

H-3、C-14は、対象試料が有機物であることから、燃焼させ捕集する必要がある。

そこで試料を分解するための燃焼炉並びに燃焼ガスの酸化（炭酸ガス化）にPt触媒を用いた酸化炉を使用し、試料をすべてH<sub>2</sub>O及びCO<sub>2</sub>ガスにする。H<sub>2</sub>O及びCO<sub>2</sub>ガスはアルカリ吸収剤にトラップし、その吸収剤を2分割しH-3用とC-14用に共する。

H-3の単離は、アルカリ蒸留法でT<sub>2</sub>Oを精製する。

C-14は、H-3の混入を避けるため、Ba(OH)<sub>2</sub>でBaCO<sub>3</sub>を精製させ、C-14を固定化する。BaCO<sub>3</sub>を乾燥させることにより、H-3が除ける。BaCO<sub>3</sub>を酸性通気装置に入れCO<sub>2</sub>ガスを発生させ、最終形態の計測用吸収液（オキシソープ-CO<sub>2</sub>）にトラップする。その後液体シンチレータを入れ、液体シンチレーションカウンタで計測する。H-3、C-14の回収率測定は困難であり、また分析法が比較的単純であることから回収率は100%とし、特に計測しない。

### (4) その他（全U・全Pu）定量法

#### a. 全U定量法

カチオン核種の前処理・粗分離と同様にUのフラクションを取り、U-232をトレーサーに用い、回収率を求めると共にアルセナゾーIII [2,7-ビス(アゾ-2)-フェニルアルソノ-1,8-ジヒドロキシナフタレン-3,6-ジスルホン酸]錯体で吸光光度分析により定量する。定量は、6~7%塩酸で670nmにおいて測定する。Th、Puは妨害するが、多量のFe、Pb、Mg、Znなどは、妨害とならない。この分析法でのUの定量下限は、<10w/wppb-U/固化体程度と予想される。

#### b. 全Pu定量法

カチオン核種の前処理・粗分離と同様にPuのフラクションを取り、Pu-236をトレーザとして回収率を求めると共に、クロロホスホナゾIII [2,7-ビス(2-ホスホノ-4-クロル

—ベンゾイルアゾ) -1, 8-ジオキシナフタレン-3, 6-ジスルホン酸] 錫体で吸光光度分析により定量する。

定量は、3~5%硝酸溶液を用いる。尿素を含む4%硝酸溶液の680 nmにおける分子吸光係数は、 $1.38 \times 10^5$ である。Th、Zr、Hf、U (IV) が妨害するが、粗分離後の試料であるため問題にならないと考えられる。定量下限は<10 w/wppb-Pu/固化体程度と予想される。

#### 4-3 まとめ

放射化学分析モデルの概要を表-4. 3に示す。

本放射化学分析モデルでは分析の流れを

前処理 → 粗分離 → 単離 → 計測

とし、1つのサンプルから対象核種をそれぞれ分離し計測する手法を採用した。このことより対象核種の分離と共に妨害核種の除去が可能となり、効率的な分析手法となった。

前処理方法としては、対象核種の飛散、灰化効率、回収率の観点から低温プラズマ灰化法を採用した。ただし灰化することによって対象核種が酸化物形態となっているものについて、酸不溶解性核種が存在する。このため、予めそれら核種を $\gamma$ 線計測しておくか、あるいは酸不溶解性核種をアルカリ溶融する必要がある。

カチオン核種の粗分離モデルは2種考案し、モデルー1では予め $\gamma$ 線計測核種を粗分離する。モデルー2では、すべての対象核種を粗分離する方法とした。粗分離方法としては主としてイオン交換樹脂を用いたクロマト分離法を採用した。このことより煩雑な湿式化学分離を省略できる。

アニオン粗分離についても同様にイオン交換樹脂を用いたクロマト分離法を採用しており、きわめて単純な操作で粗分離が可能である。

核種単離方法としては、溶媒抽出法を主に行い、単離・精製している。この方法を採用すると、一般の沈澱分離法に比べ妨害物質の混入が極めて少なくて済むものと考えられる。回収率測定用のキャリア・トレーサは、安定核種が存在する場合はそれらを使用し $Tc$ ,  $U$ ,  $Np$ ,  $Pu$ ,  $Am$ ,  $Cm$ 等安定核種が存在しないものについては類縁元素を使用したりトレーサとして試料中に含まれていない放射性核種を用いることとした。

以上、放射化学分析モデルとして前処理、粗分離、単離方法についてフローシートを作成した。これらの放射化学分析手法を基礎とし開発計画を進めていくものとする。

表-4.3 放射化分析モデル概要

項目	分析方法	キャリアトレー	回収率測定法	放射能計測方法	備考
カチオン粗分離 1	モ デル 低温プラズマ灰化後、不溶性核種Ru, Sb, Zr, Nbその他を分離。アニオンResinでPu, Np, U分離。 カチオンResinでAm+Cm+CeとSr, Niを分離。	—	—	—	予めア核種を計測しておく。
カチオン粗分離 2	モ デル 低温プラズマ灰化後、アルカリ溶融。Csを分離後アニオンResinでCo, Pu, Np, U, Sb Ruを分離。カチオンResinでAm+Cm+CeとSr, Zrを分離。	—	—	—	対象核種全てを粗分離する。
アルカリベースで低温プラズマ灰化後、アルカリ溶融。H <sub>2</sub> O溶解後、アニオンResin処理。各種溶離液でI, Tc分離。	—	—	—	—	
核種単離	Am Cm Ce カチオンResinでCeとAm+Cmを分離。Am+CmはSUS板に電着後、測定。	Ce	シュウ酸Ce重量法	Ce γ線計測 Am, Cm α線計測	
Sr	conc-HNO <sub>3</sub> ベースでTBP抽出物を抽出後、Y-ミルキングで2週間放置。TBPでSr, Yを分離後Yを逆抽出し、Y(OH) <sub>3</sub> を作りβ線計測。	Sr(Y)	原子吸光法	2πガスフローカウンタ	
Ni	Ni-ジメチルグリオキシム錯体を形成させキレンに抽出、シンチレータを入れ計測。	Ni	原子吸光法	LSC	
Pu	TOA-キシレンでPuを抽出、逆抽出後SUS板に電着させ、α線計測。	Pu-236トレー	α線計測	SSB	
U	TBP-キシレンでUを抽出、逆抽出後SUS板に電着させ、α線計測。	U-232	α線計測	SSB	
Np	Npを4価に還元後、TOA-キシレンでNpを抽出、逆抽出後SUS板に電着させ、α線計測。	Np-234	α線計測	SSB	Np-234使用。不可の場合はUの回収率を使用。
I	四塩化炭素抽出、逆抽出後シンチレータと混ぜ合わせ計測。	I	吸光光度法	LSC	
Tc	TPAC-Tc(Re)を生成させ、CHCl <sub>3</sub> 抽出洗浄後、C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OH溶液にし、シンチレータを混ぜ合わせ計測。	Re	KSCNにより発色法	LSC	
H-3 C-14	固化体を通気燃焼し、H <sub>2</sub> O, CO <sub>2</sub> ガスをトラップ。1/2ずつ分割し、H-3はアルカリ蒸留。C-14は焼却残渣を酸性通気し、H-3除去後再度酸性通気し、各々計測。	—	—	LSC	
その他	全Pu カチオン核種の前処理・粗分離をしPuフラクションをクロロホスホナゾ(Ⅲ)で発色させ、680nmで吸光光度分析し定量する	—	—	—	Pu-236で回収率測定
全U カチオン核種の前処理・粗分離をしUフラクションをアルセナゾ(Ⅲ)で発色させ、670nmで吸光光度分析し定量する。	—	—	—	U-232で回収率測定	

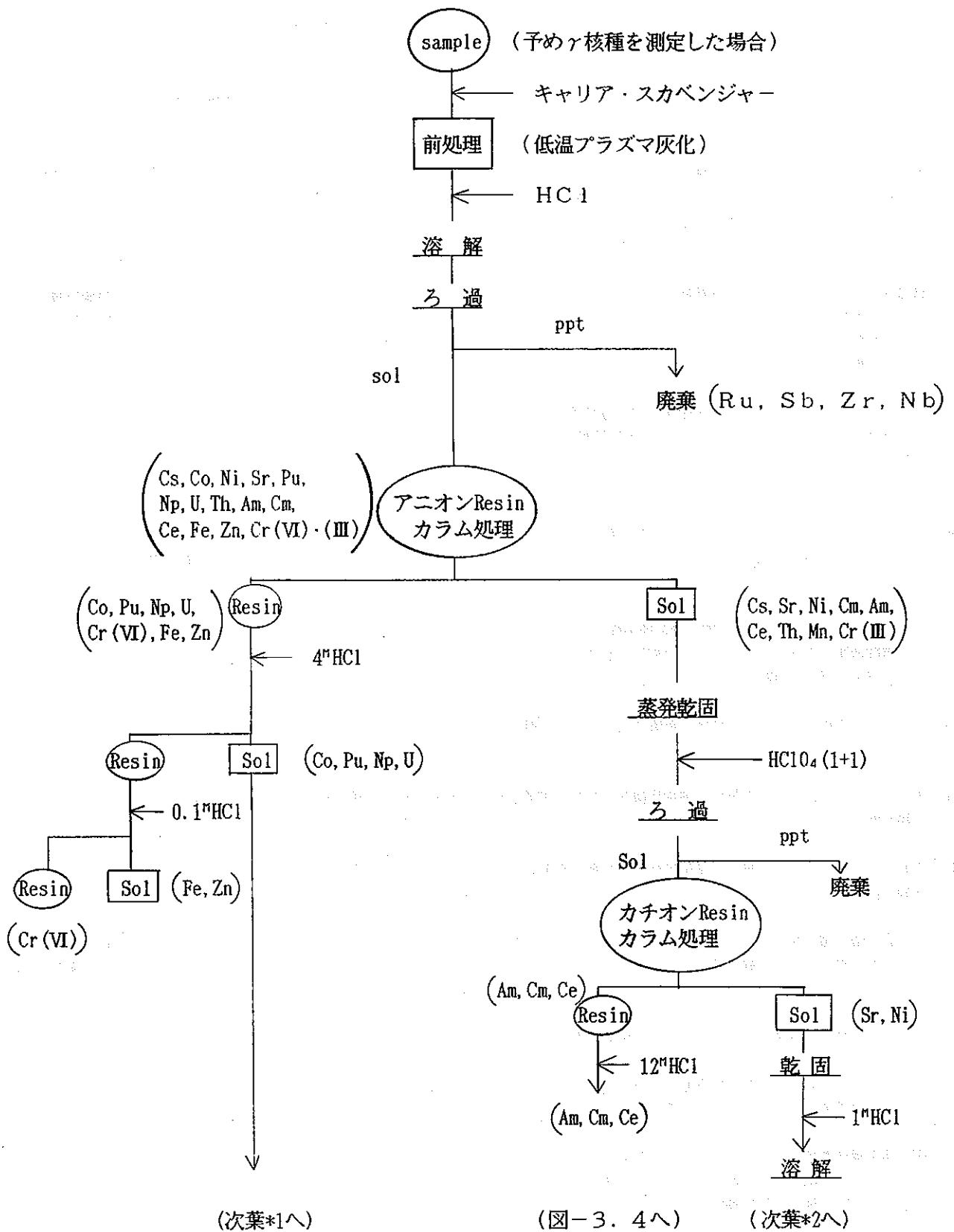


図-4. 1 カチオン核種粗分離フローシート (モデルー1)

1 / 2

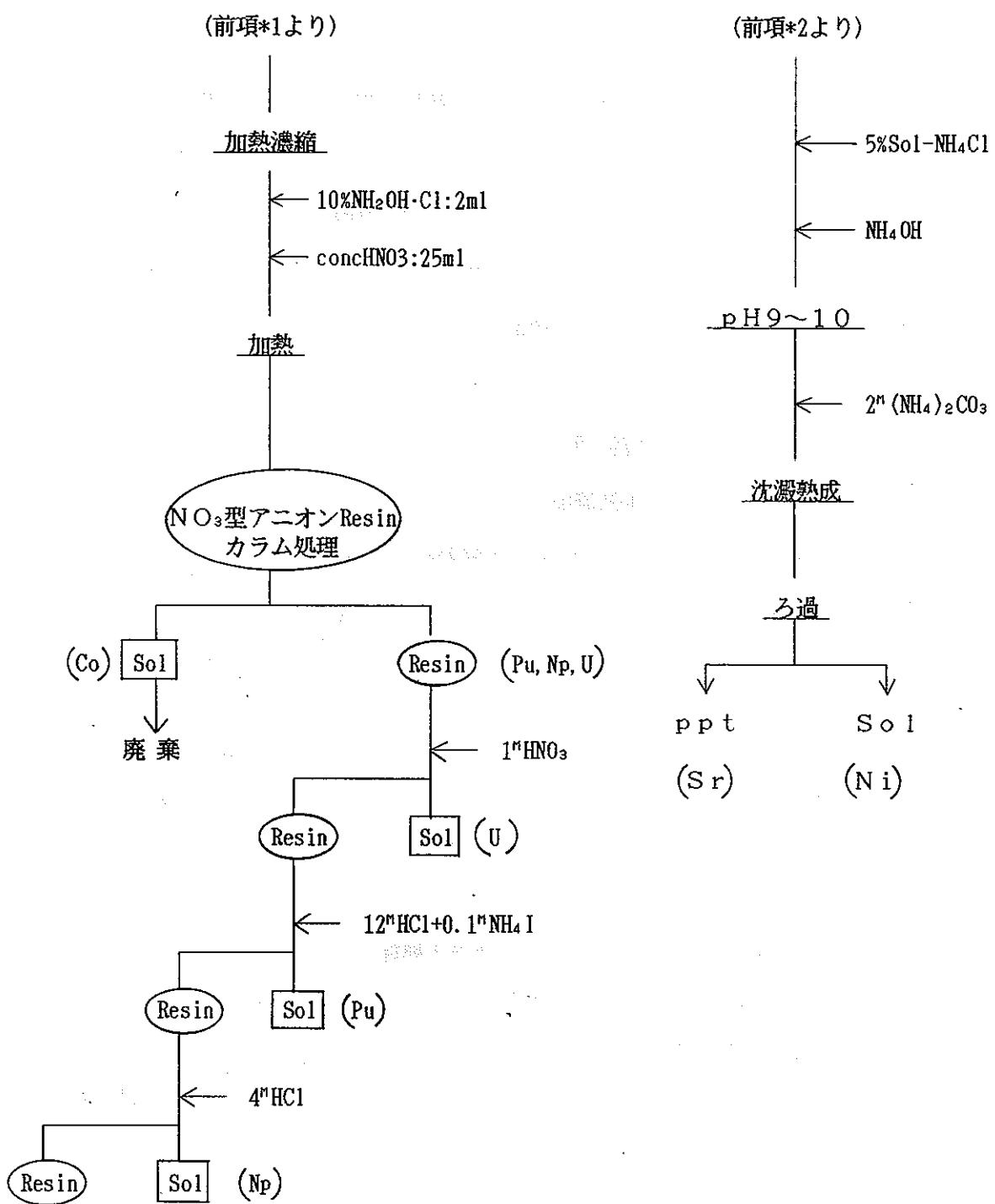


図-4. 1 カチオン核種粗分離フローシート (モデル-1)

2/2

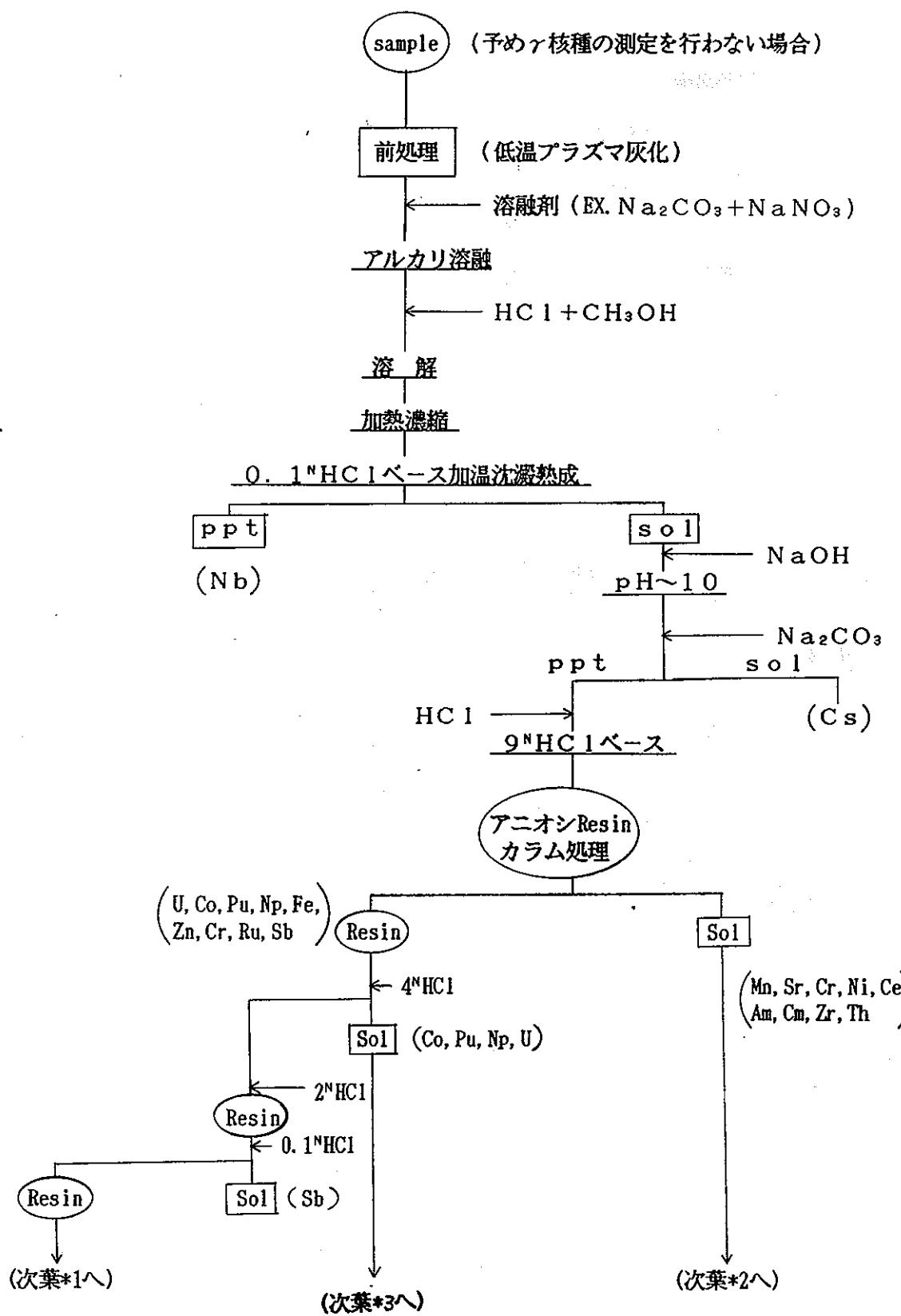


図-4. 2 カチオン核種粗分離フローシート (モデル-2) 1/3

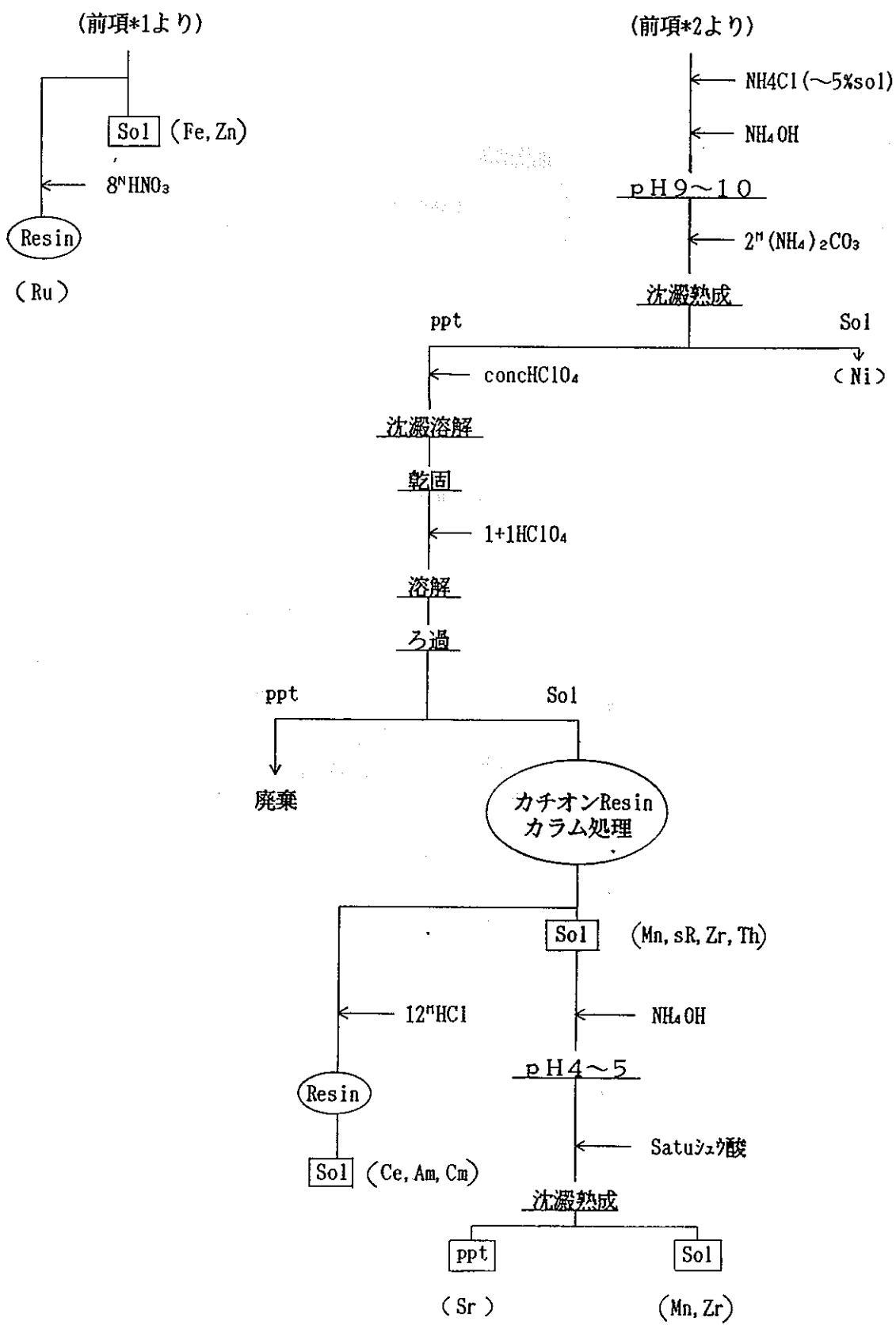


図-4. 2 カチオン核種粗分離フローシート（モデル-2） 2/3

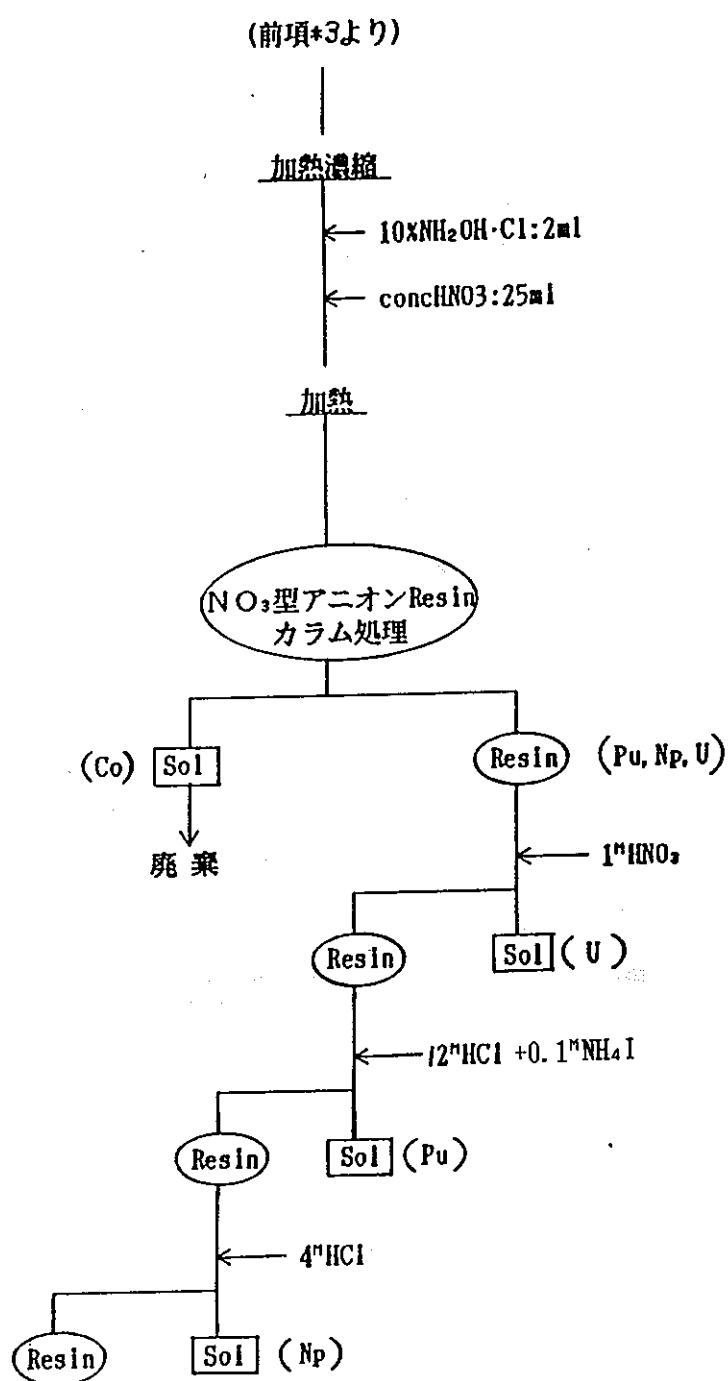


図-4. 2 カチオン核種粗分離フローシート（モデル-2） 3／3

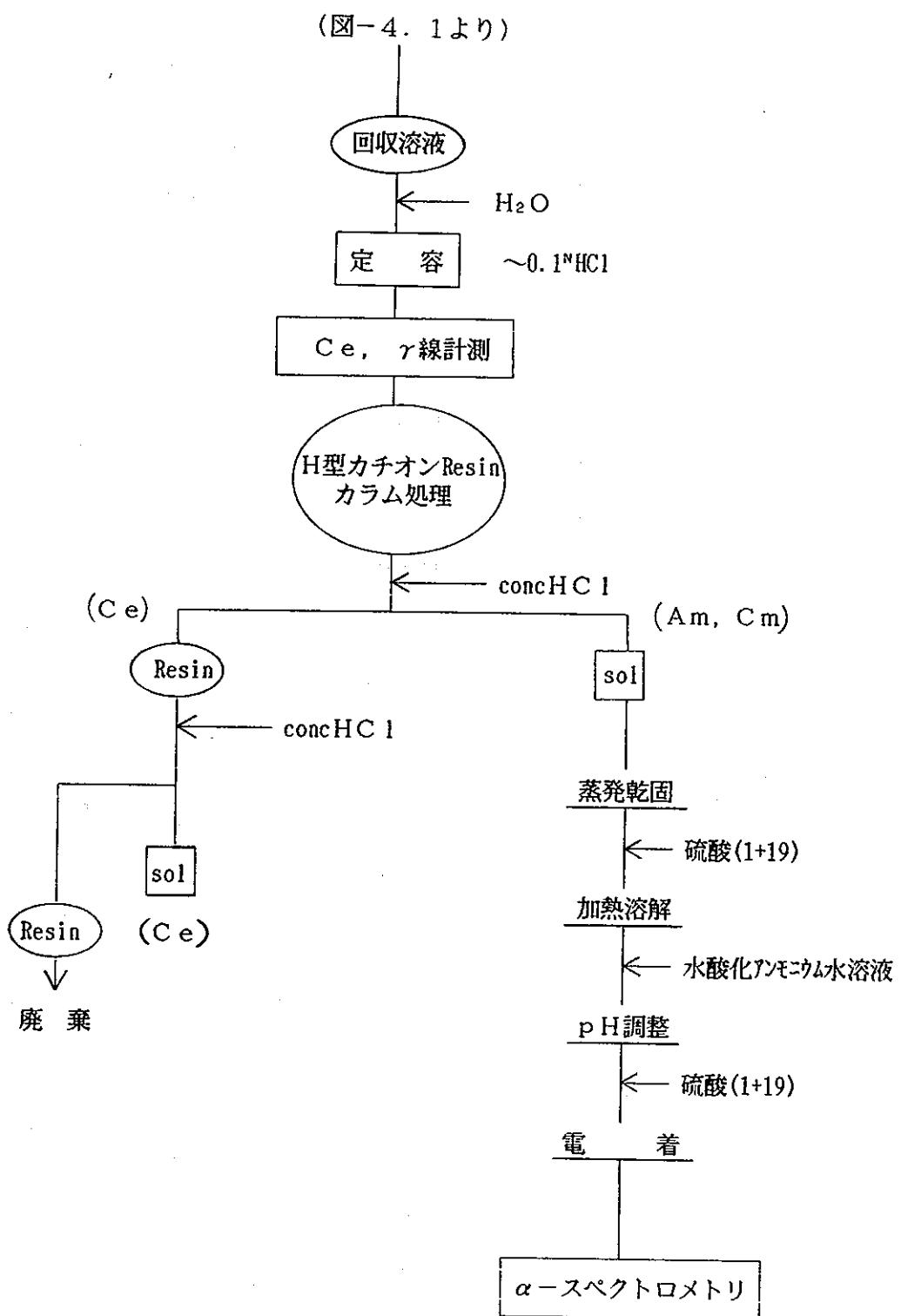


図-4. 3  $Am$ ,  $Cm$ ,  $Ce$  単離計測フローシート

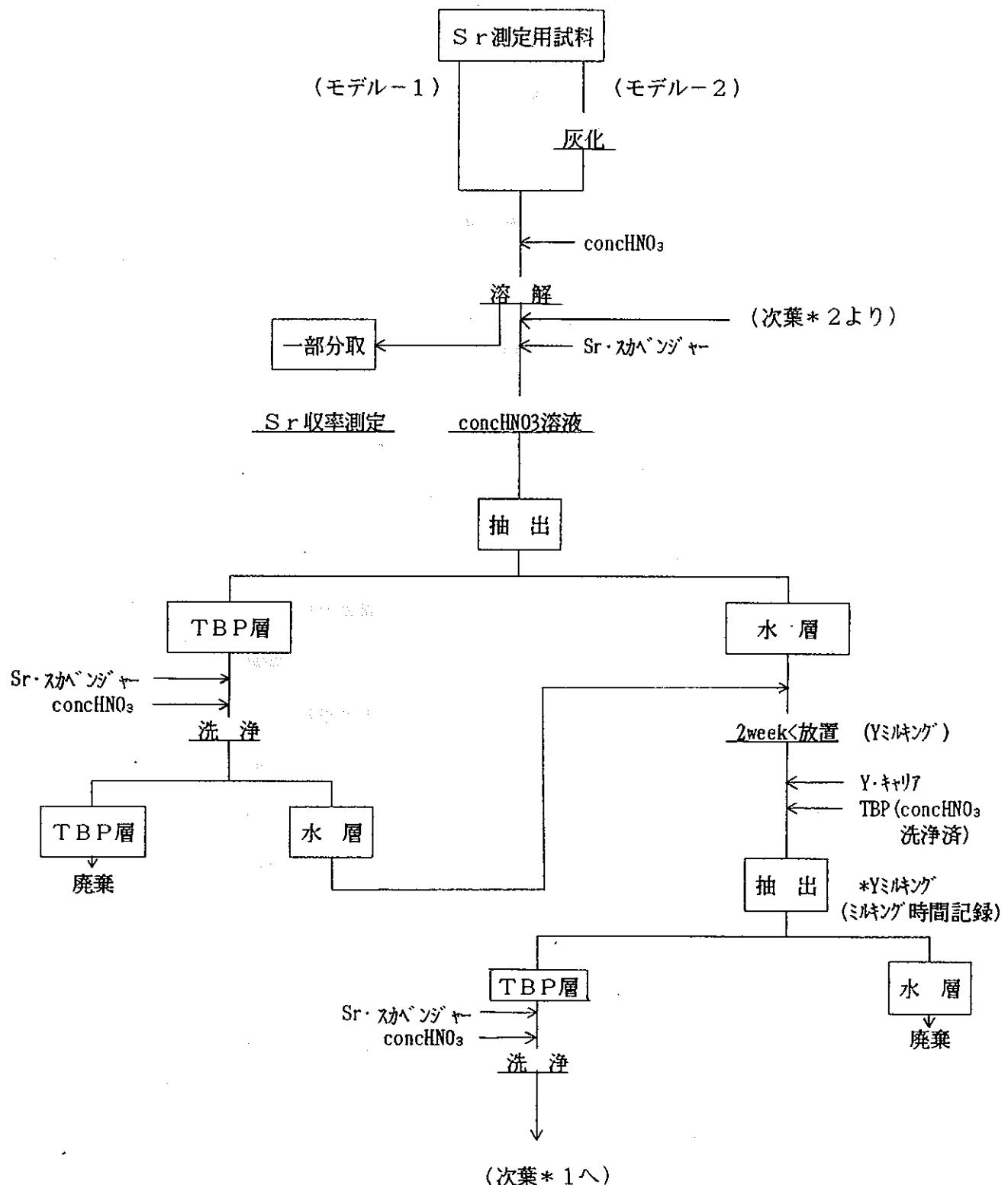


図-4. 4 Sr単離計測フローシート 1/2

(前項\*1より)

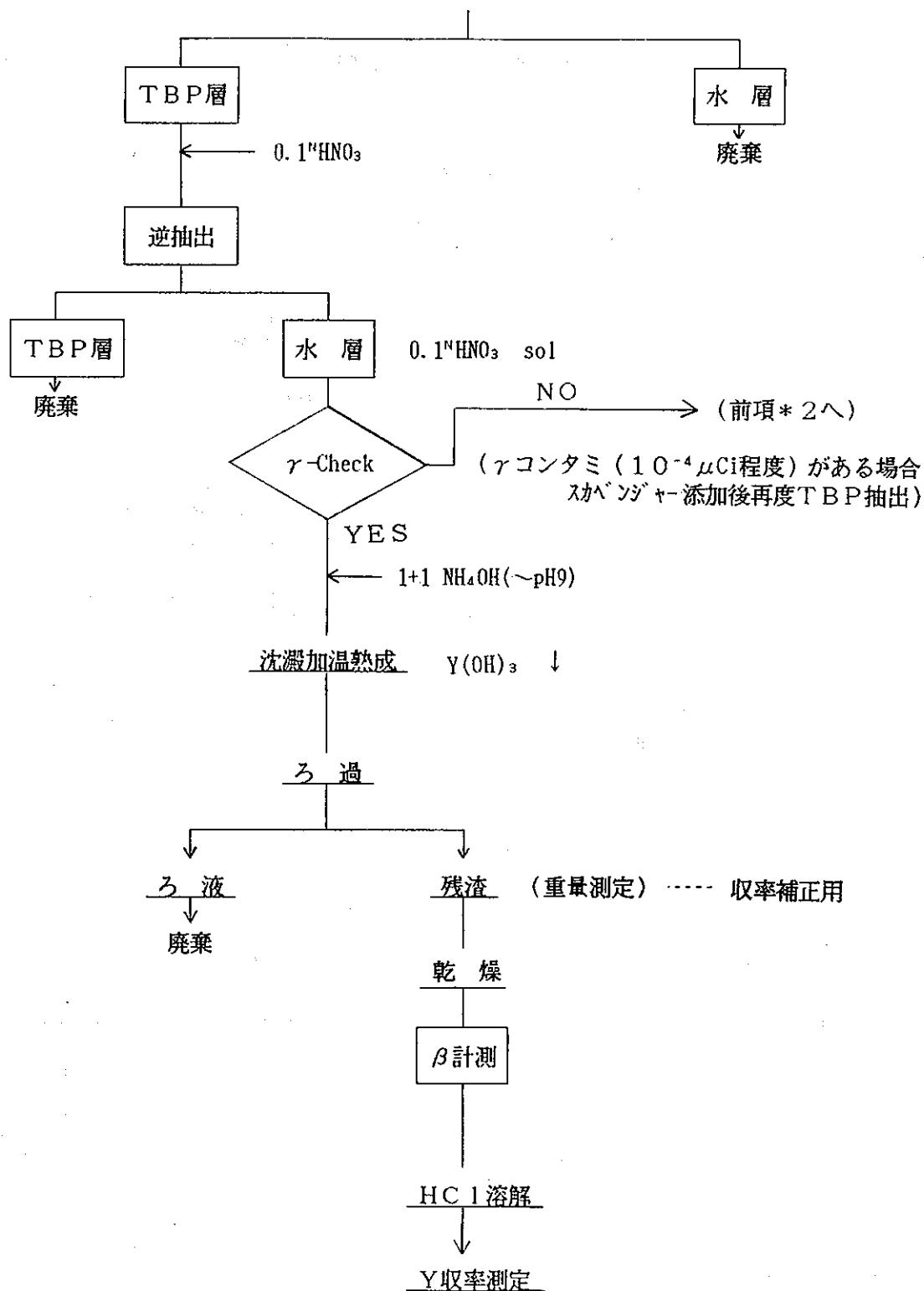


図-4. 4 Sr単離計測フローシート 2/2

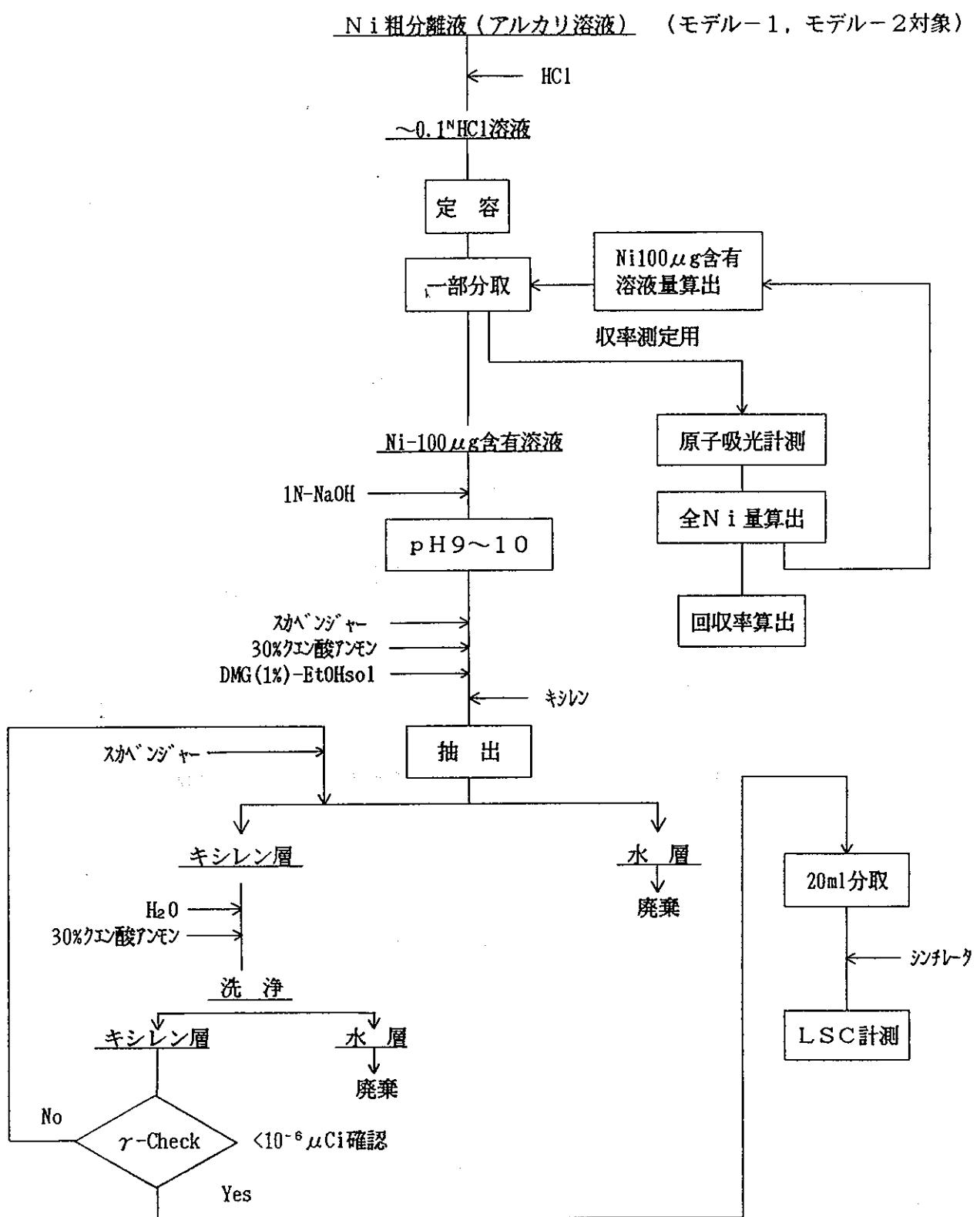


図-4.5 Ni単離計測フローシート

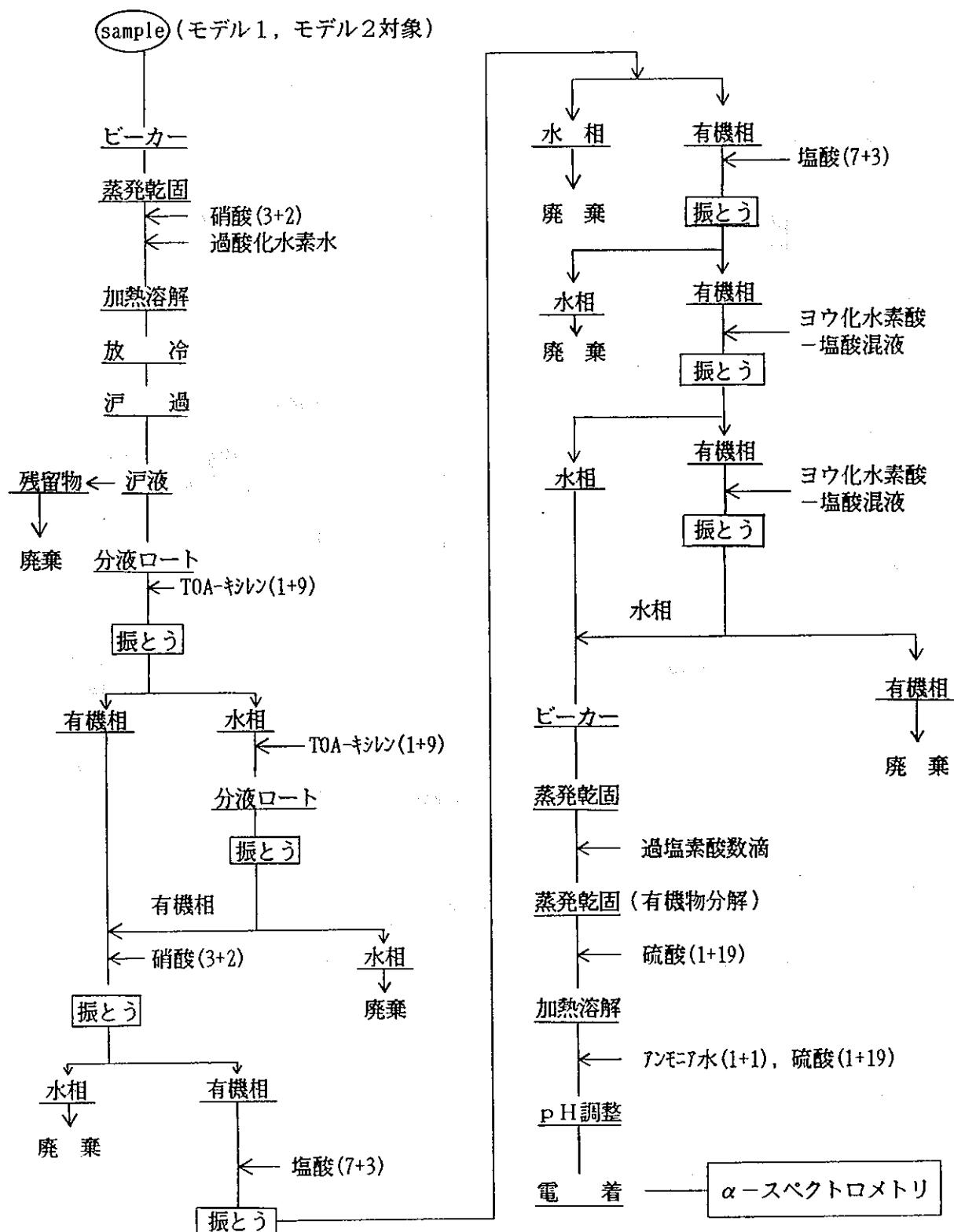


図-4. 6 Pu 単離計測フローシート

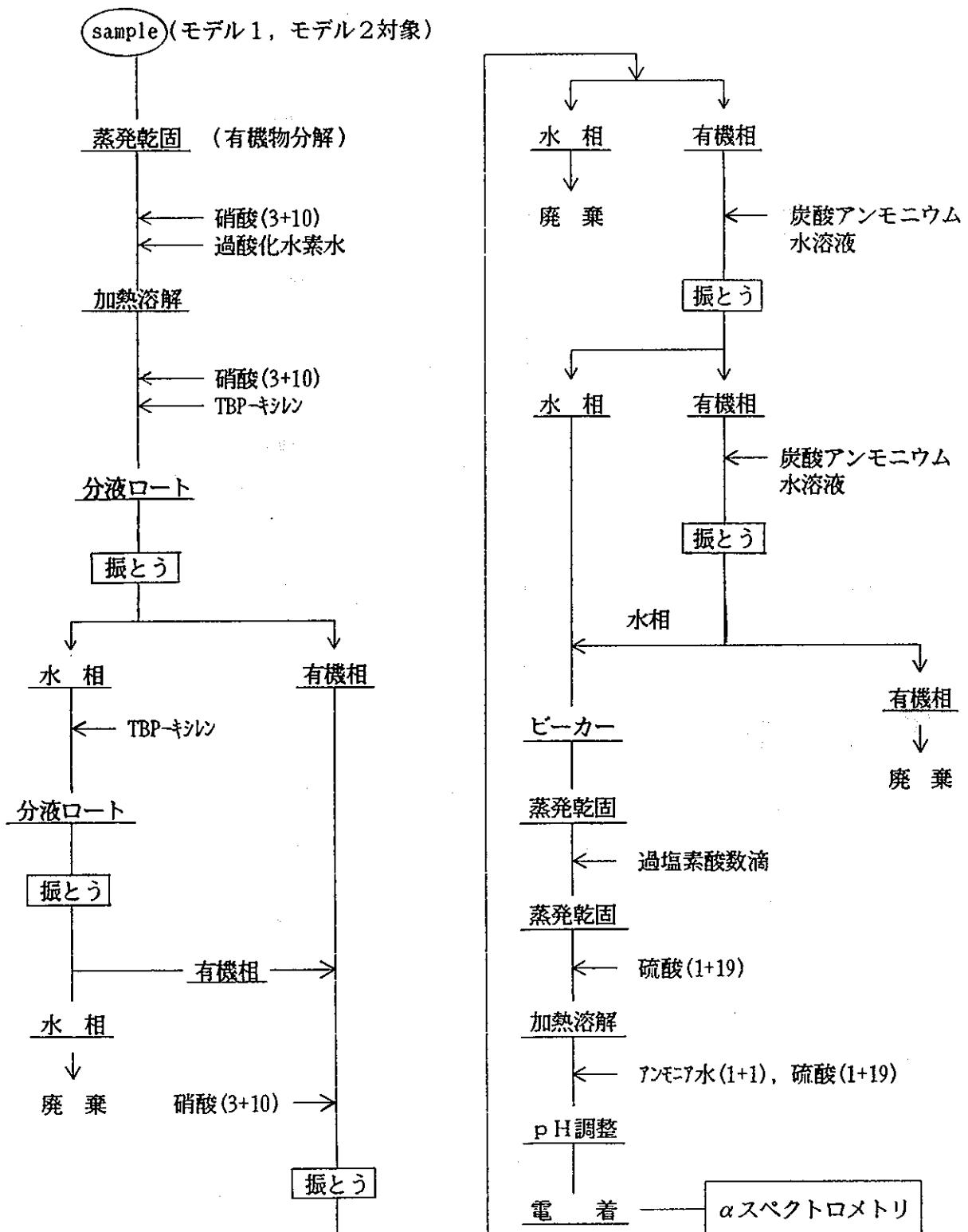


図-4.7 U単離計測フローシート

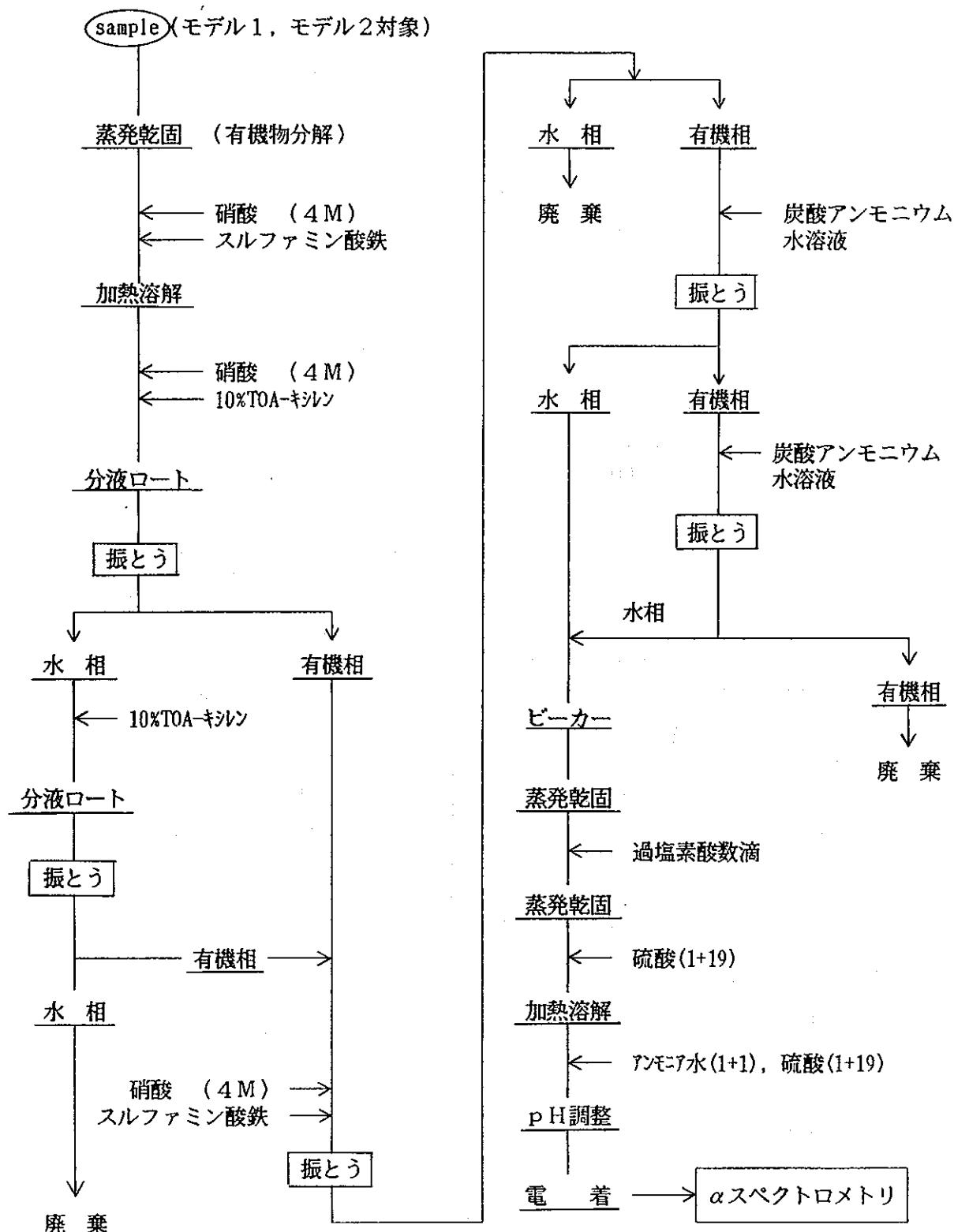
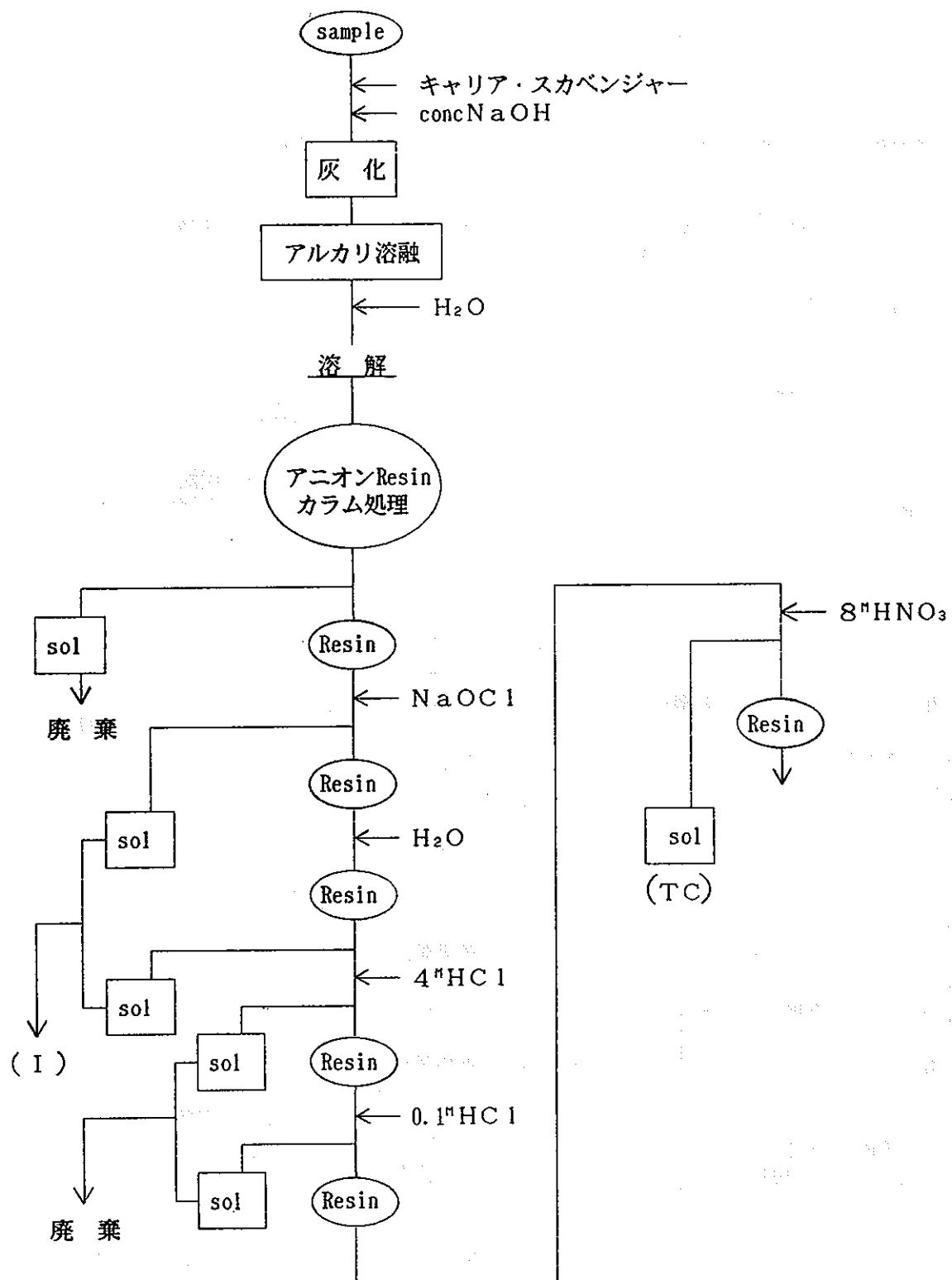


図-4.8 Np 単離計測フローシート



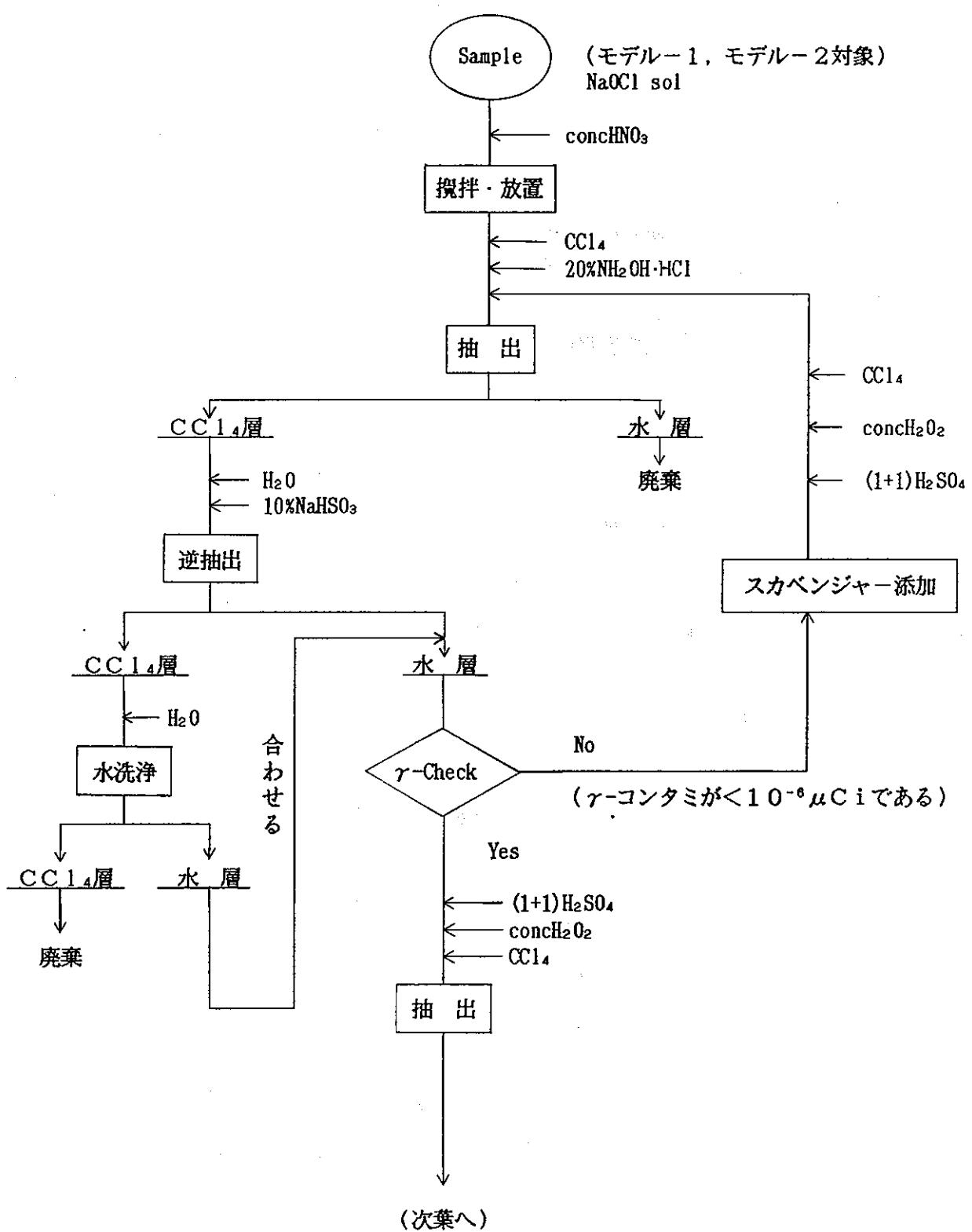


図-4. 10 I 単離計測フローシート

1 / 2

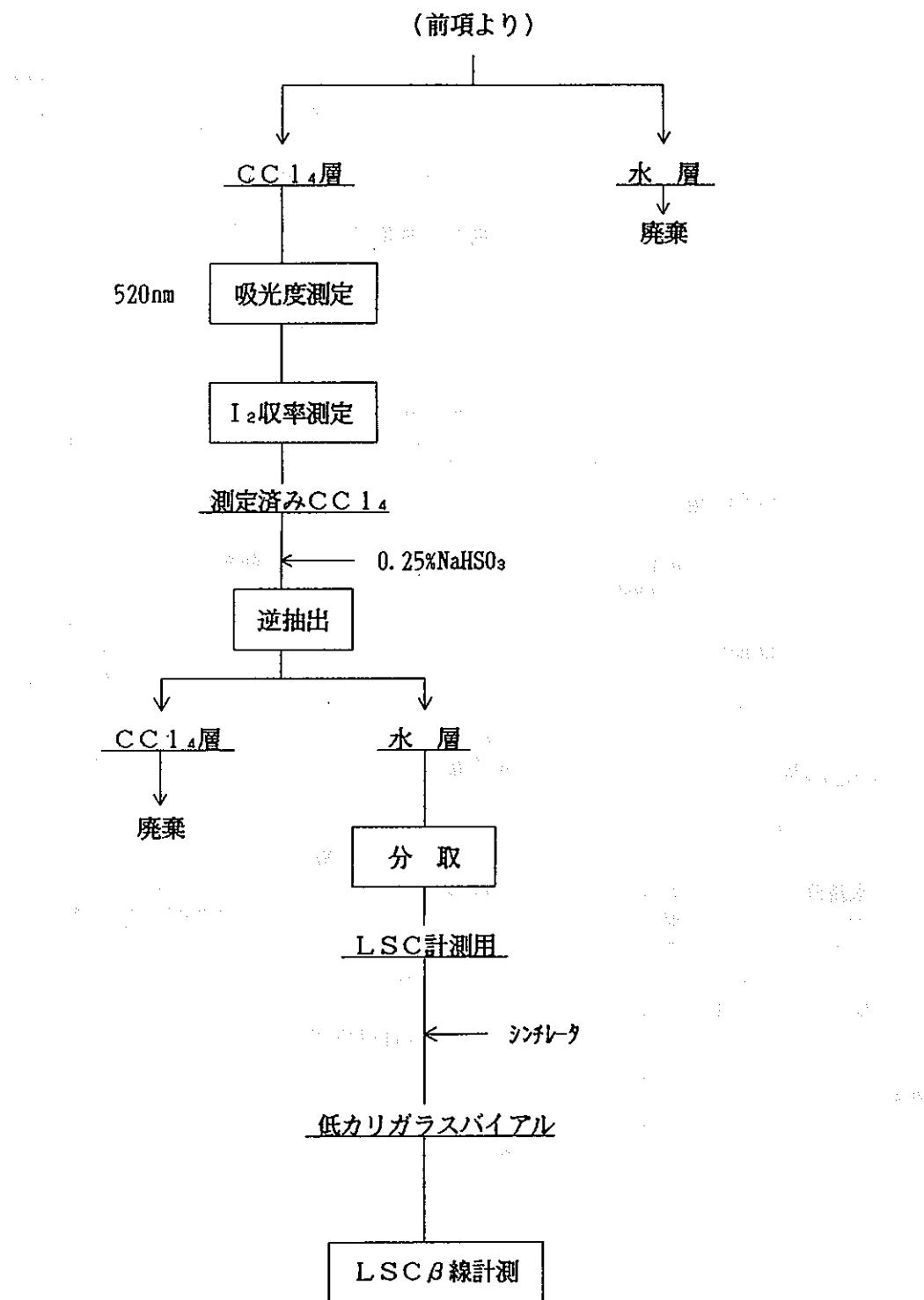


図-4. 10 I 単離計測フローシート 2/2

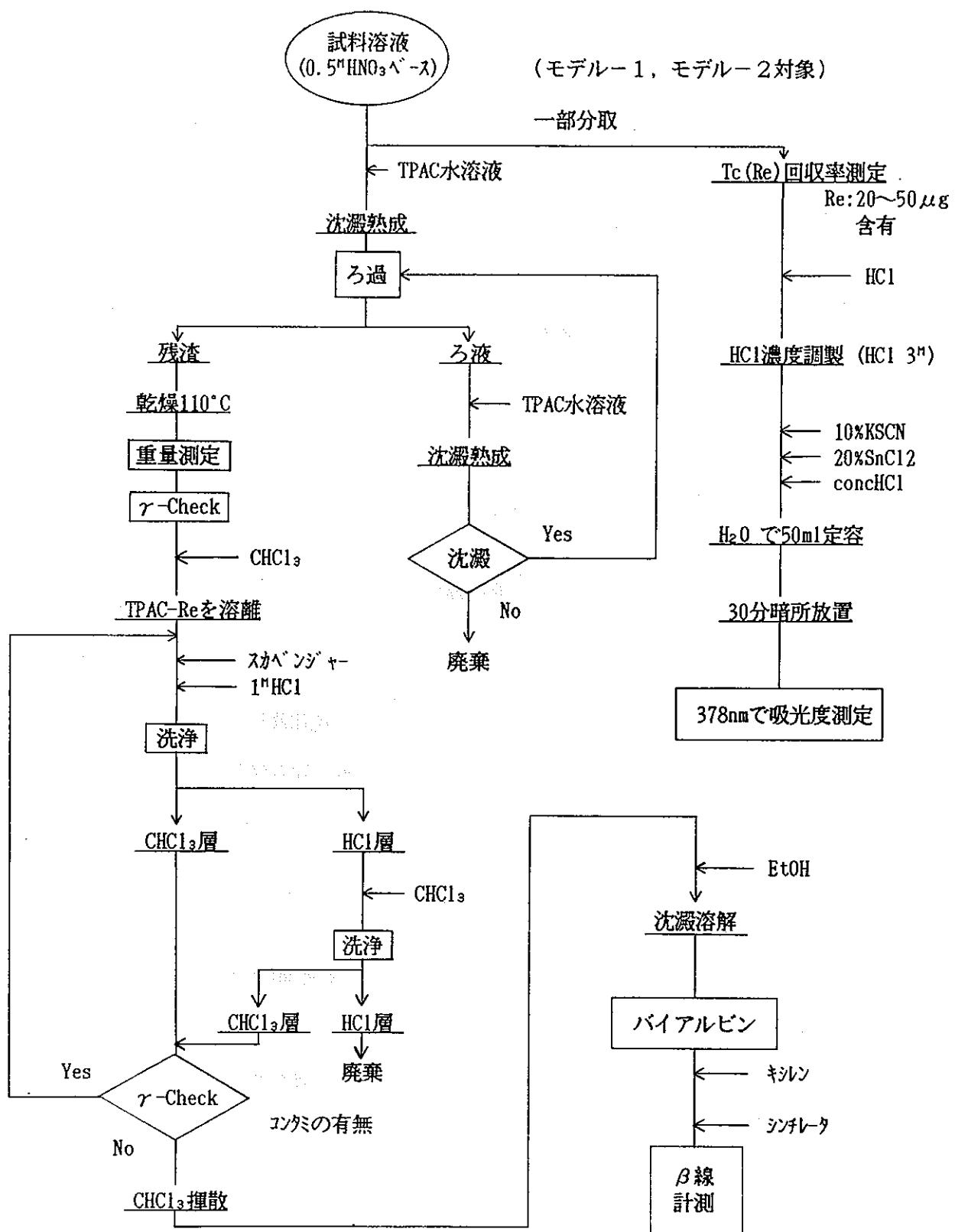


図-4. 11 Tc 単離計測フローシート

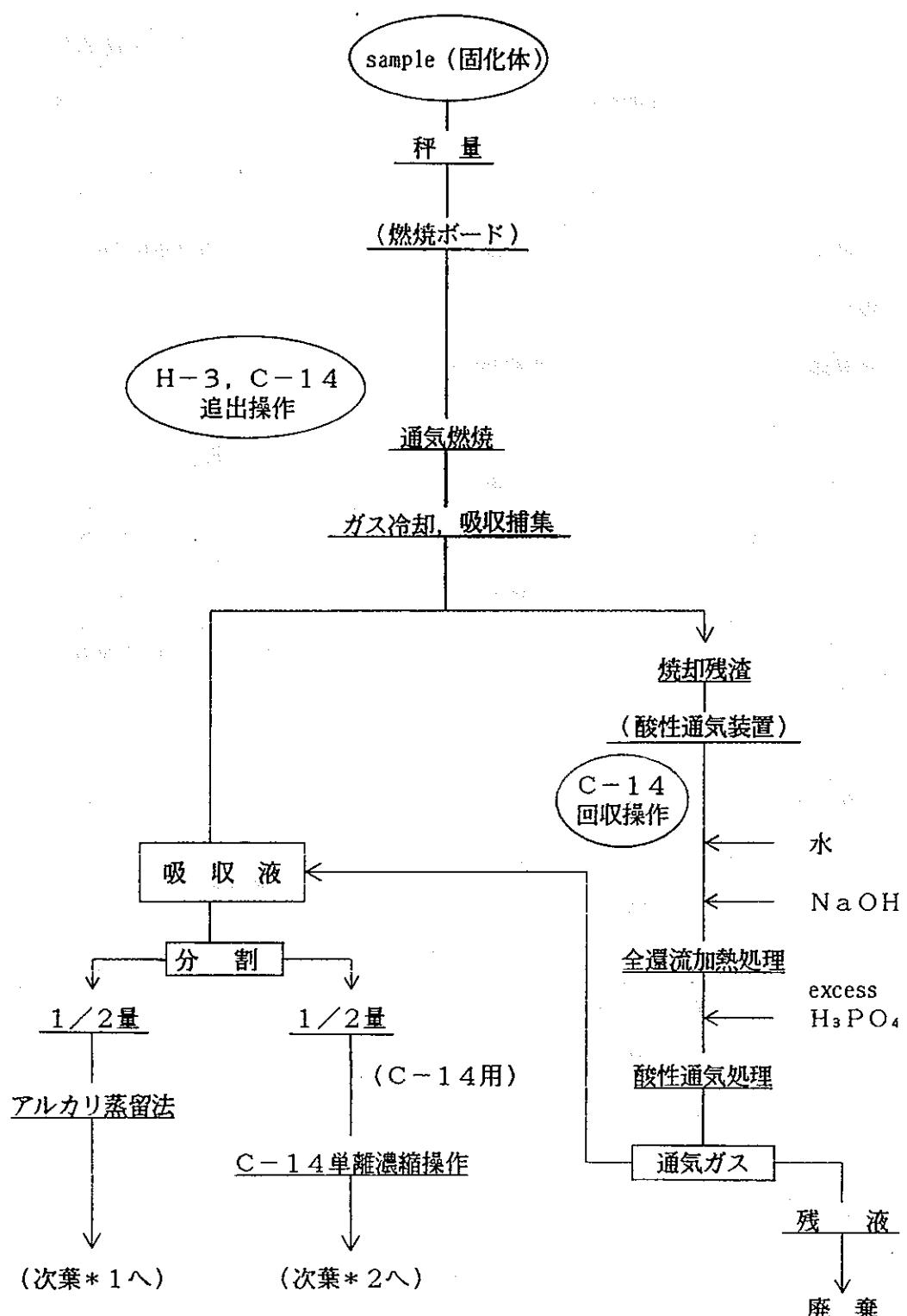


図-4. 12 H-3, C-14粗分離単離計測フローシート 1/2

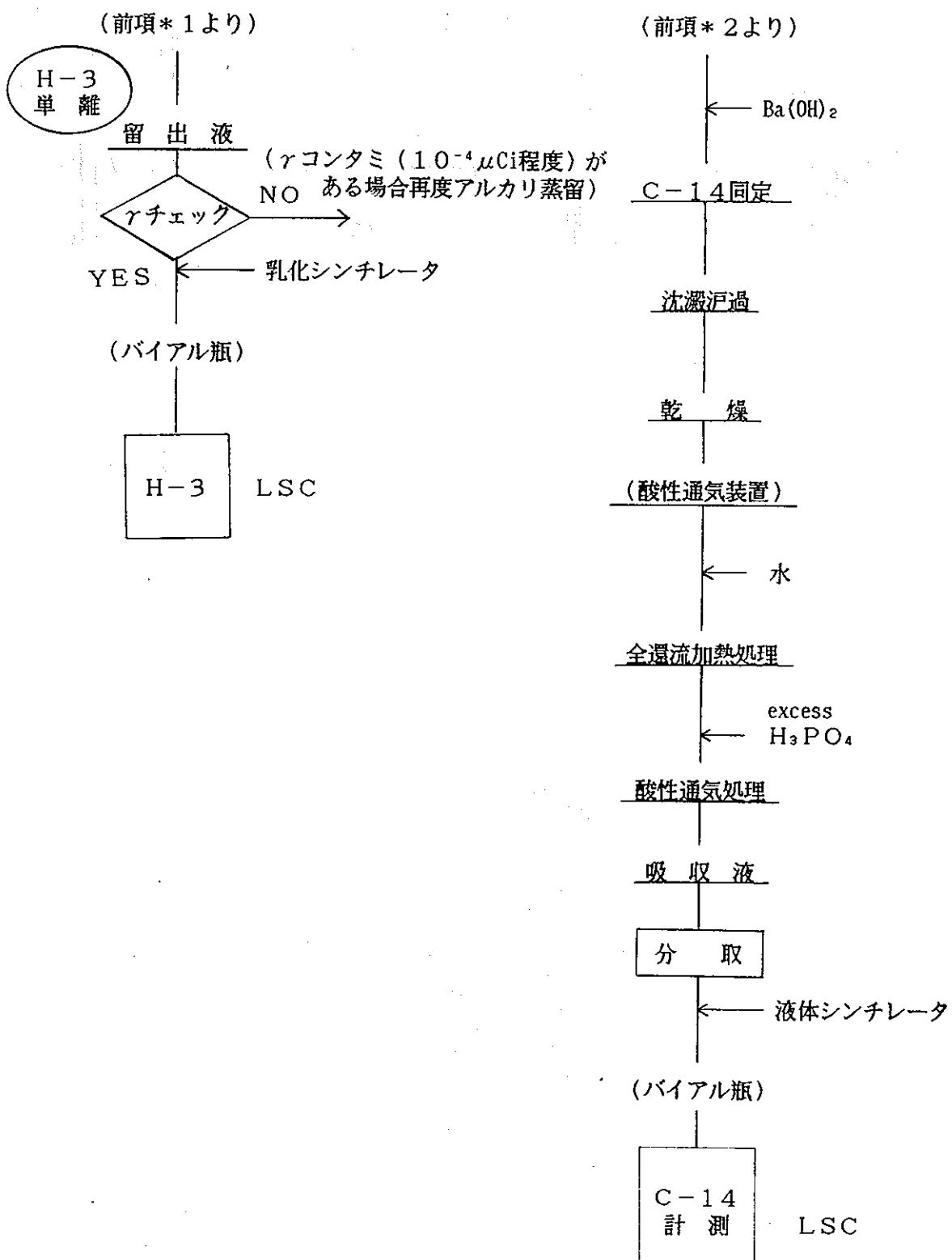


図-4. 12 H-3, C-14粗分離単離計測フローシート 2/2

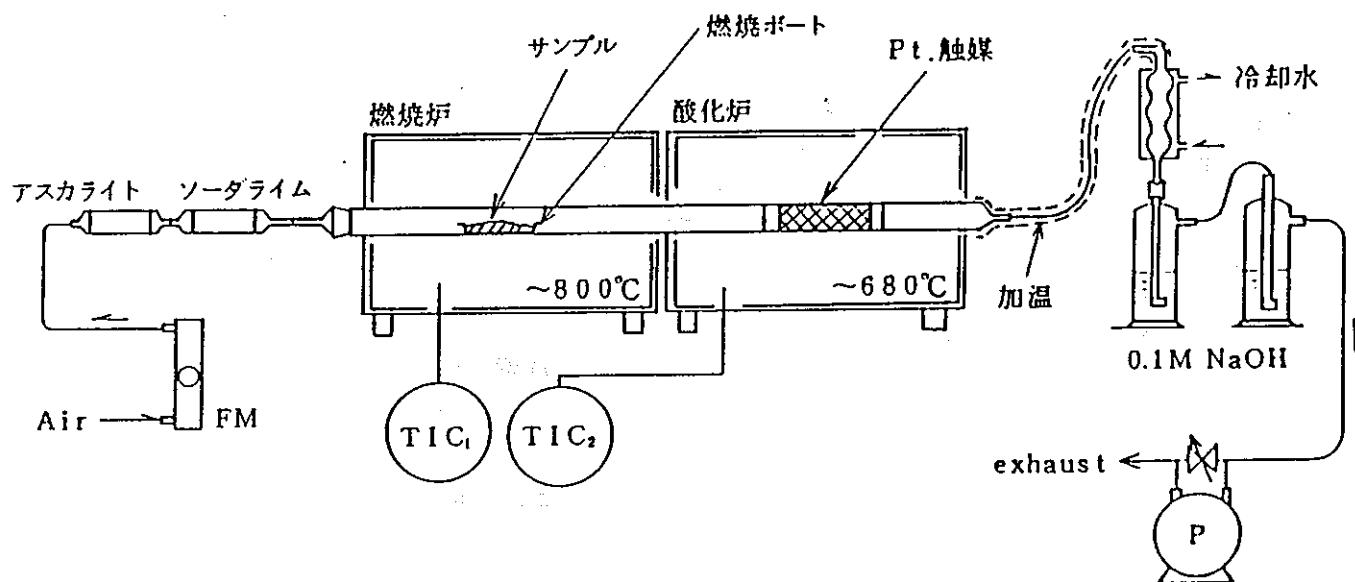


図-4.13 燃焼通気装置

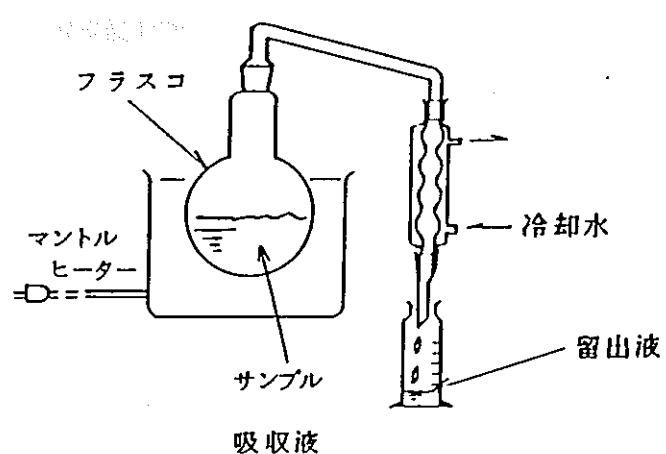


図-4.14 H-3 蒸留装置

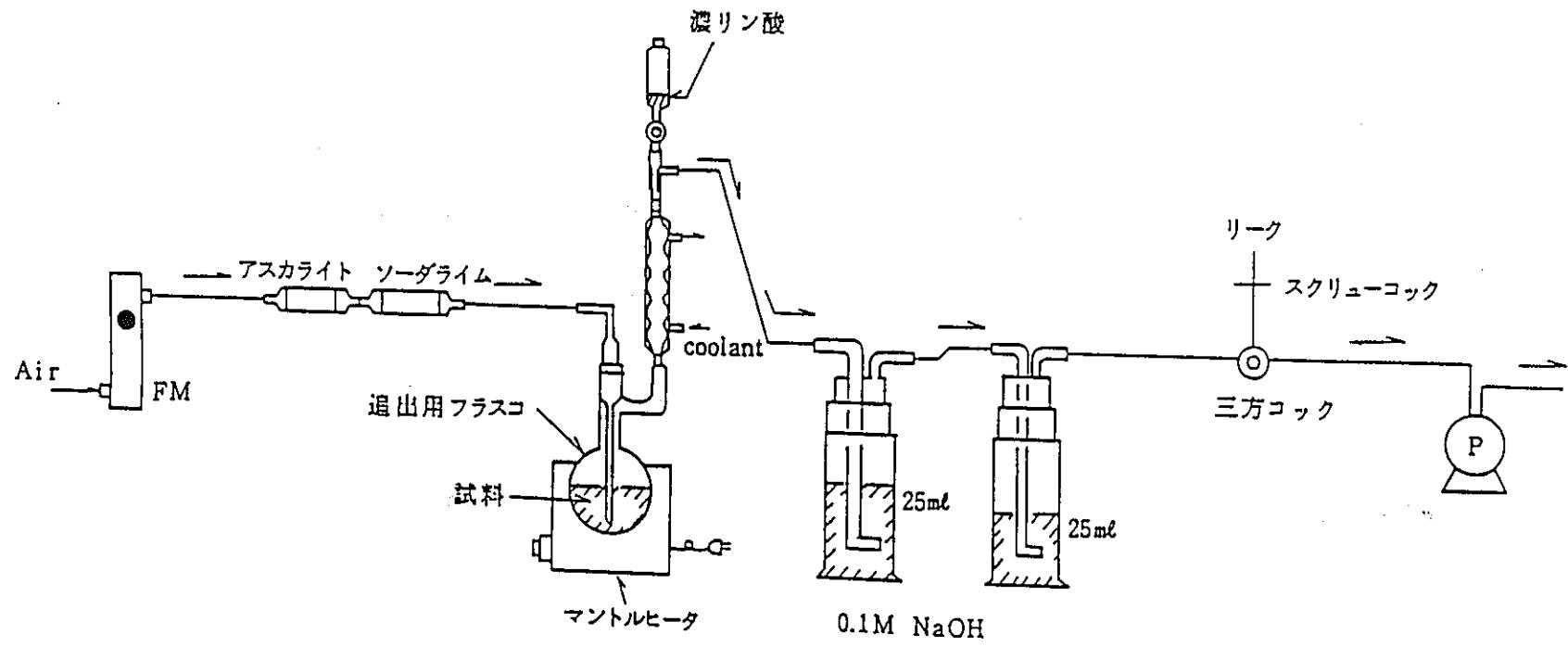


図 4.15 酸性通気装置

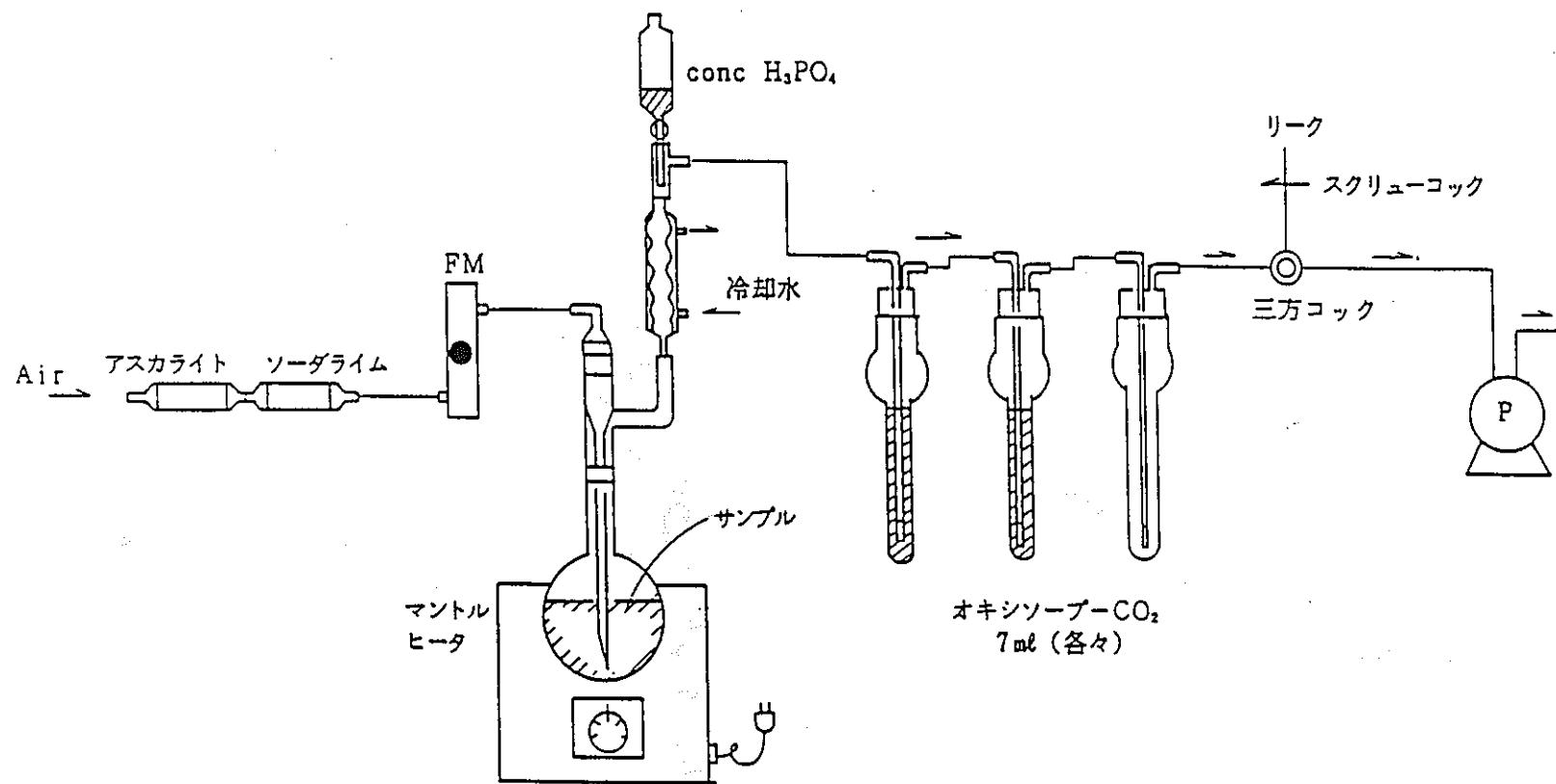


図4.16 C-14単離・濃縮装置

## 5. 開発試験計画

### 5-1 放射化学分析方法の実証試験計画

本報告書中記載の放射化学分析モデルについて実証・改良・検討し放射化学分析方法を確立する。

実証方法としては、前処理・粗分離・単離・計測（放射能計測、回収率計測）について、模擬コールド試験及び模擬ホット試験を実施し、最終的に実証する目的で実固化体の分析を行う。

図-5. 1 に廃棄物固化体放射化学分析手法の開発業務実施概要を示す。

#### 5-1-1 模擬コールド試験

既知量の安定トレーサーを含む模擬固化体を作成し、試料の分解法（溶液化）並びに共存塩分とトレーサーの分離回収法を中心とした検討を行う。安定トレーサー収率、コンタミ元素の種類、量の評価を行い分析手法の実証及び分析条件の最適化を計る。

##### (1) 検討項目

- 模擬固化体製作方法の検討
- 試料灰化条件の検討及び灰化率、対象元素の回収率測定
- 粗分離操作におけるカラム分離性能評価、コンタミ元素の種類把握、トレーサー回収率測定
- 粗分離操作における沈殿分離性能評価

模擬コールド試験では安定トレーサーを用いるため、その測定下限値が放射性核種に比べ極めて高い。このことから単離操作におけるコンタミ核種の除去効率の測定は困難であり、本項目より除外してある。

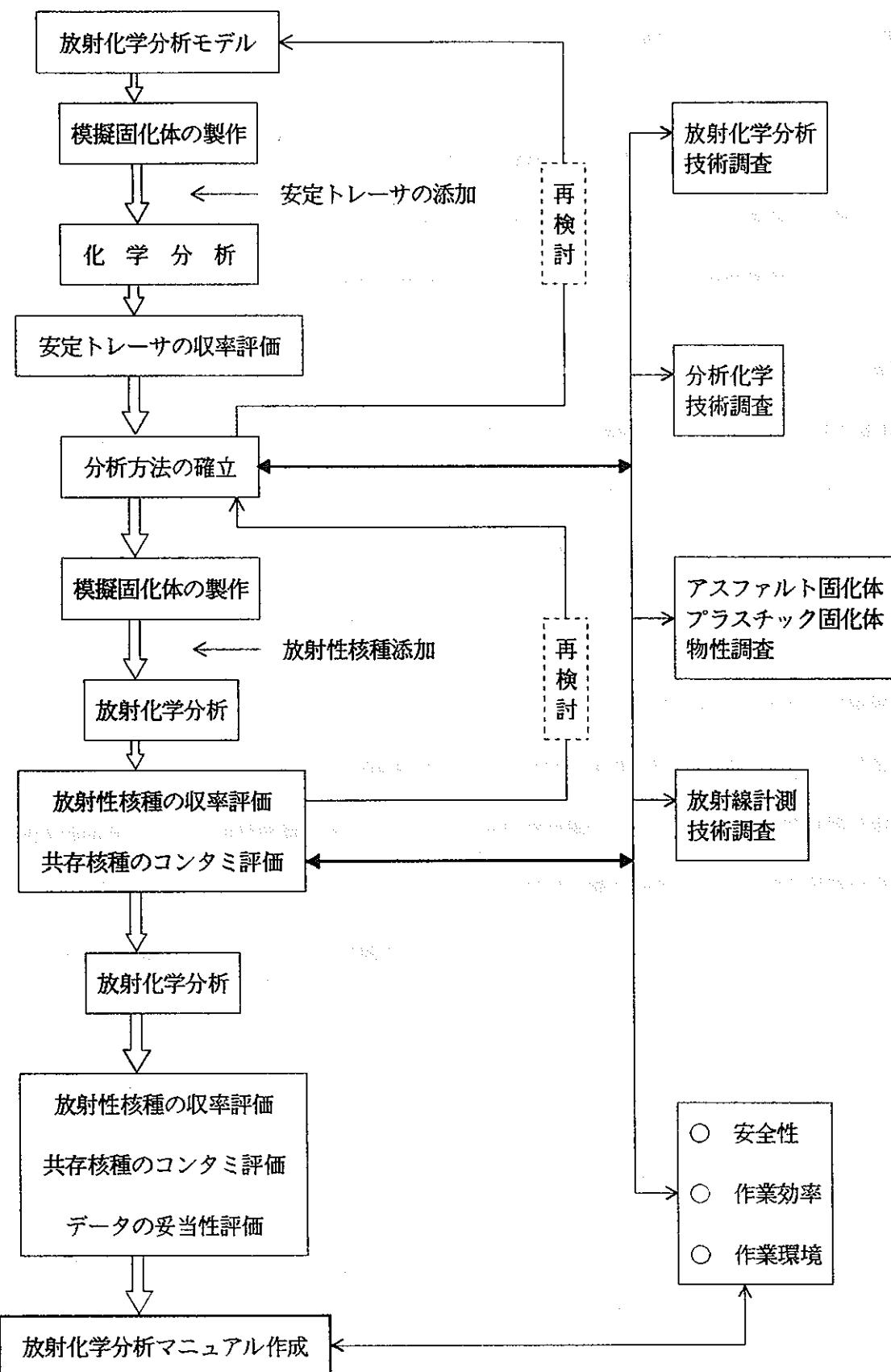


図-5. 1 廃棄物固化体放射化学分析手法の開発業務実施概要

## (2) 試験方法

### a. 模擬固化体の作成

実固化体中に含まれている各核種の存在形態を検討し、下記の元素を含んだ模擬固化体を作成する。

表-5. 1 模擬固化体添加安定核種一覧

対象核種	Ce, Cs, Sb, Ru, Zr, Nb, Co, Sr, Ni, Re, I
F P核種	Rb, Ag, Ba, Cd, Y, Ca, Pr, Nd, Eu, Mo, Te, Br, Rh, Pd
C P核種	Ca, Cr, Mn, Fe, Cu, Hf, Ta, W

対象核種になっていても安定核種が存在しないため、添加できない核種としては下記のものがある。

表-5. 2 模擬固化体非添加核種一覧

対象核種	U, Pu, Np, Am, Cm, Tc
その他	Sm, Pm

### b. 試料前処理方法の検討

低温プラズマ灰化炉の運転条件として灰化時間、灰化温度（高周波出力）、O<sub>2</sub>ガス流量を測定する他、目視で灰化状況を判断する。灰化時の元素飛散率については、灰化試料を溶解・定量し、模擬固化体へ入れたトレーサの量と比較する。

### c. 粗分離手法の確証・検討

模擬固化体を溶液化した試料（予めその中に含まれる元素の量を測定しておく）を用いイオン交換分離性能・沈澱分離性能を評価する。イオン交換樹脂に溶液化試料を負荷し、各溶離液で溶離してきたフラクション中の元素の量を測定し、回収率及びコンタミ元素の有無を評価する。

また溶液化試料負荷時の酸濃度あるいは溶離液種、溶離液量等について種々の条件を設定・検討し最適分離条件を見いだす。また、沈澱分離性能確率のために沈澱剤の添加前後でのD/Fを測定し分離性能を評価する。

### 5-1-2 模擬ホット試験

模擬コールド試験の検討により分析条件の最適化が計られた段階で、さらに放射化学分析条件の最適化としての検討を加える。使用する放射性核種は下記に示す代表核種であり、その選定理由は次のとおりである。

表-5.3 模擬ホット試験・確認用核種一覧

$\alpha$ 核種	$U_{\text{Nat.}}$ , Am-241, Cm-242 (あるいはCm-244)
$\beta$ 核種	H-3, C-14, Ni-63, Sr-90, Tc-99 I-129
$\gamma$ 核種	Co-60, Ru-106 (あるいはRu-103), Sr-85 Cs-137 (あるいはCs-134), I-131, Ce-144 Nb-95, Sb-125, Zr-95, Mn-54, Cr-51 Fe-59, Eu-152

○  $\alpha$ 核種としての代表的な $U_{\text{Nat.}}$ を使用。その他Am, CmはCeとの分離条件用並びに電着計測条件検討用に使用。

○  $\beta$ 核種としてH-3, C-14は試料燃焼方法、その他酸性酸化通気法あるいはアルカリ蒸留法の検討用として用いる。Ni-63は最終確認用として、一般確認用には安定トレーサを代用する。

Sr-90もNi-63同様最終確認用とする。一般確認用としては計測の容易なSr-85 ( $\gamma$ 核種) を用いる。

Tc-99も最終確認用とし、キャリアとして想定しているRe (安定トレーサ) で評価。

I-129も計測が困難であるため、 $\gamma$ 核種のI-131で代用するが、計測評価用としてI-129を用いる。

○  $\gamma$ 核種としては、核種分離挙動を評価するために、対象核種の他に代表的なコンタミ核種であるCo-60, Mn-54, Cr-51, Fe-59, Eu-152を用いる。

#### (1) 検討項目

- 模擬固化体製作方法の検討
- 模擬コールド試験での評価、検討された項目の実証
- 核種単離、精製方法の条件検討並びに実証
- 核種計測方法の検討及び最適化

#### (2) 試験方法

##### a. 模擬コールド試験の実証

試料前処理（灰化及び溶液化）並びに核種粗分離手法について、対象核種並びにコンタミ核種を添加し各パートでの核種回収率、移行挙動及び分離性能等の測定を行い、模擬コールド試験の実証を行う。

##### b. 核種単離・精製手法の条件検討

aで得られた各粗分離フラクションの模擬液を調整し、放射化学モデルに従い単離・精製する。この時のコンタミ核種の除去効率、及び対象核種の回収率について計測し評価すると共に、分析条件の最適化を行う。

##### c. 核種計測方法の検討

対象核種の放射線計測について、その計測器の条件及び測定形状の検討を行い、最適な計測条件を見いだす。

### 5-1-3 実固化体による実証試験

模擬コールド試験、模擬ホット試験によって実証された放射化学分析手法について、実固化体を用い分析確証し、分析マニュアルを作成する。

#### (1) 検討項目

- Np, Puの粗分離・単離・計測手法の確率
- コンタミ核種の移行挙動の調査
- 使用機器の校正及び使用条件の検討
- 作業効率・安全・作業環境の評価

#### (2) 試験方法

##### a. Np, Puの粗分離・単離・計測手法の検討

Np, Puについてはコールド・ホット共に使用していないことから実際の移行挙動や回収率がわかっていない。従って各々Np-234やPu-236等のトレーサーを用い、各パートについてコールド試験やホット試験と同様に検討し、最適条件を見いだすと共に各種挙動を明確化する。

##### b. コンタミ核種の移行挙動の調査

実固化体中に含まれる放射性核種は多種存在することから、これらの各パートごとの核種移行を調査する。

##### c. 使用機器の校正及び使用条件の検討

放射線計測機器の校正として $\gamma$ 線、 $\beta$ 線計測のためのジオメトリー補正用の標準体を作成すると共に液体シンチレーションカウンタのクエンチング補正用の標準を準備する。これらによって校正された計測器について、計測条件を検討する。

## 5-2 使用設備・機器

本開発試験業務で使用する主な設備・機器は以下のとおりである。

### (1) 設備等

- a. 一般化学分析器具類、化学実験必要設備
- b. 低温プラズマ灰化装置、その他前処理用設備・備品
- c. ホットエリア必要設備・器具類
- d. その他必要設備・器具・備品

### (2) 機器類

#### a. 収率測定用

天秤、分光光度計、原子吸光光度計、炎光光度計

高周波誘導プラズマ発光分光分析装置（ICP）

その他関連機材、必要備品、データ処理装置など

#### b. 放射線計測器

液体シンチレーションカウンタ（LSC）、 $2\pi$ ガスフローカウンタ（ピコベータ）

ゲルマニウム半導体検出器、表面障壁型シリコン半導体検出器（SSB）

その他関連機材、必要備品、データ処理装置など

#### c. イオンクロマトグラフ、液体クロマトグラフ、ガスクロマトグラフ、電着装置など

## 5-3 まとめ

放射化学分析手法の開発計画として、コールド試験、ホット試験、さらに実固化体による実証試験を順次実施し、分析マニュアルを完成させる方向性を提示した。前処理・粗分離・単離・計測について対象核種のみならず、コンタミ核種の妨害を鑑みながら、最適条件の索出並びに本報告書中の放射化学分析手法モデルの実証をし、最終目的である廃棄物固化体の分析マニュアルを作成する。

## 6. あとがき

本調査業務では、軽水炉核燃料再処理施設で発生する低放射性廃棄物固化体中に含まれる核種の放射化学分析方法の確立を目的とし、主に分離分析手法について調査、検討を行った。また、各固化体の熱的特性から、前処理方法の検討をし、かつ放射能計測方法及び回収率測定方法並びに機器の選定を行った。さらに、最終的に放射化学分析手法のモデルを作成し、それらの実証のための開発試験計画を行った。

今後は、一般分析手法を含め、放射性廃棄物固化体の放射化学分析方法の動向並びに化学的挙動研究動向に留意しつつ放射化学分析法の確立を計っていく。

## 7. 参考文献・図書

INDEX No	タイトル
1)	「群分離法の開発：シュウ酸による超ウラン元素の沈澱分離法」 JAER I-M88-026 (1988) 日本原子力研究所 小林 勉・森田 泰治・久保田 益充
2)	「群分離法の開発：DIDPA溶媒中のアクチニドの逆抽出挙動」 JAER I-M-88-028 (1988) 日本原子力研究所 久保田 和雄・森田 泰治・久保田 益充
3)	「群分離法の開発：動燃再処理廃液による群分離試験—その1」 JAER I-M-83-011 (1983) 日本原子力研究所 久保田 益充・山口 五十夫・岡田 賢造・森田 泰治・中村 治人
4)	「群分離法の開発：動燃再処理廃液による群分離試験—その2」 JAER I-M-84-070 (1984) 日本原子力研究所 山口 五十夫・久保田 益充・岡田 賢造・森田 泰治・中村 治人
5)	「超プルトニウム元素と希土類元素の陽イオン交換分離」 JAER I-M-5785 (1974) 日本原子力研究所 梅沢 弘一・市川 進一・夏目 晴夫
6)	「原子炉内の放射性核種」 JAER I-M82-169 (1982) 日本原子力研究所 吾勝 永子
7)	「Radioactive waste: advanced management methods for medium active liquid waste」 K. W. Carley-Macamly [Haward Academic Publishers 1981]
8)	「NUCLEAR ANALYTICAL CHEMISTRY III」 J. Tolgyessy, S. Varga. [University Park Press 1974]
9)	「Gmelin Handbook of Inorganic Chemistry ; Tc SUPPLEMENT VOLUME 2」
10)	「Radiochemical Methods in Analysis」 D. I. Coomber. [1975]
11)	「放射性廃棄物処理に関する研究開発」 天沼 潤・阪田 貞弘 〔産業技術出版及びテクノプロジェクト 1983〕
12)	「 $^{129}\text{I}$ Analysis Methodology」 F. P. Brauer, H. Tenny [1975]
13)	「RADIOCHEMICAL SEPARATION METHODS」 T. Braun, E. Budoso [1975]
14)	「DETERMINATION OF TRACE URANIUM IN PUREX AQUEOUS WASTE WITH ARSENazo III」 Elizabeth W. Baumann [US ERDA Rep, 1977]

- 15) 「Study of Transuranium Concentration Levels in Solid Radioactive Waste From Commercial Power Reactors」  
J. E. Cline, D. C. Hetzer [1978]
- 16) 「ACTINIDE ANALYTICAL PROGRAM FOR CHARACTERIZATION OF HANFORD WASTE」  
S. J. Johnson, W. I. Winters [1977]
- 17) 「ADVANCES IN MEASUREMENT OF ALPHA-CONTAMINATED WASTES」  
D. A. Close, T. W. Crane, J. T. Caldwell,  
W. E. Kunz, E. R. Shunk, J. C. Pratt,  
[US DOE Rep, 1982]
- 18) 「Measurement of the plutonium content in low activity waste containers from reprocessing plant」  
P. Cresti, F. V. Frazzoli, G. Grossi
- 19) 「MESUREMENT OF TRANSURANIC CONTENT IN WASTES」  
J. T. Caldwell, D. A. Close, T. W. Crane, T. H. Kuckertz, W. E. Kunz, R. Morgado, J. C. Pratt, E. R. Shunk, C. J. Umbarger  
[Nucl Chem Waste Manage, 1983]
- 20) 「A Rapid Method for the Determination of Americium-Curium, plutonium, and Thorium in Biological and Environmental Samples」  
[Health Physics, 1983]
- 21) 「OPERATIONAL EXPERIENCE RELATING TO MEASUREMENT OF PLUTONIUM IN SOLID AND LIQUID WASTE STREAMS FROM FAST BREEDER REACTOR FUEL REPROCESSING」  
W. B. Bremner, M. L. Clark, B. W. Spence  
[Nucl Sateguards Technal, 2. 463. 1982]
- 22) 「High sensitivity Bulk TRU waste assay」  
C. C. Thomas, Jr. Ron Kathren
- 23) 「A survey of the current and potential analytical techniques for the speciation of radionuclides in nuclear waste repository groundwaters and simulation leachates」  
P. M. Pollard  
[UK At Energy Auth, 44, 1985]
- 24) 「Radiochemical Determination of Tc-99 and Release of Tc-99 from Nuclear Facilities」  
B. Bohn, H. J. Luxenburger, H. Schuttekkopf  
[Technetium Environ, 29, 1986]

- 25) 「Measurement of  $^{99}\text{Tc}$  in Low-Level Radioactive Waste from Reactors using  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  as a Tracer」  
J. E. Martin, J. M. Hylko  
[Appl. Radiat. Isot, 38. 6. 447, 1987)
- 26) 「The Determination of Strontium-90 and strontium-89 in Water without separation of strontium from Calcium」  
J. G. T. Regan, J. F. C. Tyler  
[Analyst, 101. 1198. 32, 1976]
- 27) 「廃水中の  $^{129}\text{I}$  の分析方法」  
江尻 英夫、野村 保、大和 愛司、平山 昭生  
[日本原子力学会予稿集, 1977. 2. 207, 1977]
- 28) 「APPARATUS AND METHOD FOR QUANTITATIVE ASSAY OF GENERIC TRANSURANIC WASTES FROM NUCLEAR REACTORS」  
John T. Caldwell, Walter E. Kunz James D. Atencio
- 29) 「EXPERIENCES IN THE RADIOCHEMICAL ANALYSIS OF THE PRIMARY COOLANT OF WWER TYPE NPPs USING INORGANIC ION EXCHANGERS」  
L. Gy. Nagy, J. Solyomosi, M. Vodicska, N. Vajda, P. Zagyvai, J. Bogancs. [1984]
- 30) 「RADIOCHEMICAL DETERMINATION OF RUTHENIUM-106 IN URINE」  
M. Naumann, G. Ubl  
[Radioanal. chem, 21. 2. 497, 1974]
- 31) 「Spectrophotometric Determination of uranium in Nuclear Waste」  
William I. Winters [1976]
- 32) 「X-RAY FLUORESCENCE SPECTROMETRIC DETERMINATION OF THORIUM IN NUCLEAR FUELS PROCESSING WASTES」  
S. G. Metcalf  
[Nucl. Chem. Acta, 73. 297, 1977]
- 33) 「THE DETERMINATION OF PLUTNIUM IN LIQUID WASTES FROM THE WAK-REPROCESSING PLANT」  
R. Berg [1979]
- 34) 「DESTRUCTIVE METHODS THAT CAN BE PUT INTO USE FOR ANALYSIS OF FISSION MATERIAL IN A REPROCESSING PLANT」  
W. Coerdt, S. Flach, W. Konig, E. Mainka K. Matern, J. Neuber, H. G. Muller  
[US DOE Rep]

- 35) 「TECHNIQUES FOR THE QUANTITATIVE ANALYSIS OF FISSION-PRODUCT NOBLE METALS」  
A. W. Lautensleger, F. T. Hara  
[US DOE Rep. 1982]
- 36) 「A RAPID METHOD OF EXTRACTION OF URANIUM AND THORIUM FROM GRANITE FOR ALPHA SPECTROMETRY」  
M. Gascoyne, J. P. A. Larocque  
[Nucl Instrum Methods Phys Res Sect A]
- 37) 「DETERMINATION OF ALPHA EMITTERS IN COMBUSTIBLE SOLID MATERIALS」  
T. Kimura, Y. Kobayashi  
[J Radioanal Nucl Chem, 94. 6. 38, 1985]
- 38) 「I-129 ANALYSIS IN RADIOACTIVE WASTE」  
J. P. Ryan, W. G. Winn  
[US DOE Rep. 1985]
- 39) 「DETERMINATION OF I-129 AT NATURAL LEVELS BY THERMAL NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS」  
G. J. Lutz, H. L. Rook, R. M. Lindstrom  
[J. Trace and Microprobe Techniques, 12. 33, 1984]
- 40) 「ANALYSIS OF NATURAL RADIONUCLIDES URANIUM AND THORIUM SERIES IN BRINEY GROUNDWATERS」  
J. C. Lau I, M. R. Smith, C. W. Thomas, P. O. Jackson, N. Hubbard  
[J. Radioanal Nucl Chem, 110. 1. 101, 1987]
- 41) 「DETERMINATION OF LONG-LIVED RADIONUCLIDES IN ENVIRONMENTAL MEDIA AROUND A NUCLEAR FUEL REPROCESSING-PLANT」  
B. T. Wilkins, S. P. Stewart, R. O. Major  
[J. Radioanal Nucl Chem, 115. 2. 249, 1987]
- 42) 「COMPARISON OF VARIOUSLY PRETREATED IRON-EXCHANGE RESINS FOR  $^{131}\text{I}$  SEPARATION FROM AQUEOUS SOLUTIONS」  
V. Jansta  
[J. Radioanal Chem, 80. 1-2. 81, 1983]