

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
変更する。 2001. 6. 20
[技術情報室]

運 転 要 領 書 (II)
(分析マニュアル)
放射能分析編 (第2報)

1981年7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

運転要領書(Ⅱ) (分析マニュアル)放射能分析編(第2報)



実施責任者	宮原 顕治*	朝倉 祥郎
報告者	桜井 明**	鏡 和巨
	入之内重徳	高瀬 公一***
	石黒 信治	黒沢 明
	吉沼 明彦	酒井 貞友
	小野 俊彦	尾崎 政見

(以上再処理工場 工務部分析課)

期間 昭和56(1981)年4月1日

目的 再処理工程試料の放射能分析の規格化を行なう。

要旨 再処理工程からの試料の放射能分析方法についてマニュアル化したものである。

本編は、特に特殊分析関係の分析方法について編集したもので放射線スペクトルの解析法および再処理工程試料の核種の分析法に分類して記述した。

* 現 再処理工場廃棄物処理課長

** 現 // 化学処理課

*** 現 // 管理課保障措置室

目 次

1. 通則	1
2. 試薬調整法	6
2.1 一般試薬の調整法	7
2.1.1 ヨウ化カリウム溶液 (10mg I/ml)	7
2.1.2 亜硫酸ナトリウム溶液 (0.5%)	7
2.1.3 塩酸ヒドロキシルアミン溶液 (35%)	7
2.1.4 硝酸第二鉄溶液 (10%)	8
2.1.5 亜硝酸ナトリウム溶液 (10%)	8
2.1.6 TTAキシレン溶液 (11.1%)	9
2.1.7 硫酸第一鉄溶液 (0.001 M)	9
2.1.8 スルファミン酸第一鉄溶液	9
2.1.9 TBP-n・ドデカン溶液 (TBP 30%)	10
2.1.10 シュウ酸 (0.5%)	10
2.1.11 塩化アンモニウム溶液 (5%)	11
2.2 放射性同位元素標準溶液の種類と保有量	11
2.3 密封放射性同位元素標準線源の種類と量	13
3. スペクトルの解析法	15
3.1 γ 線スペクトルの解析法	16
3.2 α 線スペクトルの解析法	24
4. 再処理工程試料の核種分析法	32
4.1 γ 線放出核種の分析法	32
4.1.1 プール水中の ⁶⁰ Co, ¹³⁷ Csの分析法 (オートウェルシステム測定法)	33

4.1.2	核分裂生成物 (^{241}Am , ^{155}Eu , ^{154}Eu , ^{144}Ce , ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{125}Sb , ^{106}Ru , ^{103}Ru , ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{60}Co) の分析法 [Ge(Li) 検出器による γ 線スペクトロメトリー]	36
	35・222・55・FP・01 (1980)	
	(35・432・55・FP・01) (1980)	
4.1.3	三酸化ウラン製品中の核分裂生成物 (^{144}Ce , ^{137}Cs , ^{106}Ru , ^{103}Ru , ^{95}Zr , ^{95}Nb) の分析法 [Ge(Li) 検出器による γ 線スペクトロメトリー]	43
	35・271・55・FP・01 (1980)	
4.1.4	硝酸プルトニウム製品中の核分裂生成物 (^{144}Ce , ^{137}Cs , ^{106}Ru , ^{103}Ru , ^{95}Zr , ^{95}Nb) の分析法 [Ge(Li) 検出器による γ 線スペクトロメトリー]	49
	35・282・55・FP・01 (1980)	
4.1.5	硝酸プルトニウム製品中の ^{241}Am の分析法 [Ge(Li) 検出器による γ 線スペクトロメトリー]	54
	35・282・55・Am・01 (1980)	
4.1.6	^{129}I の分析法 (四塩化炭素抽出/Ge(Li) 検出器による γ 線スペクトロメトリー)	58
	35・222・51・I・129・01 (1980)	
4.2	α 線放出核種の分析法 (35・432・51・I・129) 01 (1980)	62
4.2.1	三酸化ウラン製品中の微量プルトニウムの分析法 (TTA 抽出/Si 検出器による α 線スペクトロメトリー)	63
	35・271・51・Pu・01 (1980)	
4.2.2	プルトニウム中の ^{238}Pu の分析法 (Si 検出器による α 線スペクトロメトリー)	67
	35・892・54・Pu・238・01 (1980)	
4.2.3	キュリウムの分析法 (Si 検出器による α 線スペクトロメトリー)	72
	35・222・54・Cm・01 (1980)	
4.2.4	三酸化ウラン中の非ウラン α 放射能の分析 (溶媒抽出- α -スペクトロメトリー)	75
	35・271・54・Pu・Am・Cm・NP 01 (1980)	
4.2.5	ネプツニウムの分析 (TTA 抽出- α -スペクトロメトリー)	85
	35・222・54・NP-237・01 (1980)	
4.3	β 線放出核種の分析法	89
4.3.1	トリチウムの分析法 (イオン交換分離・液体シンチレーション測定法)	90
	35・222・57・H-3・01 (1980)	
4.3.2	ストロンチウム-90 の分析法 (イオン交換分離法)	96
	35・442・58・Sr-90・01 (1980) (35・222・58・Sr・90)	

4.4	その他の分析	100
4.4.1	全 α 、全 β の分析法 (α 線, β 線同時計数法)	101
	35・452・58 ALPHA・BETA・01 (1980)	
4.4.2	全 r の分析法 (r 線計測法)	106
	35・452・58 GAMMA・01 (1980)	

付録-1

- 図A-1 再処理工程における核分裂生成物の濃度 (PWR 燃料処理時)
- 図A-2 抽出工程における核分裂生成物の濃度 (PWR 燃料処理時)
- 表 -1 再処理分析課における放射性同位元素の使用許可と数量

付録-2 教育資料「 α -計数法によるプルトニウムの測定」

1. 通 則

1. 通 則

本通則は、本標準作業法で使用している共通事項について定めたもので、文章上特記されていない場合は本通則によるものとする。

- (1) 再処理工場で対象となっている試料はプルトニウム、ウランおよび核分裂生成物等の放射性試料であるため、その取扱操作については十分注意する必要がある。特にヒュームフードでの試料の調整に当っては、分析運転要領書(I)に従って行なう。
- (2) 試薬はすべて純良なものを用い、特に指定されているもののほかはJIS特級試薬またはこれと同等品を用いる。
- (3) 水は蒸留またはイオン交換法で精製したものを用いる。
- (4) 単に溶液と称し溶媒を示さないものはすべて水溶液を指す。
- (5) 単に塩酸、硝酸、硫酸などと記したものはそれぞれつぎの濃度のものを指す。

名 称	化 学 式	濃 度 %	比 重
塩 酸	HCl	約 35	1.18
硝 酸	HNO ₃	約 60	1.38
硫 酸	H ₂ SO ₄	約 95	1.84
り ん 酸	H ₃ PO ₄	約 85	1.70
過 塩 素 酸	HClO ₄	約 60	1.55
ふっ化水素酸	HF	約 46	1.14
過酸化水素水	H ₂ O ₂	約 30	1.33

- (6) 溶液の濃度を(1+2)のような記号で表わしたものは液体試薬と水の混合割合を示すものでたとえば硝酸(1+2)は硝酸(60%比重1.38)1容と水2容の割合で混合したものを意味する。
- (7) 溶液の濃度を%で表わしたもので溶質が固体のときは特に指定しないかぎり溶液100ml中の無水物のg数を示す。また溶質が液体のときは溶液100ml中の溶質のml数を示す。
- (8) 液体試薬または水の測定法で、表示により次の測容方法で操作する。

表 現 例	用いる測容方法
" 約 5 ml "	目分量ではかる
" 5 ml "	メスシリンダー
" 正確に 5 ml "	ピペットまたはビュレット

- (9) 固体試薬の重量はかりとり法は、表示により次のはかり方で操作する。

表 現 例	用いる測容方法
“ 約 5 g ”	目分量 (なるべく 10 % の範囲)
“ 5 g ”	上皿はかり
“ 正確に ”	} 化学天秤ではかる
“ 5.000 g ”	

- (10) 温度の記述は、標準温度 20℃、常温は 15～25℃、室温は 1～35℃とする。
- (11) メスフラスコ中で溶液を標線まで希釈した場合は、栓を付け倒立し混合する。
- (12) プルトニウム、ウランの質量は次表の数値を用いる。

同位体	質 量
²³⁴ U	234.0409
²³⁵ U	235.0439
²³⁶ U	236.0457
²³⁸ U	238.0508
天然ウラン	238.03

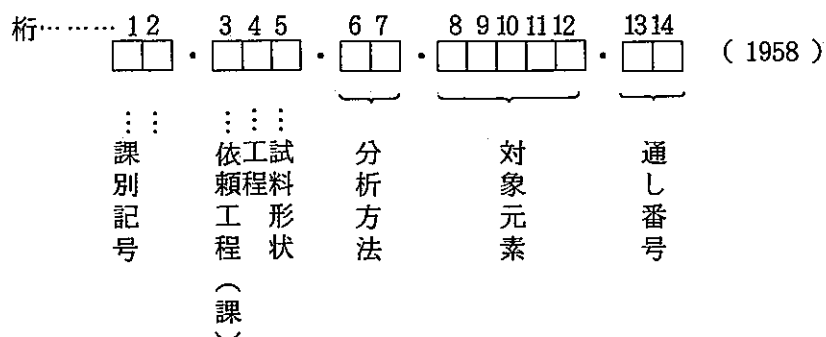
同位体	質 量
²³⁸ PU	238.0495
²³⁹ PU	239.0522
²⁴⁰ PU	240.0540
²⁴¹ PU	241.0567
²⁴² PU	242.0587

- (13) プルトニウムの平均原子量は次式により求める。

$$\text{プルトニウムの原子量} = [(W_{238} \cdot M_{238}) + (W_{239} \cdot M_{239}) + (W_{240} \cdot M_{240}) + (W_{241} \cdot M_{241}) + (W_{242} \cdot M_{242})] \times 1 / 100$$
 ただし、 W_i : プルトニウム同位体含有率 (%)
 M_i : 同位体別分子量

- (14) 用語および単位は、分析化学会誌、JISなどを参考に統一してある。
- (15) 分析方法、番号については次の方法により統一してある。

イ 桁取り (カラム番号) は次の通り



- ロ 意味付は次の通り
番号とその意味は表 1.1 および表 1.2 に示す。

表 1.1 標準分析作業法 番号表

記事	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9
1 課別記号				再処理分析						
2	共通一般	一般分析方法	計量分析	受入分析	製品分析	放射能分析				その他
3 依頼工程(課)		前処理	主工程		廃棄物処理	保守		OTL	分析	その他
4 工程		Unit 201 (放射性)	主工程	廃棄物処理 工程		地下浸透水等	Unit 275	UO ₃ 製品	Pu(NO ₃) ₄ 製品	その他
5 試料形状		固体	液体 (水相)	液体 (有機相)	気体	液体 (水相&有機相)				
6 分析方法	表-1.2による									
7										
8 対象元素	ウラン : U	酸 : H	全塩 : SO ₄	蛍光X線法 : X-RAY	アメリカウム : Am					
9	プルトニウム : Pu	水酸基 : OH	化学的酸素量 : COD	塩素 : CL	キュリウム : Cm					
10	gross α : ALPHA	ヒドラジン : N ₂ H ₄	油分 : OIL	フッ素 : F	ネプツニウム : NP					
11	gross γ : GAMMA	亜硝酸 : NO ₂	密度 : DENST	鉄 : FE	ヨウ素 : ¹²⁹ I					
12	gross β : BETA	TBP : TBP	原子吸光法 : A ABS	核分裂生成物 : FP	ストロンチウム : ⁹⁰ Sr					
13 通し番号	1~12桁まで一ヶ所でも異なる場合は01より通し番号とする。									
14										
() 制定年	()内に西暦で記入									

表-1.2 分析法別番号表

記号		記号	
10	湿式化学分析法	47	
11	重量分析法	48	
12	中和滴定法	49	その他
13	沈殿 "		
14	酸化還元 "	50	放射能分析法
15	キレート "	51	放射化学分析法
16		52	放射化 "
17		53	同位体希釈放射能測定法
18		54	α 線スペクトロメトリ
19	その他	55	γ 線 "
		56	中性子線法
20	電気分析法	57	液体シンチレーション測定法
21	電位差滴定法	58	放射能測定法
22	電流 "	59	その他
23	電導度 "		
24	イオン電極法	60	分離分析法
25	クーロメトリ	61	ガス分析法
26	ポーラログラフ分析法	62	ガスクロマトグラフ分析法
27		63	イオン交換クロマトグラフ
28		64	
29	その他	65	
		66	
30	光学分析法	67	
31	吸光分析法	68	
32	原子吸光 "	69	その他
33	炎光, けい光, りん光 "		
34	発光 "	70	熱分析法
35	比濁	71	示差熱分析法
36	赤外分光 "	72	熱天秤 "
37		73	カロリメトリ "
38		74	
39	その他	75	
		76	
40	X線分析法・質量分析法	77	
41	X線回折法	78	
42	けい光X線分析法	79	その他
43	X線吸収法		
44	X線マイクロアナライザ分析法	80	
45	質量分析法(4重極ガス分析含む)		
46		90	その他の分析法
		91	物理測定法

2. 試 藥 調 整 法

2.1 一般試薬の調整方法

2.1.1 ヨウ化カリウム溶液（10 mgI / ml）の調整法

1. 使用試薬

ヨウ化カリウム：KI（JIS・K 8913）

2. 調整方法

ヨウ化カリウム1.31 gを水に溶解し、水で100 mlに希釈する。

3. 性状

無色の結晶または白色の結晶性粉末で潮解性があり水に溶けやすい。

4. 試薬の保管方法

冷暗所に保管する。

5. 適用範囲

分析成分	分 析 方 法	分 析 番 号
¹²⁹ I	四塩化炭素抽出/Ge(Li) γ スペクトロメトリー	35, 222, 51, I-129, 01 35, 432, 51, I-129, 01

2.1.2 亜硫酸ナトリウム溶液（0.5%）の調整法

1. 使用試薬

亜硫酸ナトリウム：Na₂SO₃（JIS・K 8061）

2. 調整方法

亜硫酸ナトリウム0.5 gを水に溶解し、水で100 mlに希釈する。

3. 性状

白色の結晶性粉末で、水に溶けやすい。

4. 適用範囲

分析成分	分 析 方 法	分 析 番 号
¹²⁹ I	四塩化炭素抽出/Ge(Li) γ スペクトロメトリー	35, 222, 51, I-129, 01 35, 432, 51, I-129, 01

2.1.3 塩酸ヒドロキシルアミン溶液（35%）の調整法

1. 使用試薬

塩酸ヒドロキシルアミン：NH₂OH・HCl（JIS・K 8201）

2. 調整方法

塩酸ヒドロキシルアミン35 gを水に溶解し、水で100 mlに希釈する。

3. 性状

無色潮解性の結晶で水にきわめて溶けやすく、エチルアルコールに溶ける。

4. 適用範囲

分析成分	分 析 方 法	分 析 番 号
Pu, Np, Am, Cm	溶媒抽出- α 線計測法	35. 271. 54. Pu, Np, Am, Cm. 01
Pu	TTA抽出-Si検出器による α 線スペクトロメトリー	35. 271. 54. Pu. 01

2.1.4 硝酸第二鉄溶液（10％）の調整法

1. 使用試薬

硝酸第二鉄： $\text{Fe}(\text{NO}_3)_2 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ （JIS・K 8559）

2. 調整方法

硝酸第二鉄16.7 gを水で溶解し100 mlに希釈する。

3. 性状

帯紫色透明の潮解性のある結晶で、たやすく褐色に変わる。水に極めて溶けやすい。

4. 適用範囲

分析成分	分 析 方 法	分 析 番 号
Pu	TTA抽出-Si検出器による α 線スペクトロメトリー	35, 271, 51, Pu・01

2.1.5 亜硝酸ナトリウム溶液（10％）の調整法

1. 使用試薬

亜硝酸ナトリウム： NaNO_2 （JIS・K 8019）

2. 調整方法

亜硝酸ナトリウム10 gを水に溶解し、水で100 mlに希釈する。

3. 性状

白色もしくは微黄色の結晶性粉末または粒状で潮解性があり、水に溶けやすい。

4. 試薬の保管方法

冷暗所に保存する。（屋内貯蔵は木の床は不可）

5. 適用範囲

分析成分	分 析 方 法	分 析 番 号
Pu, Np, Am, Cm	溶媒抽出- α 線計測法	35. 271. 54. Pu, Np, Am, Cm. 01
Pu	TTA抽出-Si検出器による α 線スペクトロメトリー	35. 271. 54. Pu. 01

2.1.6 TTAキシレン溶液（11.1％）の調整法

1. 使用試薬

- (1) TTA（テノイル三沸化アセトン）： $C_8H_5O_2SF_3$
- (2) キシレン： $C_6H_4(CH_3)_2$ （JIS・K 8271）
- (3) 硝酸（1+13）： HNO_3 （JIS・K 8541）

2. 調整方法

- (1) TTA 11.1 g をキシレン 100 ml に溶解する。
- (2) TTA-キシレン溶液を 500 ml の分液ロートに移し、硝酸（1+13）100 ml を 15 分間攪拌したのち、5 分間静置後水相を捨て有機相を褐色ポリビンに保存する。

3. 性状（キシレン）

特異の臭気がある無色、透明、揮発性の液体で、光線を強く屈折し、また引火性がある。

4. 試薬の保管方法

使用期間は調整後 5 日間とし、褐色ビンで保管する。

5. 適用範囲

分析成分	分析 方 法	分析 番 号
Pu, Np, Am, Cm	溶媒抽出- α 線計測法	35. 271. 54. Pu, Np, Am, Cm. 01
Pu	TTA抽出-Si検出器による α 線スペクトロメトリー	35. 271. 54. Pu. 01

2.1.7 硫酸第一鉄溶液（0.001 M）の調整法

1. 使用試薬

硫酸第一鉄： $FeSO_4 \cdot 7H_2O$ （JIS・K 8978）

2. 調整方法

硫酸第一鉄 28 mg を水で溶解し 100 ml に希釈する。

3. 性状

白っぽい緑の結晶性の粉末で、空气中で風化する。水に溶けやすい。

4. 調整時の注意

使用の都度調整する。

5. 適用範囲

分析成分	分析 方 法	分析 番 号
^{238}Pu	Si検出器による α 線スペクトロメトリー	35. 892. 54. Pu-238. 01

2.1.8 スルファミン酸第一鉄溶液の調整法

1. 使用試薬

- (1) スルファミン酸：HOSO₂NH₂（JIS・K 8587）
 (2) 環元鉄：Fe（K 8262）

2. 調整方法

スルファミン酸 35 g，環元鉄 6.7 g を水 200 ml で溶解し 400 ml に希釈する。

3. 性状

スルファミン酸は，無色又は白色の結晶で水に溶けやすい。環元鉄は，光沢のない灰黒色の粉末である。

4. 試薬の保管方法

かっ色ビンに保存する。

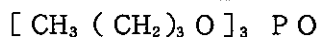
5. 適用範囲

分析成分	分析方 法	分析番 号
Pu,Np,Am,Cm	溶媒抽出-α線計測法	35.271.54.Pu,Np,Am,Cm.01

2.1.9 TBP-n-ドデカン（30％）の調整法

1. 使用試薬

- (1) TBP：（リン酸トリ-n-ブチル）



- (2) n-ドデカン：CH₃(CH₂)₁₀CH₃

- (3) 硝酸（3+11）：HNO₃（JIS・K 8541）

2. 調整方法

分液ロート（容量 2 l）に TBP 150 ml と n-ドデカン 350 ml を採取し，あらかじめ調整した硝酸（3+11）500 ml を加え 5 分間振とうする。5 分間静置後，水相を捨てる。

3. 性状（TBP）

無色の液体で比重は 0.979 でエチルアルコール，エーテルに溶ける。

4. 試薬の保管方法

ポリエチレン製の瓶に入れて保管しないこと。

5. 適用範囲

分析成分	分析方 法	分析番 号
Pu,Np,Am,Cm	溶媒抽出-α線計測法	35.271.54.Pu,Np,Am,Cm.01

2.1.10 しゅう酸溶液（0.5％）の調整法

1. 使用試薬

しゅう酸： $\text{HOCOCOOH} \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ （JIS・K 8521）

2. 調整方法

しゅう酸 0.7 g を水で溶解し 100 ml に希釈する。

3. 性状

結晶又は結晶性粉末で、水に溶けやすい。

4. 適用範囲

分析成分	分析方 法	分析番 号
^{90}Sr	イオン交換分離法	35.442.58.Sr.01 35.222.58.Sr.01

2.1.11 塩化アンモニウム溶液（5%）の調整法

1. 使用試薬

塩化アンモニウム： NH_4Cl （JIS・K 8116）

2. 調整方法

塩化アンモニウム 5 g を水で溶解し 100 ml に希釈する。

3. 性状

白色結晶性の粉末又は塊で、においがなく、熱すると揮散する。水に溶けやすい。

4. 適用範囲

分析成分	分析方 法	分析番 号
^{90}Sr	イオン交換分離法	35.442.58.Sr-90.01 35.222.58.Sr-90.01

2.2 放射性同位元素標準溶液の種類と保有量（昭和56年3月31日）

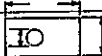
核種名	群 別	購入年月日	購入数量	保有量 (56.3.30)	物理的形狀	その他
^{90}Sr	1	52.3.8	1 mCi	0.915mCi	液体	
^{237}Np	1	52.9.29	466 μCi	466 μCi	"	
^{241}Am	1	52.3.8	1 mCi	0.78 mCi	"	
^{242}Cm	1	52.3.8	1 mCi	1.4 μCi	"	
^{244}Cm	1	55.8.11	60	39.2 μCi	"	
^{22}Na	2	52.5.11	0.1 mCi	38.9 μCi	"	
^{54}Mn	2	"	"	1.2 μCi	"	
^{60}Co	2	"	1 mCi	0.618 mCi	"	

核種名	群別	購入年月日	購入数量	保有量 ((56.3.30))	物理的形状	その他
¹⁰⁶ Ru	2	52.5.11	5 mCi	0.357 mCi	液体	
¹³⁷ Cs	2	52.3.8	5 mCi	4.27 mCi	"	
¹³³ Ba	2	52.5.11	1 mCi	0.758 mCi	"	
¹⁴⁴ Ce	2	"	1 mCi	28.9 μ Ci	"	
¹⁵² Eu	2	"	1 mCi	0.837 mCi	"	
¹⁴⁷ Pm	2	53.6.8	1 mCi	0.548 mCi	"	
¹²⁹ I	2	54.2.20	18.14 μ Ci	6.04 μ Ci	"	
³ H	4	52.5.11	1 mCi	0.748 mCi	"	
¹⁴ C	4	"	"	0.899 mCi	"	

2.3 密封標準線源の種類と量

密封標準線源

(56.6.30)

核種名	使用室名	保管室名	数量(μCi)	個数(個)	密封状態および形状	使用目的	取得先	取得年月日	備考
144 Cc	"	G-119	0.026 μci	1	"プラスチック密封" 9mmφ. 8.1cmスティック状	測定器の校正	フランス	53.12.12	
137 Cs	"	"	0.124 "	"	"	"	"	"	
60 Co	"	"	0.086 "	"	"	"	"	"	キットで購入
57 Co	"	"	0.029 "	"	"	"	"	"	
54 Mn	再分析所1階	G-119	0.046	1	"プラスチック密封" 9mmφ. 8.1cmスティック状	測定器の校正	フランス	53.12.12	キットで購入
22 Na	"	"	0.111	"	"	"	"	"	
241 Am	"	"	1.174	"	プラスチック電着	"	"	53.11.1	
137 Cs	"	"	1.165	"		"	"	"	
133 Ba	"	"	0.929	"	"	"	"	"	
88 Y	"	"	0.0320	"	"	"	"	"	
60 Co	"	"	0.924	"	"	"	"	"	キットで購入
57 Co	"	"	0.252	"	"	"	"	"	
54 Mn	"	"	0.300	"	"	"	"	"	
22 Na	"	"	0.661	"	"	"	"	"	
90 Sr ⁹⁰ Y	"	"	2951 dps 4π	"	"	"	"	55.5.19	
239 Pu+ ²⁴¹ Am+ ²⁴⁴ Cm	"	"	3 × 10 ⁵ dpm	"	1 inφ 電着	"	R・C・C	49.10.10	
235 U	"	"	1 × 10 ⁻⁴ μCi	"	"	"	フランス	"	
238 U	"	"	37 μg	"	"	"	"	"	
239 Pu	"	"	0.09 μCi	"	"	"	"	"	
238 Pu	"	"	12.5 μCi	"	"	"	"	"	

密封標準線源

(56.6.30 現在)

核種名	使用室名	保管室名	数量 (μCi)	個数(個)	密封状態および形状	使用目的	取得先	取得年月日	備考
²⁴⁴ Cm	再分析所1階	G-119	190α/sec 2π	1	"プラスチック電着"ディスク状 2.54cmφ 1.45cmφ Source	測定器の校正	JRI A	52.7.19	
²¹⁰ Po	"	"	54α/sec 2π	"	"	"	"	52.7.19	
²³⁷ Np	"	"	440α/sec 2π	"	"	"	"	52.9.22	
¹⁴⁷ Pm	"	"	3542 c/sec 4π	"	"	"	"	53.10.24	
²³⁷ Np	"	"	9.1 μg/cm ²	"	"プラスチック電着"ディスク状 2.54cmφ 8mmφ Source	"	"	"	
²⁴² Cm	"	"	0.138 μCi	"	"	"	"	"	
⁹⁰ Sr - ⁹⁰ Y	"	"	3.9 × 10 ³ cpm	"	"ステンレス電着"ディスク状 2.54cmφ 8mmφ	"	"	49.10.10	
²⁴¹ Am	"	"	3.52 × 10 ⁴ dpm	"	"ステンレス電着" 2.54cmφ 8mmφ Source	"	R C C	"	
RaDE	"	"	690 α ps	"	"ステンレス電着"ディスク状 アルミホルド 2.54cmφ 8mmφ	"	JRI A	"	
¹²⁹ I	"	G-119	0.104	"	"プラスチック密封" 1.25cmφ 12.7cmスティック状	測定器の校正	"	52.2.20	
¹⁵² Eu	"	"	1.415	"	"プラスチック電着"ディスク状 2.54cmφ 1.45cmφ Source	"	"	52.6.27	
²⁴¹ Am	"	"	187α/sec 2π	"	"	"	"	52.7.19	

nuclide	混合線源	
	OCDI	
¹⁰⁹ Cd	15.6 kBq	0.42 μCi
⁵⁷ Co	0.6 kBq	0.02 μCi
¹³⁹ Ce	0.7 kBq	0.02 μCi
²⁰³ Hg	2.1 kBq	0.06 μCi
¹¹³ Sn	2.8 kBq	0.08 μCi
⁸⁵ Sr	3.8 kBq	0.10 μCi
¹³⁷ Cs	2.6 kBq	0.07 μCi
⁶⁰ Co	3.0 kBq	0.08 μCi
⁸⁸ Y	5.9 kBq	0.16 μCi

3. スペクトルの解析法

3.1 γ 線スペクトルの解析法

(Ge(Li) 検出器/多重波高分析器)

1. 要 旨

試料中に含まれる放射性核種から放出される γ 線を, Ge(Li) 検出器で検出し, 多重波高分析器で計測し, 本解析法にしたがって核種の定性および定量分析を行なう。

2. 適用範囲

本法は, 再処理工程中の試料に適用する。

3. 装置および標準線源

- (1) 検出器: ORTEC 製 8001 - 1020 V 型 Ge(Li) 検出器
- (2) 多重波高分析器: CANBERRA 製 8100 型
- (3) 高圧電源: CANBERRA 製 3005 型
- (4) デジタルプリンタ: HEWLETT PACKARD 製 5050 B 型
- (5) X-Y プロッタ: HEWLETT PACKARD 製 7004 B 型
- (6) 測定容器: ポリエチレン製棒状瓶 (R I カプセル容量 5 ml)
- (7) ^{152}Eu 標準溶液 (0.1 $\mu\text{ci}/\text{ml}$) 1ml

4. 解 析

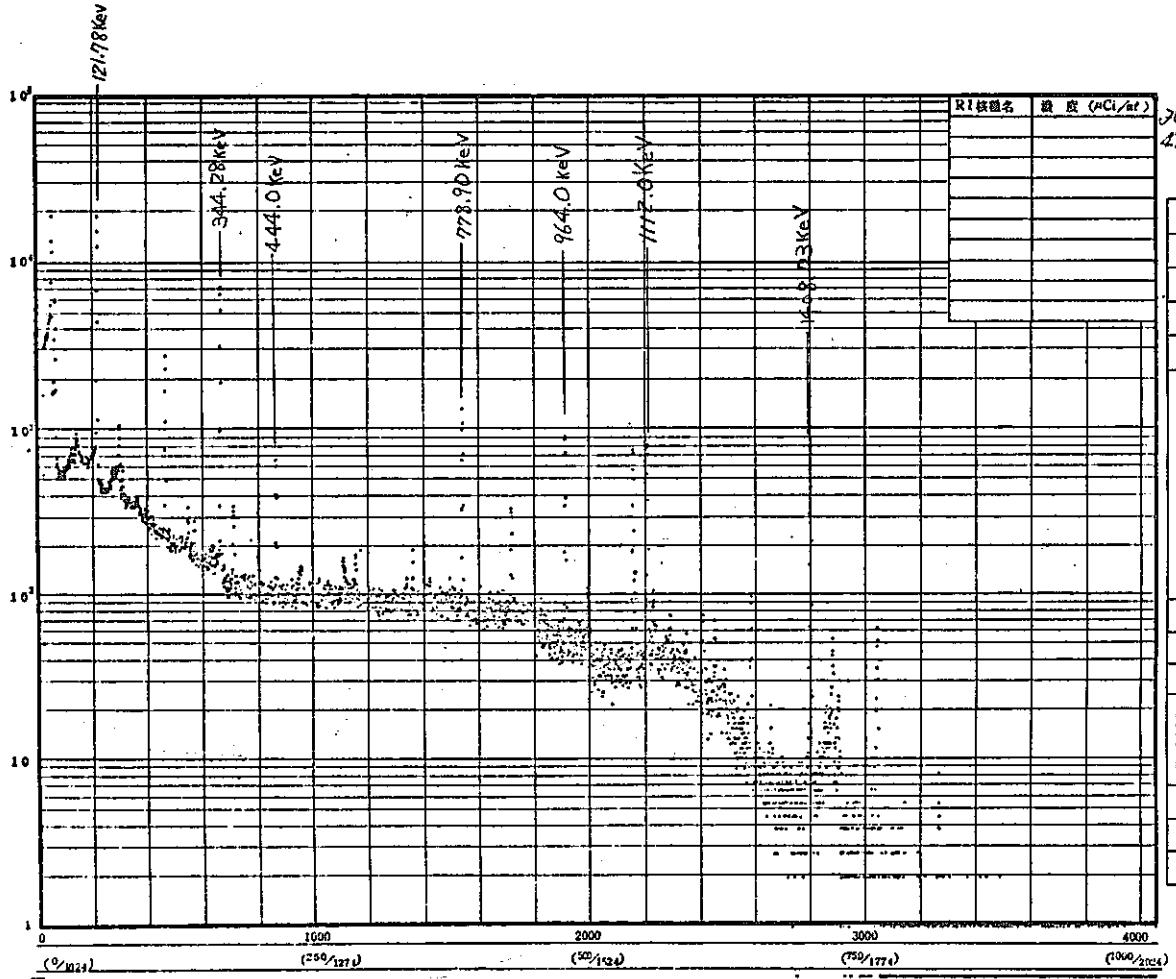
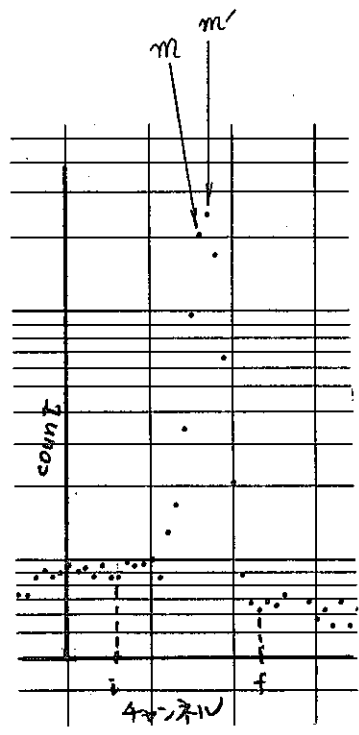
解 析 手 順	備 考
<p>[エネルギー校正曲線の求め方]</p> <p>(1) ^{152}Eu 標準溶液の測定データから代表的なピークについて, ピークチャンネルを算出する。</p> <p>(2) ピークチャンネルの求め方は, まず, チャートとデジタルデータよりピークを検索し, 各ピークについて相隣り合う最も高い計数値に対応する2つのチャンネル $m, m'(m+1)$ を選ぶ。</p> <p>(3) m, m' チャンネルにおける一次微係数 $\Delta N_n (n=m$ あるいは $m')$ を次式から算出する。 $\Delta N_n = (-2 N_{n-2} - N_{n-1} + N_{n+1} + 2N_{n+2}) / 10$</p>	<p>(1) 1日1回, 1000秒測定する。 図-3.1-1参照。</p> <p>(2) 図-3.1-2参照</p> <p>(3) $\Delta N_m, \Delta N_{m'} > 0$ とき $m=m+1, m'=m+2$ とし, $\Delta N_m, \Delta N_{m'} < 0$ のとき $m=m-1, m'=m$ として再度計算し, $\Delta N_m \geq 0, \Delta N_{m'} \geq 0$ となる様にする。</p>

解 析 手 順	備 考
<p>(4) ピークチャンネルを次式により求める。 $X_i = m + \Delta Nm / (\Delta Nm - \Delta Nm')$</p> <p>(5) ピークチャンネル X_i とそのピークエネルギー Y_i よりエネルギー較正線を算出する。 a, b は次式の連立方程式を解いて求める。 $\begin{cases} a \sum_{i=1}^n X_i^2 + b \sum_{i=1}^n X_i = \sum_{i=1}^n X_i \cdot Y_i \\ a \sum_{i=1}^n X_i + nb = \sum_{i=1}^n Y_i \end{cases}$ x_i : i 番目のピークのピークチャンネル y_i : i 番目のピークのピークエネルギー</p> <p>〔核種の定性〕</p> <p>(1) 試料のピークチャンネルとエネルギー較正線 $Y = ax + b$ より、そのピークのエネルギーを算出する。</p> <p>(2) そのエネルギーにほぼ等しいエネルギーの α 線を放出する核種を検索し、核種を同定する。</p> <p>〔核種濃度の定量〕</p> <p>(1) ピークの境界 i, f チャンネルを図-3.1-3を目安にしてデジタルデータにより決定する。</p> <p>(2) ピークの全計数 N_t を求める。 $N_t = \sum_{n=i+1}^{f-1} N_n$</p> <p>(3) ピーク下の計数 N_b を次式より算出する。 $\bar{N}_i = \sum_{n=i-m+1}^i N_n / m$ $\bar{N}_f = \sum_{n=f}^{f+m-1} N_n / m$ $NB = (f - i - 1) (\bar{N}_i + \bar{N}_f) / 2$</p> <p>(4) ピークの正味の計数 A を算出する。 $A = N_t - N_b$ この時の標準偏差 ΔA は $\Delta A = \sqrt{N N_t + \{(f - i - 1) / 2 \sqrt{m m'}\} NB}$</p> <p>(5) 核種濃度 C ($\mu Ci / ml$) を算出する。 $C (\mu Ci / ml) = \frac{(A \pm 3 \Delta A) D}{2.22 \times 10^6 \epsilon_T \cdot a_i \cdot t \cdot s}$</p>	<p>(5) ^{152}Eu の代表的ピークエネルギー y_i については、表-3.1-2 参照</p> <p>(1) ピークチャンネル値は、〔エネルギー較正曲線の求め方〕の場合と同様にして求める。</p> <p>(2) 表-3.1-1, 文献等を参考にし同定を行なう。同定した核種が2種類以上の r 線を放出する場合には他のピークが検出されているかどうかを確認する。</p> <p>(1) i : 低エネルギー側 f : 高エネルギー側</p> <p>(3) $m(m) = 1$ ($N_n > 200$) $m(m) = 3$ ($N_n \leq 200$)</p> <p>(4) 解析ピーク付近にバックグラウンドによるピークが存在する場合には、バックグラウンドのピーク面積を算出し、A より差し引く。</p> <p>(5) ϵ_T は図-3.1-4, 表-3.1-1 参照。 a_i は表-3.1-1, 文献参照</p>

解 析 手 順	備 考
$\epsilon\alpha$: 計数効率 a_i : r 線の放出率 t : 測定時間 (min) s : 試料採取量 (mℓ) D : 希釈倍率 (6) 検出下限 $1 \times 10^{-5} \cdot D$ ($\mu\text{Ci} / \text{mℓ}$)	D は 100 倍希釈では 100, 未調整試料の場合は 1, 100 mℓ 濃縮の場合は 0.01 となる。

5. 解 説

- (1) 本法は、科学技術庁放射能測定基準化委員会編、Ge (Li) 半導体検出器を用いた機器分析法 (1972) に基づき作成した。
- (2) 放射性核分裂生成物から放出される r 線は核種により個有のエネルギーを持っている。また、その r 線の強度は核種の濃度に比例する。この 2 点を利用して試料中の放射性物質の核種と濃度を決定する。
- (3) Ge (Li) 検出器は NaI (TI) 検出器にくらべて分解能が優れており、多数の核種が共存する試料の測定に特に有効である。
- (4) 検出器の近くに放射線源を置かないように注意すること。



36°C
47%

試料名	¹⁵² Eu
測定年月日	53.9.27
測定時間 (1000 sec)	()
測定者	
測定機種	CANBERRA 8100
測定条件	<ul style="list-style-type: none"> 高圧用加電圧: 4800 V COARSE GAIN: 50 FINE GAIN: 5.70 CONVERSION GAIN: 4096 BASE LINE: 4.54
エネルギー校正曲線採用標準源	²⁴¹ Am, ²² Na, ¹⁵² Eu等
(¹⁵² Eu)	
試料の重量又は容量	1 (g or cm ³)
試料の形状	液体
測定容器	R107セル
測定位置	階段の位置 (上段, 中段, 下段)
1 cm ² あたりのチャンネル数	150チャンネル/cm
X軸スケール	0.1 V/cm
Y軸スケール	0.1 V/cm

(再) 分析機 記録機式71号

図-3.1-2 m, m'

図-3.1-1 ¹⁵²Euのα線スペクトル

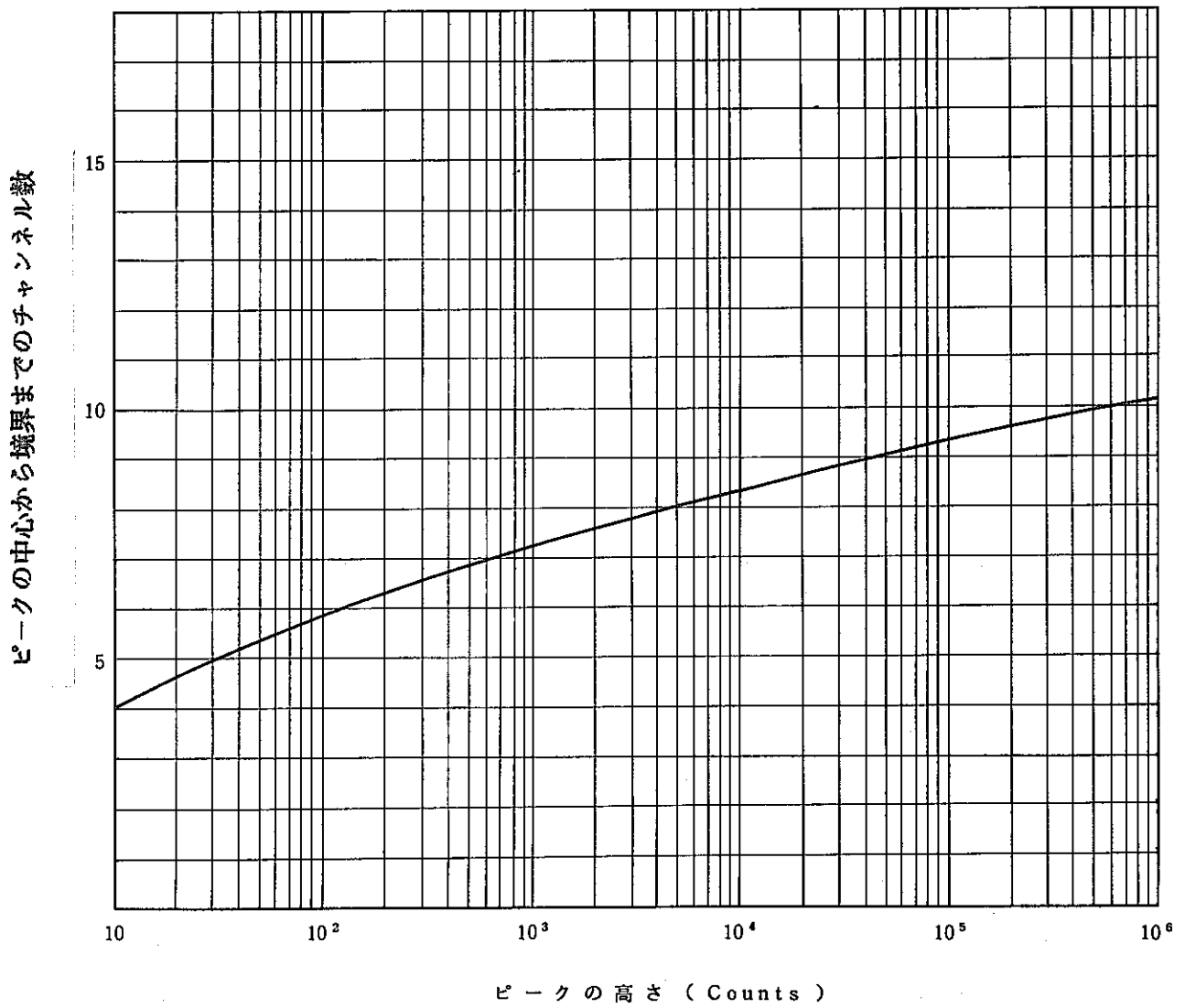


図-3.1-3 ピーク計数値よりピーク領域を決定するための図

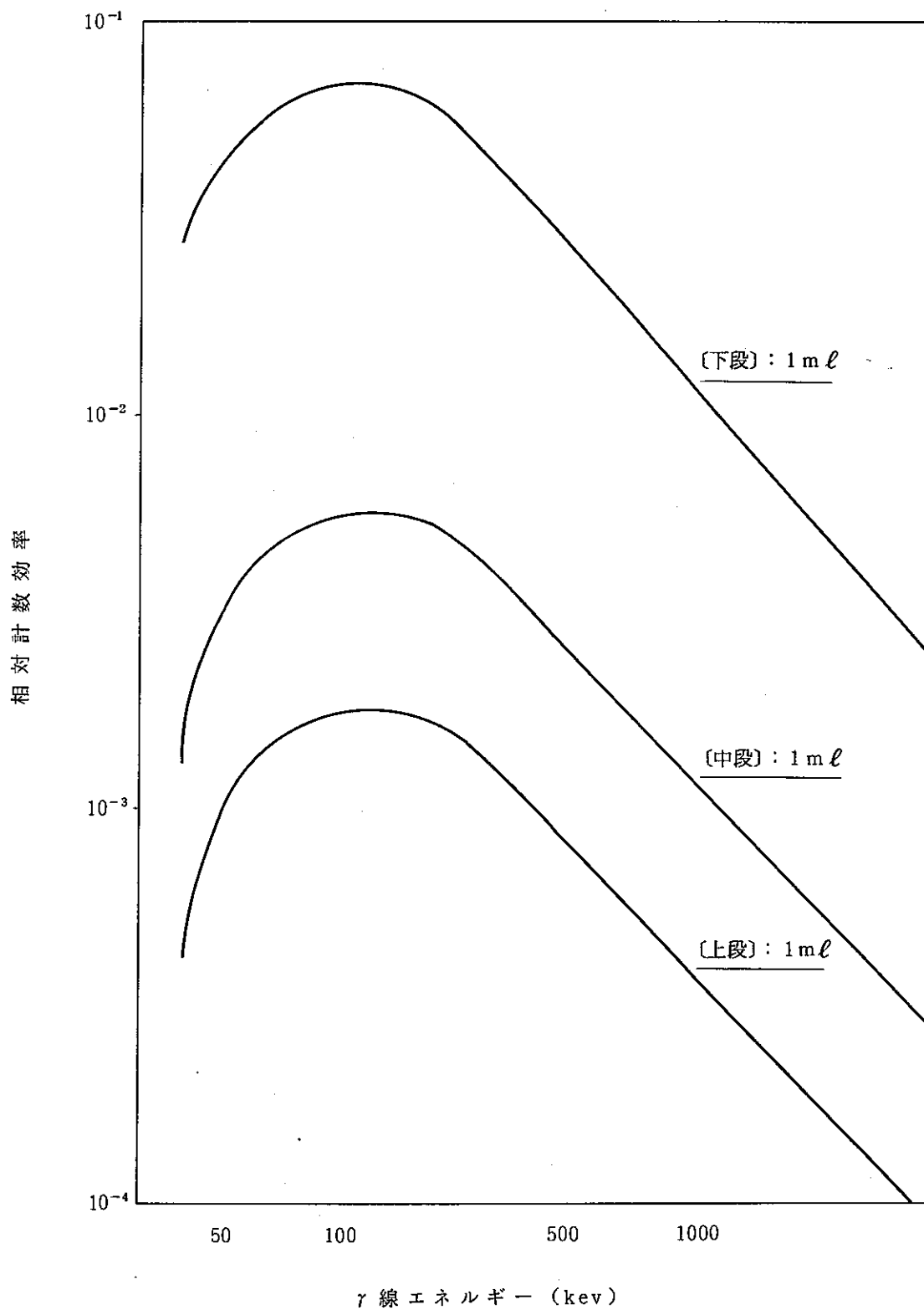


図-3.1-4 γ 線エネルギーと計数効率の関係

表-3.1-1 放射性核種の γ 線エネルギーとその放出率

Nuclide	Half-life	γ -energy (KeV)	Efficiency		Emission Probability
			[下段] X10 ⁻²	[中段] X10 ⁻³	
Am-241	432Y	59.5	5.50	4.16	0.359
Ce-144	284.5d	133.5	6.78	5.60	0.111
Cs-137	30.17Y	661.6	1.39	1.35	0.850
Ru-106	366.58d	616.3 622.2	1.48	1.45	0.106
Zr-95	63.98d	756.7	1.20	1.19	0.546
Nb-95	34.97d	765.8	1.18	1.17	0.9982
Pu-239	2.413 × 10 ⁴ Y	129.3 203.5	6.80 5.15	5.60 4.55	6.26 × 10 ⁻⁵ 5.60 × 10 ⁻⁶
U-237	6.752d	59.5 208.0	5.50 5.02	4.16 4.47	0.345 0.217
U-235	7.038 × 10 ⁸ Y	185.7 205.3	5.40 5.10	4.80 4.50	0.540 0.047
Pa-234m	1.175m	766.6 1001.0	1.17 0.875	1.16 0.880	0.0036 0.0059
Pa-233	26.95d	312.0	3.26	2.97	0.372
Th-234	24.101d	63.0	5.80	4.40	0.0577
Eu-155	4.96Y	105.3	7.00	5.60	0.232
Eu-154	8.55Y	756.8 1274.4	1.20 0.662	1.19 0.685	0.0433 0.355
Ce-141	32.551d	145.4	6.55	5.40	0.484
Ba-140	12.789d	537.3	1.77	1.70	0.236
La-140	40.27h	1596.2	0.513	0.545	0.955
Cs-134	2.063Y	795.8 801.8	1.12	1.12	0.9417
I-129	1.57 × 10 ⁷ Y	39.6	2.79	1.39	0.0752
Sb-125	2.712Y	427.9	2.28	2.12	0.301
Ru-103	39.35d	497.1	1.92	1.83	0.864
Co-60	5.2719Y	1332.5	0.625	0.660	1.000
Mn-54	312.5d	834.8	1.07	1.08	1.000

表-3.1-2 ^{152}Eu の代表的 γ 線のピークエネルギー値

121.8	KeV
244.66	
344.31	
411.13	
443.98	
778.87	
867.38	
964.01	
1112.04	
1408.02	

3.2 α 線スペクトルの解析法

(Si 半導体検出器 / 多重波高分析器)

1. 要 旨

試料中に含まれる放射性核種から放出される α 線を、Si半導体検出器(表面障壁型)により検出し、多重波高分析器で計測し、本解析法にしたがって核種の定性および定量分析を行なう。

2. 適用範囲

本法は、再処理工程中の試料について適用する。

3. 装置および標準線源

- (1) 検出器：ORTEC製Si検出器 300-300B型(表面障壁型)
- (2) プリアンプ：ORTEC製 121型
- (3) 多重波高分析器：日立製 505型
- (4) デジタルプリンタ：日立製 DP-7型
- (5) X-Yプロッタ：日立製 057型
- (6) 真空槽：日立製
- (7) 真空ポンプ：アルカテル社製 2004A型
- (8) 真空計：日立製
- (9) 試料皿：SUS製 直径25 mm, 厚さ0.3 mm
- (10) 標準線源：AMR-33 (^{241}Am : 5.44/5.48 MeV)
: AMR-43 (^{241}Am : 5.44/5.48 MeV , ^{239}Pu : 5.15/5.13 MeV ,
 ^{244}Cm : 5.80 MeV)

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

4. 解 析

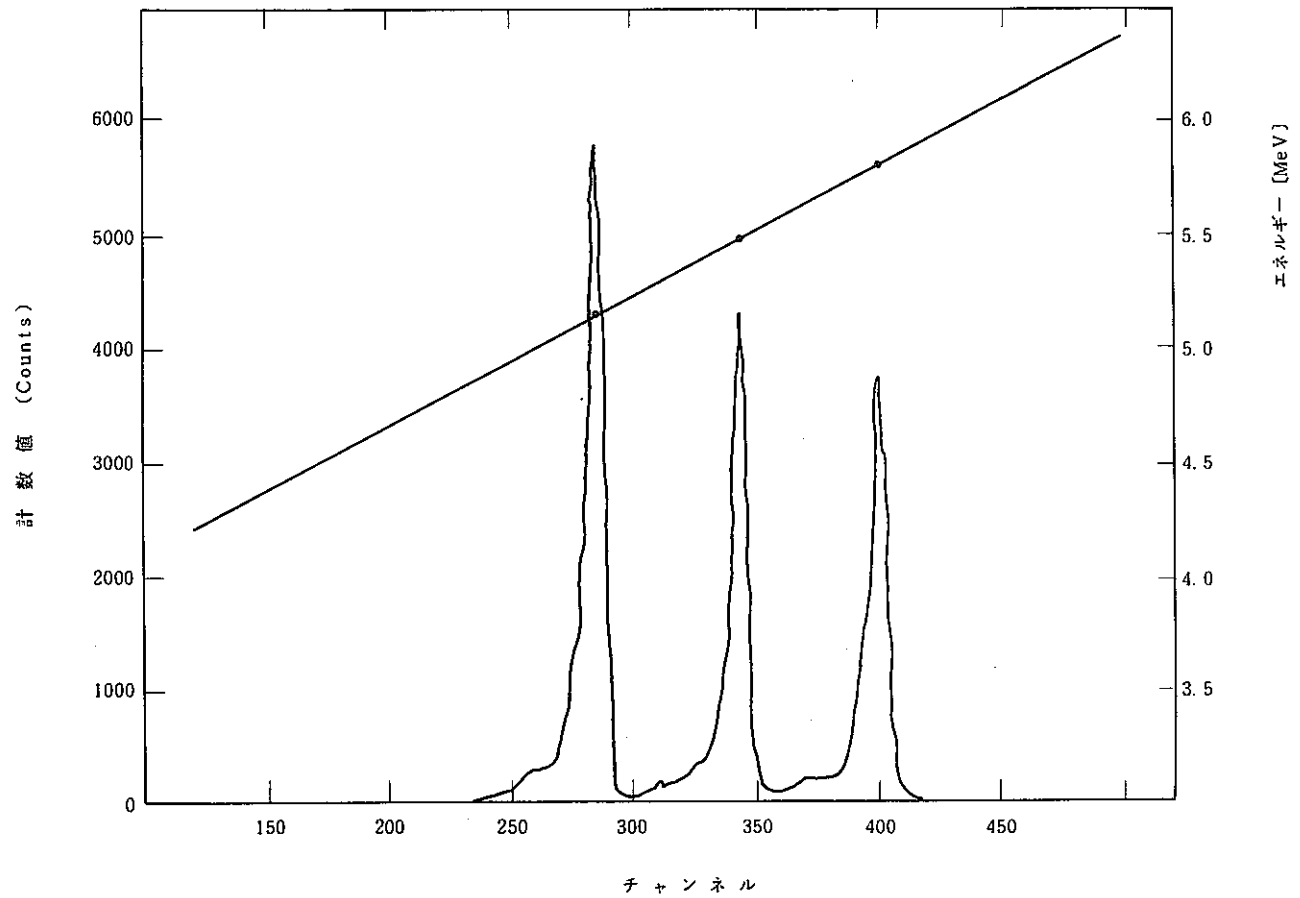
解 析 手 順	備 考
〔エネルギー校正直線の求め方〕	
(1) 標準線源 (AMR-43) の測定データから各ピークのエネルギーとチャンネル値の関係を最少二乗法より求め、一次の校正直線とする。	(1) 図 3.2 - 1 参照
(2) ピークチャンネル (x_i) とそのピークエネルギー (y_i) よりエネルギー校正直線 $y = ax + b$ を算出する。a, b は、次式の連立方程式を解くことにより求める。	(2) x_i : i 番目のピークチャンネル y_i : i 番目のピークエネルギー
$a \sum_{i=1}^n x_i^2 + b \sum_{i=1}^n x_i = \sum_{i=1}^n x_i y_i$ $a \sum_{i=1}^n x_i + nb = \sum_{i=1}^n y_i$	
〔核種の定性〕	
(1) X-Yプロットの α エネルギースペクトルチャートより、ピークチャンネルを粗く読みとる。	(1) 図 3.2 - 2 参照。
(2) 各ピークチャンネルを、デジタルデータより正確に求める。	(2) ピークの中心チャンネルは、最大計数値チャンネルとする (表 3.2 - 1 参照)。
(3) エネルギー校正直線の式より各ピーク(x)のエネルギー値(y)を算出する。	(3) エネルギー校正直線 $y = ax + b$ (図 3.2 - 1 参照)
(4) 各ピークの α 線エネルギーに対応する核種を同定する。	(4) 表 3.2 - 2 を参照。
〔核種濃度の定量〕	
(1) 定量しようとする核種のピークのバックグラウンドを求める。(図 3.2 - 2, 表 3.2 - 1 参照)	
① ピークの低エネルギー側の境界チャンネル(i)を求める。	① (例) $i = 289 \text{ ch}$
② 高エネルギー側の境界チャンネル(f)を求める。	② (例) $f : 350 \text{ ch}$
③ ($i-1$), i , ($i+1$) の計数値の平均値 \bar{N}_i を計算する。	③ (例) $\bar{N}_i = \frac{(75 + 80 + 73)}{3}$ $= 76$
④ ($f-1$), f , ($f+1$) の平均値 \bar{N}_f を求める。	④ (例) $\bar{N}_f = \frac{(12 + 13 + 21)}{3}$ $= 15$

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

解 析 手 順	備 考
<p>㉔ 境界中のバックグラウンド N_B を求める。</p> $N_B = \frac{(f-i+1)(\bar{N}_i + \bar{N}_f)}{2}$ <p>(2) 境界内にある計数の合計値 N_T を求める。</p> $N_T = \sum_{n=1}^f N_n - \sum_{m=1}^{i-1} N_m$ <p>$\sum_{n=1}^f N_n$ は、f_{ch} までの計数の積分値</p> <p>(3) ピークの正味面積 A を求める。</p> $A = N_T - N_B$ <p>(4) 計数率 (cpm) を求める。</p> $cpm = \frac{(\text{正味面積 } A)}{(\text{測定時間 (分)})}$ <p>(5) 壊変率 (dpm) を求める。</p> $dpm = \frac{(\text{ピーク面積 (cpm)})}{(\text{計数効率})(\text{放出率})}$ <p>(6) 放射能量 (μCi) を算出する。</p> $(\mu Ci) = \frac{(\text{壊変数 (dpm)})}{2.22 \times 10^6}$ <p>(7) 放射能濃度 ($\mu Ci/ml$) を算出する。</p> $(\mu Ci/ml) = \frac{(\text{放射能量 } (\mu Ci))(\text{希釈倍率})}{(\text{試料採取量 (ml)})}$	<p>㉔ (例)</p> $N_B = \frac{(350-289+1)(76+15)}{2}$ $= 2821$ <p>(2) (例)</p> $N_T = 55998 - 24671 = 31927$ <p>$\sum_{n=1}^f N_n$ および $\sum_{m=1}^{i-1} N_m$ はデジタルデータから読みとる (表 3.2-1 参照)</p> <p>(3) (例) $A = 31927 - 2821$</p> $= 29106$ <p>(5) 計数効率 (図 3.2-3 参照) は、Si 検出器の場合、数%位であり、分析前に標準線源を用いて測定しておく必要がある。ただし 3~7 MeV の範囲では、計数効率のエネルギーによる変動はない。</p> <p>各ピークの放出率は、核種により求まっている (表 3.2-2 参照)。</p>

5. 解 説

- (1) 原理は、放射性核分裂生成成分から放出される α 線が核種によって固有のエネルギー値を持っていることに基ずいている。さらに、その α 線の放射線強度は、その核種の濃度に比例している。この2点を利用して、試料中にある放射性核種とその濃度を決定する。
- (2) α 線エネルギーとその強度測定には、Si検出器、多重波高分析器及び付属電子回路等を使用する。



測定条件	
高圧印加電圧	125V
COARE GAIN	32
FINE GAIN	6.0
SHAPING	4 μ sec
CONVERSION GAIN	2048
BASE LINE	630
MEMORY GROUP	1/1

図 3.2 - 1 標準線源 (AMR - 43) の α 線スペクトルとエネルギー校正直線

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

表 3.2-1 α 線スペクトルのデジタルデータ

0285	000088	023925
0286	000087	023913
0237	000086	023995
0288	000075	024071
0289	000080	024151
0290	000073	024224
0291	000067	024291
0292	000087	024375
0293	000100	024476
0294	000116	024594
0295	000104	024598
0296	000099	024797
0297	000093	024880
0298	000098	024988
0299	000099	025097
0300	000120	025207
0301	000130	025337
0302	000125	025452
0303	000127	025533
0304	000140	025229
0305	000128	025857
0306	000147	026004
0307	000159	026163
0308	000143	026306
0309	000155	026451
0310	000183	026544
0311	000248	026892
0312	000214	027105
0313	000230	027336
0314	000254	027530
0315	000248	027836
0316	000299	028137
0317	000327	028464
0318	000357	028871
0319	000436	029257
0320	000504	029751
0321	000550	030311
0322	000697	031763
0323	000772	031780
0324	000877	032567
0325	000955	033612
0326	001180	034732
0327	001345	036137
0328	001504	037641
0329	001672	038313
0330	001736	041045
0331	001804	042853
0332	001885	044735
0333	001866	045685
0334	001930	048535
0335	001723	050253
0336	001434	051552
0337	001251	052943
0338	000558	053551
0339	000594	054595
0340	000521	055113
0341	000324	055442
0342	000198	055532
0343	000141	055772
0344	000083	055864
0345	000052	055910
0346	000025	055940
0347	000023	055953
0348	000010	055972
0349	000012	055985
0350	000013	055998
0351	000020	055919
0352	000011	055930
0353	000012	056942
0354	000014	056950
0355	000019	056990

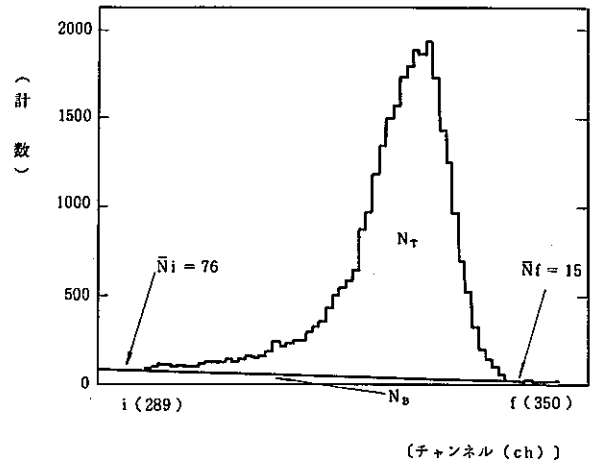


図 3.2-2 α 線スペクトルのピーク部

↑ INTEGRAL デジタルデータ
↑ チャンネル別のデジタルデータ

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

表 3.2 - 2 核種の α 線エネルギーと放出率
(単位: MeV)

核 種	エ ネ ル ギ ー (放 出 率)
U - 234	4.77 (72%) , 4.78 (28%)
U - 235	4.58 (8%) , 4.40 (57%) , 4.37 (18%)
U - 238	4.20 (75%) , 4.15 (25%)
Np - 237	4.78 (75%) , 4.65 (12%)
Pu - 238	5.50 (72%) , 5.46 (28%)
Pu - 239	5.16 (88%) , 5.11 (11%)
Pu - 240	5.17 (76%) , 5.12 (24%)
Pu - 242	4.90 (76%) , 4.86 (24%)
Am - 241	5.49 (85%) , 5.44 (13%)
Cm - 242	6.12 (74%) , 6.07 (26%)
Cm - 244	5.81 (77%) , 5.77 (23%)

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

測定条件	検出器	
	No. 1	No. 2
高圧印加電圧	125 V	125 V
COARSE GAIN	32	32
FINE GAIN	6.0	8.0
SHAPING	4 μ sec	4 μ sec
CONVERSION GAIN	2048	2048
BASE LINE	710	770
試料位置	4.0	4.0

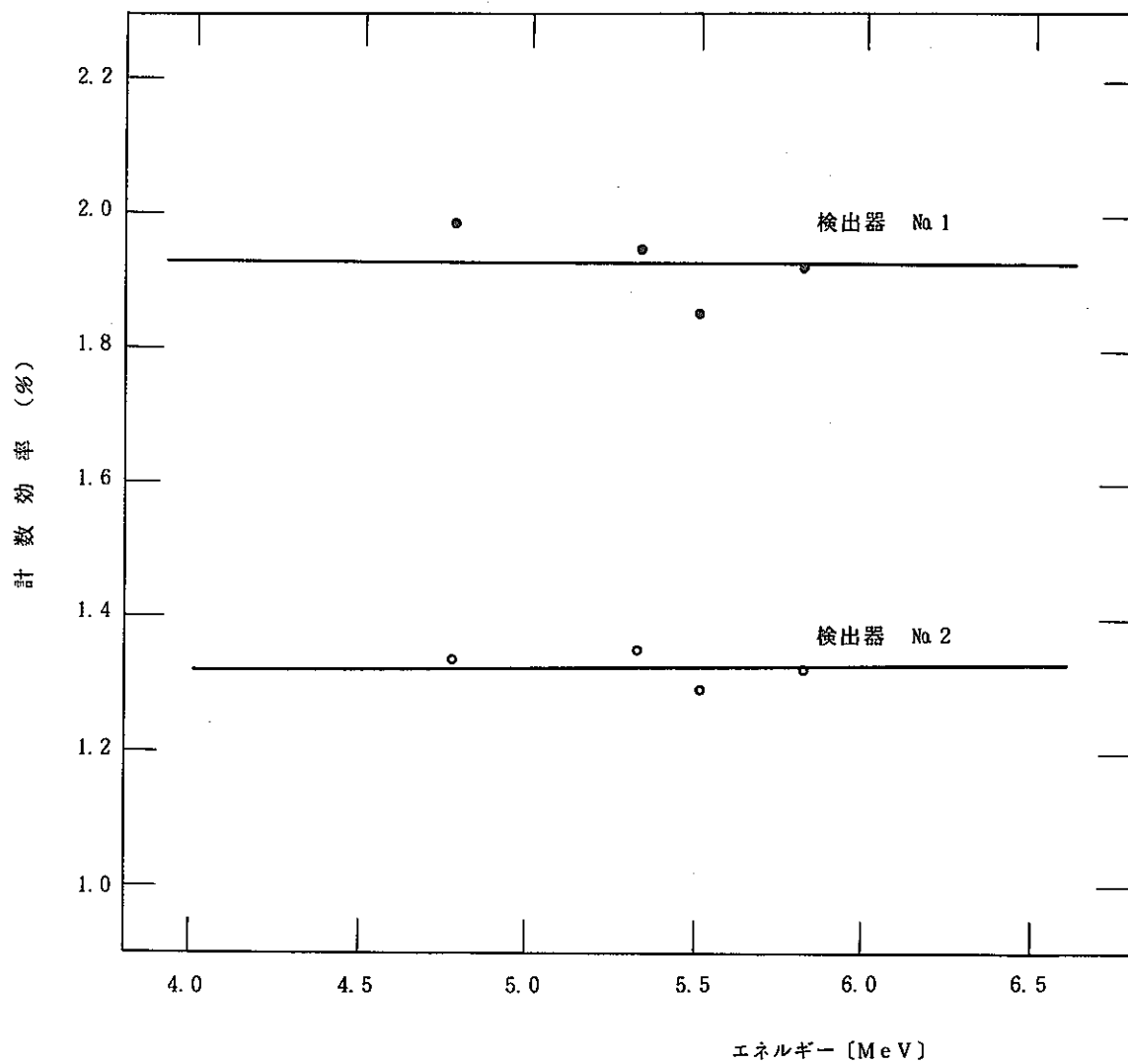


図 3.2-3 Si 検出器の計数効率

4. 再処理工程試料の核種分析法

4.1. γ 線放出核種の分析法

4.1.1 燃料貯蔵プール水中の ^{60}Co および ^{137}Cs の分析方法

(オートウエルアシステム測定法)

1. 要 旨

プール水中の ^{60}Co および ^{137}Cs から放出される γ 線をNaI(Tl)検出器で自動的に測定し、両核種の定量を行なう。

2. 適用範囲

本法はプール水中の ^{60}Co および ^{137}Cs の分析に適用する。検出限界は $1 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ である。

3. 試薬および装置

- (1) 試料容器：ポリエチレン製棒状瓶 (RIカプセル：容量5 ml)
- (2) γ 線測定装置：アロカ製JDC-75U型オートウエルアシステム

4. 操 作

操 作 手 順	備 考
(1) プール水3 mlを試料容器に正しく採取し、ビニール袋に入れてテープで封をする。	
(2) 測定装置のコンベヤーに試料とバックグラウンド試料をセットし、その前にグループNa, チェッカーを、その後〔GROUP OFF〕と〔CYCLE〕チェッカーを置く。	(2) バックグラウンド試料として空の試料容器を使用する。
(3) 測定時間ダイヤルを50 minに設定し、測定を開始する。	(3) オートウエルアシステムの分析操作法参照。
(4) 次式に従って ^{60}Co の放射能濃度を計算する。 $^{60}\text{Coの濃度} (\mu\text{Ci}/\text{ml}) = \frac{(N_s - N_B)}{2.22 \times 10^6 \epsilon_r \cdot a_i \cdot t \cdot s}$ $N_s : ^{60}\text{Coの計数値}$	

操 作 手 順	備 考
<p> N_B : ^{60}Co測定時のバックグラウンドの計数值 ϵ_r : ^{60}Co測定 of 計数効率 a_i : ^{60}Co of r線の放出率 (100%) t : 測定時間 (分) s : 試料採取量 (ml) </p> <p> (5) 次式に従って^{137}Csの放射能濃度を計算する。 ^{137}Csの濃度 ($\mu\text{Ci/ml}$) $= \frac{(N_s' - N_B') - 0.48(N_s - N_B)}{2.22 \times 10^6 \epsilon_r' \cdot a_i' \cdot t \cdot s}$ </p> <p> N_s' : ^{137}Csの計数值 N_B' : ^{137}Cs測定時のバックグラウンドの計数值 ϵ_r' : ^{137}Cs測定 of 計数効率 a_i : ^{137}Cs of r線の放出率 (85%) t : 測定時間 (分) s : 試料採取量 (ml) </p>	<p>(5) $0.48(N_s - N_B)$は^{60}Co of ^{137}Csのピークへのコンプトン効果寄与分である。</p>

5. 解 説

- (1) 本法は、同一核種 (^{60}Co または ^{137}Cs) について、多数の低放射性試料を連続的に測定するのに適している。
- (2) 本法の分析操作手順フローシートを図4.1.1に示す。

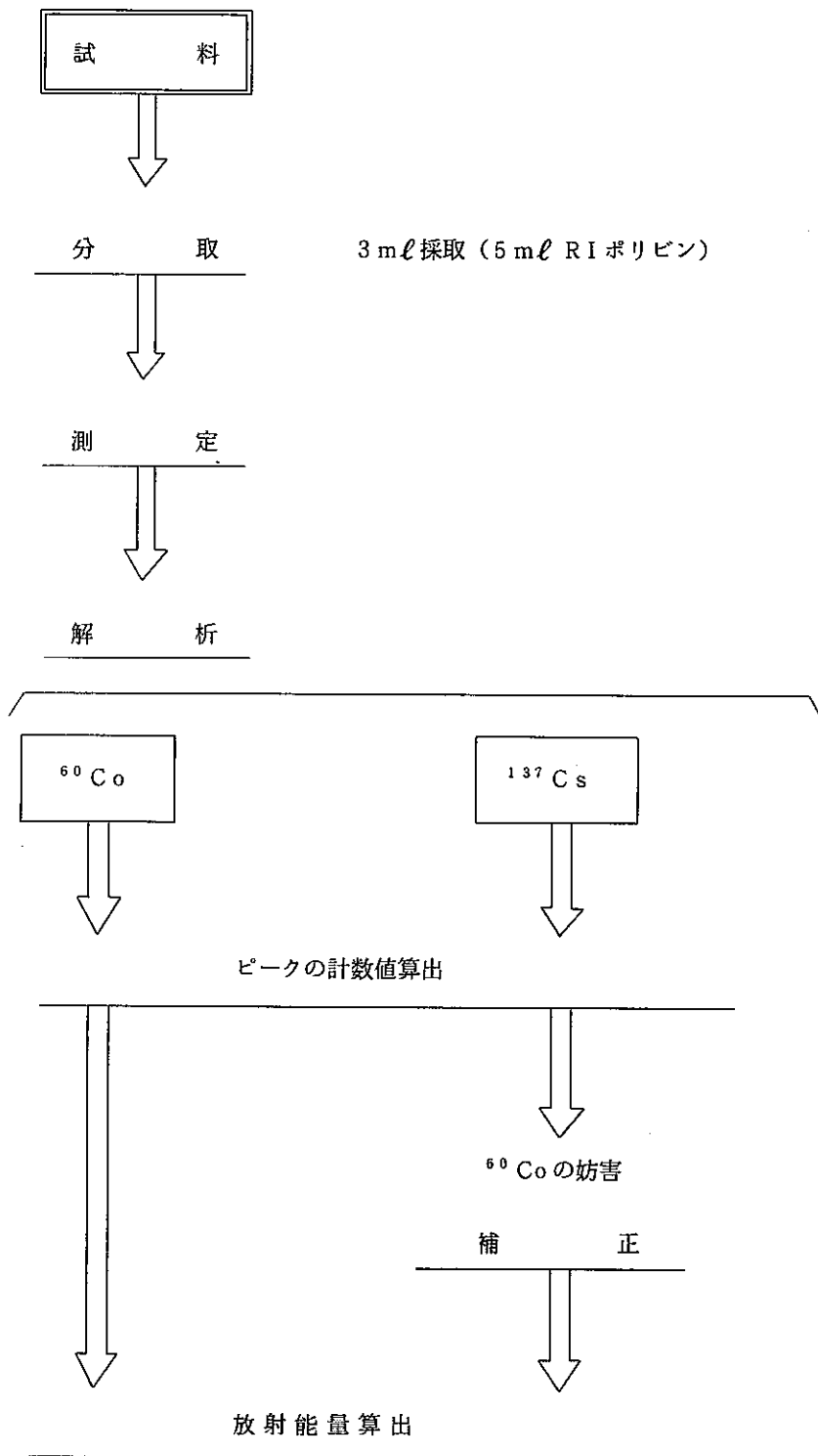


図 4.1.1 分析操作手順フローシート

プール水中の⁶⁰Co および¹³⁷Cs の分析法
(オートウエルrシステム測定法)

4.1.2 核分裂生成物(Am-241, Eu-155, Eu-154, Ce-144, Cs-137 Cs-134, Sb-125, Ru-106, Ru-103, Zr-95, Nb-95, Co-60)の分析法

(Ge(Li)検出器による γ 線スペクトロメトリ)

1. 要 旨

試料中の核分裂生成物より放出される γ 線を、Ge(Li)半導体検出器により検出し、多重波高分析装置でそのエネルギースペクトルを分析して、放射性核種の定性定量分析を行なう。

2. 適用範囲

本法は再処理工程中の水相、有機相の試料に適用する。検出限界は測定液について 1×10^{-5} $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ である。

3. 試薬および装置

- (1) 検出器：ORTEC製 8001-1020 V型Ge(Li)検出器
- (2) 多重波高分析器：CANBERRA製 8100型
- (3) 高圧電源：CANBERRA製 3005型
- (4) デジタルプリンタ：HEWLETT PACKARD製 5050 B型
- (5) X-Yプロッタ：HEWLETT PACKARD製 7004 B型
- (6) 測定容器：ポリエチレン製棒状瓶(RIカプセル, 容量5 ml)
- (7) 硝酸(1+4)
- (8) エタノール
- (9) 硝酸セシウム
- (10) ^{152}Eu 標準溶液($0.1 \mu\text{Ci}/\text{ml}$) 1 ml

4. 操 作

操 作 手 順	備 考
(1) 表 4.1.2 - 1 の前処理方法により、各試料採取ユニットの試料の希釈を行なう。希釈は水相の場合は硝酸 (1 + 4)、有機相はエタノールで行なう。	(1) 希釈する試料は放射能濃度が 0.1 ~ 1 $\mu\text{Ci}/\text{ml}$ になるようにする。
(2) 前処理後の試料は、表 4.1.2 - 1 の採取量で測定容器にエッペンドルフで採取する。	(2) 液量をできるだけ 1.0 ml にする。
(3) 測定容器をビニール袋に入れ、シールする。	
(4) 試料を検出器の下段にセットし、3000秒測定を行なう。	(4)(5) Ge(Li)検出器 / 波高分析器
(5) 測定結果をデジタルプリンタとXYプロッタに打ち出す。	の分析操作法参照。
(6) ^{152}Eu 標準溶液の測定を行ない、エネルギー較正線を算出する。	(6)(7) γ 線スペクトルの解析法 (3.1) 参照。
(7) 核分裂生成物の放出する各核種の γ 線 (表 4.1.2 - 2) のエネルギーの予想チャンネル数を、エネルギー較正線から算出する。	
(8) ピークの中心チャンネルとピークエネルギーを、ピークの存在の有無の場合に分けて以下のように求める。	(8) (7)で算出したチャンネルから ± 5 チャンネル以内にピークがあるかどうかで判定する。
<p style="text-align: center;"><u>ピークが存在する場合</u></p> <p>γ スペクトルの解析法 (3.1) にしたがってピークの中心チャンネルとピークエネルギーを算出する。</p>	
<p style="text-align: center;"><u>ピークが存在しない場合</u></p> <p>(7)で算出したチャンネルと表 3.1.2 - 2 のエネルギー値をそれぞれピークの中心チャンネルとエネルギーとする。</p>	
(9) ピークの計数値と標準偏差を γ 線スペクトルの解析法 (3.1) にしたがって算出する。ここで ^{106}Ru , ^{134}Cs については、ピークが存在する場合は、 ^{106}Ru は 616.3 KeV と 622.2 KeV, ^{134}Cs では 795.8 KeV と 801.8 KeV の各 2 本のピークを 1 本のピークと見なして計算し、ピークが存在しない場合には ^{106}Ru は 622.2 KeV, ^{134}Cs では 795.8 KeV についてのみ計算する。	(9) ピークが存在しない場合には、ピークの中心から境界までを ± 5 チャンネルとする。
(10) ^{241}Am のピークが存在する場合は、 ^{237}U の 208.0 KeV のピークの存在の有無の場合に分けて以下のように求める。	

操 作 手 順	備 考
<p><u>ピークが存在しない場合</u></p> <p>(9)と同様にして ^{241}Am のピークの計数値を求める。</p> <p><u>ピークが存在する場合</u></p> <p>^{239}Pu の 129.3 KeV のピークと ^{235}U の 185.7 KeV のピークの存在の有無の場合に分けて以下のように求める。</p> <p>① ^{239}Pu, ^{235}U とも存在しない場合は次式にしたがって ^{241}Am の計数値から ^{237}U の寄与分を差し引いて正味の計数値 $A(^{241}\text{Am})$ 59.9 KeV を算出する。</p> $A(\text{Am}) 59.5 = A(\text{Am} + ^{237}\text{U}) 59.5 - 1.74 \cdot A(^{237}\text{U}) 208.0$ <p>$A(\text{Am} + ^{237}\text{U}) 59.5$: 59.5 KeV ピークの全計数値 $A(^{237}\text{U}) 208.0$: ^{237}U の 208.0 KeV ピークの計数値</p> <p>② ^{239}Pu が存在する場合は次式にしたがって ^{237}U の正味の計数値を求めた後、①にしたがって ^{241}Am の正味の計数値 $A(^{237}\text{U}) 208.0$ を算出する。</p> $A(^{237}\text{U}) 208.0 = A(\text{Pu} + ^{237}\text{U}) 203.5 + 208.0 - 0.0677 \cdot A(\text{Pu}) 129.3$ <p>$A(\text{Pu} + ^{237}\text{U}) 203.5 + 208.0$: ^{239}Pu の 203.5 KeV と ^{237}U の 208.0 KeV の二重ピークの計数値 $A(\text{Pu}) 129.3$: ^{239}Pu の 129.3 KeV ピークの計数値</p> <p>③ ^{235}U が存在する場合、次式にしたがって ^{237}U の正味の計数値を求めた後、①にしたがって ^{241}Am の正味の計数値を算出する。</p> $A(^{237}\text{U}) 208.0 = A(^{235}\text{U} + ^{237}\text{U}) 205.3 + 208.0 - 0.0822 \cdot A(^{235}\text{U}) 185.7$ <p>$A(^{235}\text{U} + ^{237}\text{U}) 205.3 + 208.0$: ^{235}U の 205.3 KeV と ^{237}U の 208.0 KeV の二重ピークの計数値 $A(^{235}\text{U}) 185.7$: ^{235}U の 185.7 KeV ピークの計数値</p> <p>④ ^{239}Pu, ^{235}U とも存在する場合、次式にしたがって ^{237}U の正味の計数値を求めた後、①にしたがって ^{241}Am の正味の計数値を算出する。</p> $A(^{237}\text{U}) 208.0 = A(\text{Pu} + ^{235}\text{U} + ^{237}\text{U}) 203.5 + 205.3 + 208.0 - 0.0677 \cdot A(\text{Pu}) 129.3 - 0.082 A(^{235}\text{U}) 185.7$ <p>$A(\text{Pu} + ^{235}\text{U} + ^{237}\text{U}) 203.5 + 205.3 + 208.0$: ^{239}Pu の 203.5 KeV と ^{235}U の 205.3 KeV と ^{237}U の 208.0 KeV の三重ピーク計数値</p>	

操 作 手 順	備 考
<p>(11) ^{95}Zr と ^{95}Nb のピークが存在する場合は、それぞれの妨害核種の ^{154}Eu と $^{234\text{m}}\text{Pa}$ の寄与分を次式にしたがって差し引き正味の計数値を算出する。</p> $A(\text{Zr})756.7 = A(\text{Zr} + \text{Eu})756.7 - 0.221 \cdot A(\text{Eu})1274.4$ $A(\text{Nb})765.8 = A(\text{Nb} + \text{Pa})765.8 - 0.816 \cdot A(\text{Pa})1001.0$ <p>$A(\text{Zr})756.7$: ^{95}Zr の正味の計数値 $A(\text{Zr} + \text{Eu})756.7$: 756.7 KeV ピークの全計数値 $A(\text{Eu})1274.4$: ^{154}Eu の 1274.4 KeV ピークの計数値 $A(\text{Nb})765.8$: ^{95}Nb の正味の計数値 $A(\text{Nb} + \text{Pa})765.8$: 765.8 KeV ピークの全計数値 $A(\text{Pa})1001.0$: $^{234\text{m}}\text{Pa}$ の 1001.0 KeV ピークの計数値</p> <p>(12) 計数値(A)と標準偏差の3倍(3ΔA)とを比較する。 $A < 3\Delta A$ の場合にはその核種は検出限界以下である。 $A \geq 3\Delta A$ の場合にはγスペクトルの解析法(2.1)にしたがって放射エネルギーを算出する。</p>	

5. 解 説

- (1) 本法は、科学技術庁放射能測定基準化委員会編 Ge(Li)半導体検出器を用いた機器分析法(1972)を参考にして作成した。
- (2) 本法の分析操作手順フローシートを図4.1-2に示す。

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

35・222・55・FP・01 (1980)
(35・432・55・FP・01 (1980))

表 4.1.2 - 1 前処理方法, 試料採取量および検出限界
(試料採取ユニット別)

前処理方法		試料採取量	試料採取ユニット	検出限界	備考
希 積	1×10^4 倍 or 1×10^5 倍	1 ml	溶解液 (251V10) 252 R 1101 271 E 10, 272V 14	$1 \mu\text{Ci/ml}$	
	100 倍	1 ml	265 R 2201 273 V 50	1×10^{-3} $\mu\text{Ci/ml}$	
	1000 倍	1 ml	266 V 23 267 V 10	1×10^{-2} $\mu\text{Ci/ml}$	プルトニウム製品
前処理なし		1 ml	抽出工程全体 { 252 R 1101 を除く } 252 V 11 275 V 10, 20, 30 271 V 31, ST 12	1×10^{-4} $\mu\text{Ci/ml}$ 1×10^{-5} $\mu\text{Ci/ml}$	
溶 解	100 g U/ml に調整	1 ml	264 R 11	1×10^{-3} $\mu\text{Ci/gU}$	UO ₃ 製品
直 接		20 ml 5 ml	273 V 41, V 423 321 凝縮液 プール水, 冷却水	1×10^{-6} $\mu\text{Ci/ml}$	
		500 ml	322 凝縮液 その他環境レベル試料	1×10^{-7} $\mu\text{Ci/ml}$	

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

35・222・55・FP・01 (1980)
(35・432・55・FP・01 (1980))

表 4.1.2 - 2 各核種の半減期, γ 線エネルギーの計数効率と放出率

Nuclide	Half-life	γ - energy (keV)	Efficiency		Emission Probability
			(下 段) $\times 10^{-2}$	(中 段) $\times 10^{-3}$	
Am-241	432 y	59.5	5.50	4.16	0.359
Ce-144	284.5 d	133.5	6.78	5.60	0.111
Cs-137	30.17 y	661.6	1.39	1.35	0.850
Ru-106	366.58 d	616.3 622.2	1.48	1.45	0.106
Zr-95	63.98 d	756.7	1.20	1.19	0.546
Nb-95	34.97 d	765.8	1.18	1.17	0.9982
Pu-239	2.413×10^4 y	129.3 203.5	6.80 5.15	5.60 4.55	6.26×10^{-5} 5.60×10^{-6}
U-237	6.752 d	59.5 208.0	5.50 5.02	4.16 4.47	0.345 0.217
U-235	7.038×10^8 y	185.7 205.3	5.40 5.10	4.80 4.50	0.540 0.047
Pa-234m	1.175 m	766.6 1001.0	1.17 0.875	1.16 0.880	0.0036 0.0059
Pa-233	26.95 d	312.0	3.26	2.97	0.372
Th-234	24.101 d	63.0	5.80	4.40	0.0577
Eu-155	4.96 y	105.3	7.00	5.60	0.232
Eu-154	8.55 y	756.8 1274.4	1.20 0.662	1.19 0.685	0.0433 0.355
Ce-141	32.551 d	145.4	6.55	5.40	0.484
Ba-140	12.789 d	537.3	1.77	1.70	0.236
La-140	40.27 h	1596.2	0.513	0.545	0.955
Cs-134	2.063 y	795.8 801.8	1.12	1.12	0.9417
I-129	1.57×10^7 y	39.6	2.79	1.39	0.0752
Sb-125	2.712 y	427.9	2.28	2.12	0.301
Ru-103	39.35 d	497.1	1.92	1.83	0.864
Co-60	5.2719 y	1332.5	0.625	0.660	1.000
Mn-54	312.5 d	834.8	1.07	1.08	1.000

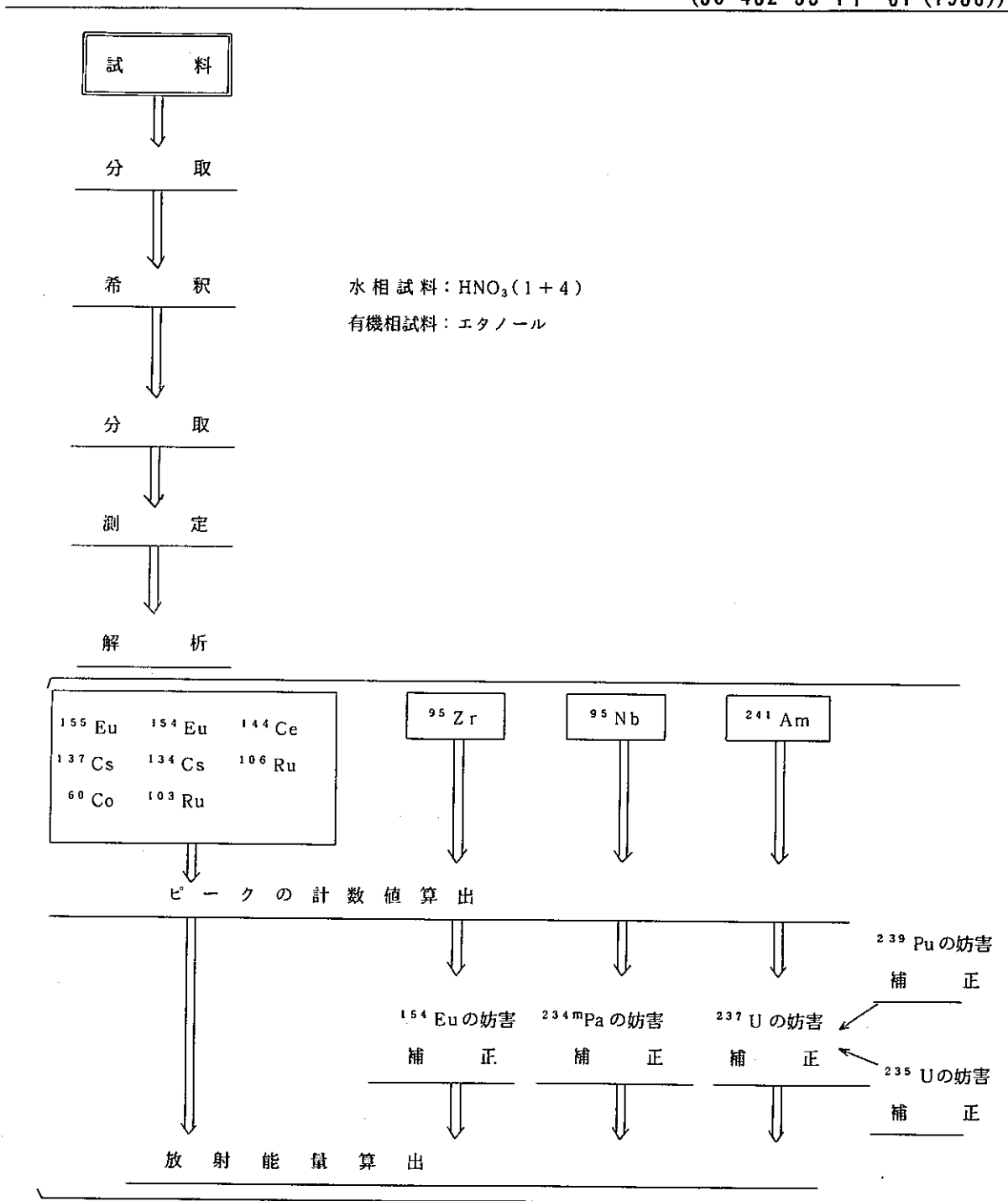


図 4.1.2 分析操作手順フローシート

核分裂生成物の分析法

(Ge(Li)検出器による γ 線スペクトロメトリー)

4.1.3. 三酸化ウラン製品中の核分裂生成物(Zr-95, Nb-95, Ru-103, Ru-106, Cs-137, Ce-144)の分析法

(Ge(Li) 検出器による γ 線スペクトロメトリー)

1. 要 旨

試料を硝酸で溶解し、Ge(Li) 検出器で測定して核分裂生成物を定量する。

2. 適用範囲

本法は三酸化ウラン製品中の核分裂生成物の分析に適用する。検出限界は $1 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/g U}$ である。

3. 試薬および装置

- (1) 硝酸 (1+1)
- (2) 測定容器：ポリエチレン製棒状瓶 (RI カプセル, 容量 5 ml)
- (3) 検出器：ORTEC 製 8001-1020 V 型 Ge(Li) 検出器
- (4) 多重波高分析器：CANBERRA 製 8100 型
- (5) 高圧電源：CANBERRA 型 3005 型
- (6) デジタルプリンタ：HEWLETT PACKARD 製 5050 B 型
- (7) XY プロッタ：HEWLETT PACKARD 製 7004 B 型
- (8) ^{152}Eu 標準溶液 ($0.1 \mu\text{Ci/ml}$) 1 ml

4. 操 作

操 作 手 順	備 考
(1) 試料約 2.5 g を秤量瓶に採取して正確に秤量し、硝酸 (1+1) で加熱溶解して 20ml に定容する。	(1) 測定時の γ 線の自己吸収を防ぐために溶解する。
(2) 溶解液 1ml をエッペンドルフピペットで測定容器に採取し、ビニール袋に入れて口をシールする。	
(3) 試料を検出器の下段にセットし、測定時間を 3000 秒に設定して測定を行なう。	(3)(4) Ge(Li) 検出器 / 波高分析器の分析操作法参照。

操 作 手 順	備 考
<p>(4) 測定結果をデジタルプリンタとX-Yプロッタに打ち出す。</p> <p>(5) ^{152}Eu 標準容液の測定を行ない、エネルギー較正線を算出する。</p> <p>(6) 核分裂生成物の放出する各核種の各 γ 線 (表 4.1.3-1) のピークの予想チャンネル数を、エネルギー較正線から算出する。</p> <p>(7) ピークの中心チャンネルとピークエネルギーを、ピークの存在の有無の場合に分けて以下のように求める。 <u>ピークが存在する場合</u> γ スペクトルの解析法 (3.1) にしたがってピークを中心チャンネルとピークエネルギーを算出する。 <u>ピークが存在しない場合</u> (6) で算出したチャンネルと表 3.1.3-1 のエネルギー値それぞれをピークを中心チャンネルとエネルギーとする。</p> <p>(8) ピークの計数値と標準偏差を γ スペクトルの解析法 (3.1) にしたがって算出する。ここで ^{106}Ru については、ピークが存在する場合は 616.3 KeV と 622.2 KeV の 2 本のピークを 1 本のピークと見なして計算し、ピークが存在しない場合には 622.2 KeV についてのみ計算する。</p> <p>(9) 次式にしたがって、^{95}Zr と ^{95}Nb の計数値からそれぞれのピークへの妨害核種 ^{154}Eu と $^{234\text{m}}\text{Pa}$ の寄与分を差し引いて正味の計数値を算出する。 $A(\text{Zr}) 756.7 = A(\text{Zr} + \text{Eu}) 756.7 - 0.221 \cdot A(\text{Eu}) 1274.4$ $A(\text{Nb}) 765.8 = A(\text{Nb} + \text{Pa}) 765.8 - 0.816 \cdot A(\text{Pa}) 1001.0$ $A(\text{Zr}) 756.7 : ^{95}\text{Zr} \text{ の正味の計数値}$ $A(\text{Zr} + \text{Eu}) 756.7 : 756.7 \text{ KeV ピークの全計数値}$ $A(\text{Eu}) 1274.4 : ^{154}\text{Eu} \text{ の } 1274.4 \text{ KeV ピークの計数値}$ $A(\text{Nb}) 765.8 : ^{95}\text{Nb} \text{ の正味の計数値}$ $A(\text{Nb} + \text{Pa}) 765.8 : 765.8 \text{ KeV ピークの全計数値}$ $A(\text{Pa}) 1001.0 : ^{234\text{m}}\text{Pa} \text{ の } 1001.0 \text{ KeV ピークの計数値}$ </p> <p>(10) 計数値(A)と標準偏差の3倍(3ΔA)とを比較する。 $A < 3 \Delta A$ の場合にはその核種は検出限界以下である。 $A \geq 3 \Delta A$ の場合には、次式にしたがって放射エネルギー</p>	<p>(5) γ スペクトルの解析法 (3.1) 参照</p> <p>(7) (6) で算出したチャンネルから ± 5 チャンネル以内にピークがあるかどうかで判定する。</p> <p>(8) ピークが存在しない場合には、ピークを中心から境界までを ± 5 チャンネルとする。</p>

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

35・271・55・FP・01 (1980)

操 作 手 順	備 考
<p>x ($\mu\text{Ci/gU}$)を算出する。</p> $x (\mu\text{Ci/gU}) = \frac{A}{2.22 \times 10^6 t \cdot \epsilon_r \cdot a_i \cdot W} \times \frac{100}{F}$ <p> t : 測定時間 (min) ϵ_r : 計数効率 (表 4.1.3) a_i : γ線の放出率 (表 4.1.3) W : 試料採取量 (g) F : 三酸化ウラン中のウラン含量* (%) </p>	<p>*計量分析結果を使用する。</p>

5. 解 説

(1) 本法は、

- i) 科学技術庁：Ge (Li) 半導体検出器を用いた機器分析法 (昭和 51 年制定)
 - ii) C.M. Lederer et al. : Table of Isotopes, 7th edition
- を参考にして作成した。

(2) 試料の γ 線スペクトルの一例を図 4.1.3-1 に示す。

(3) 本法の分析操作手順フローシートを図 4.1.3-2 に示す。

表 4.1.3 核分裂生成物の放出する γ 線データ

核 種	半 減 期	γ 線エネルギー (KeV)	計 数 効 率 (ϵ_r)	放 出 率 (a_i)
Zr - 95	63.98d	756.7	1.20×10^{-2}	0.546
Nb - 95	34.97d	765.8	1.18×10^{-2}	0.9982
Ru - 103	39.35d	497.1	1.92×10^{-2}	0.864
Ru - 106	366.58d	{ 616.3 622.2	1.48×10^{-2}	0.106
Cs - 137	30.17y	661.6	1.39×10^{-2}	0.850
Ce - 144	284.5 d	133.5	6.78×10^{-2}	0.111

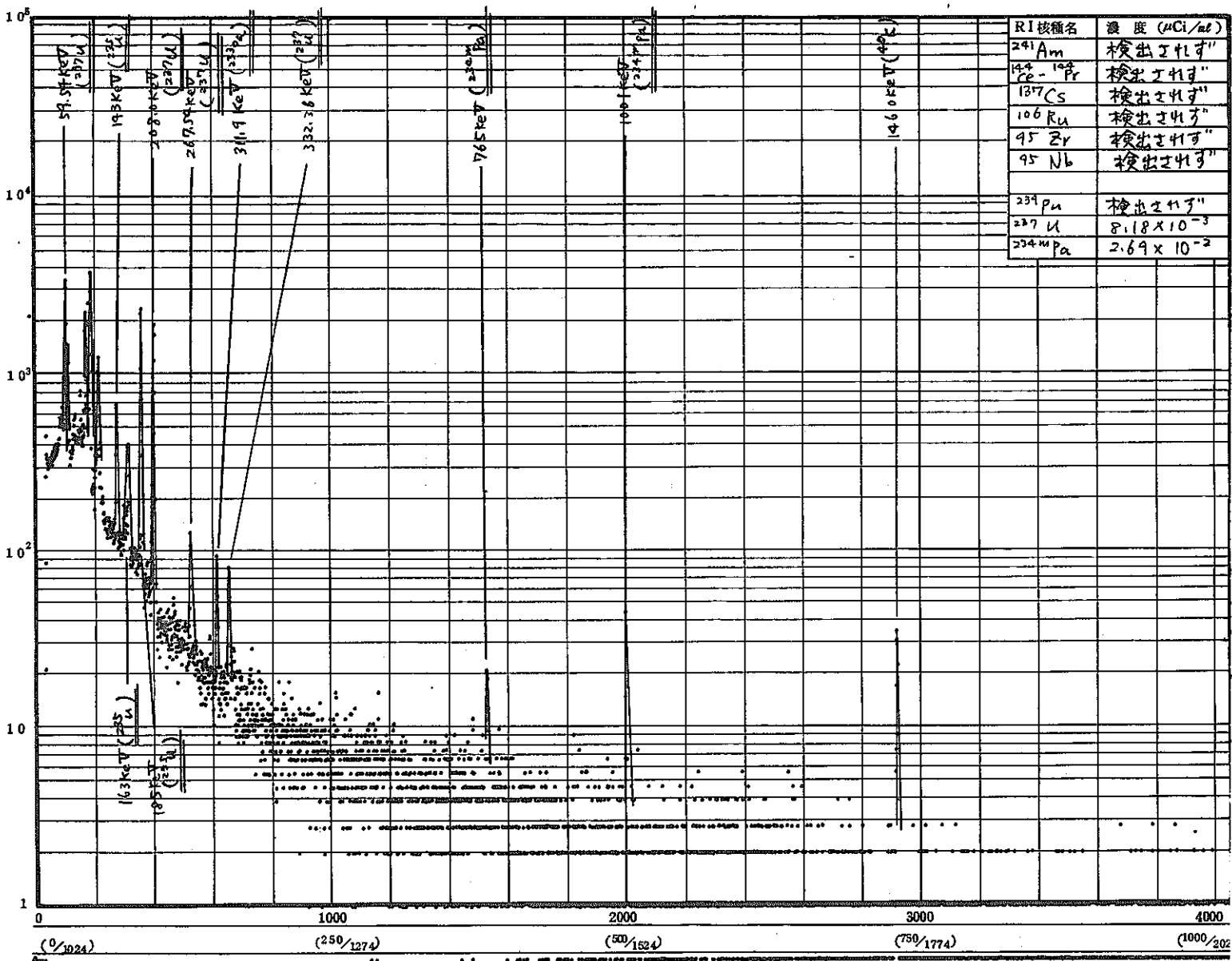
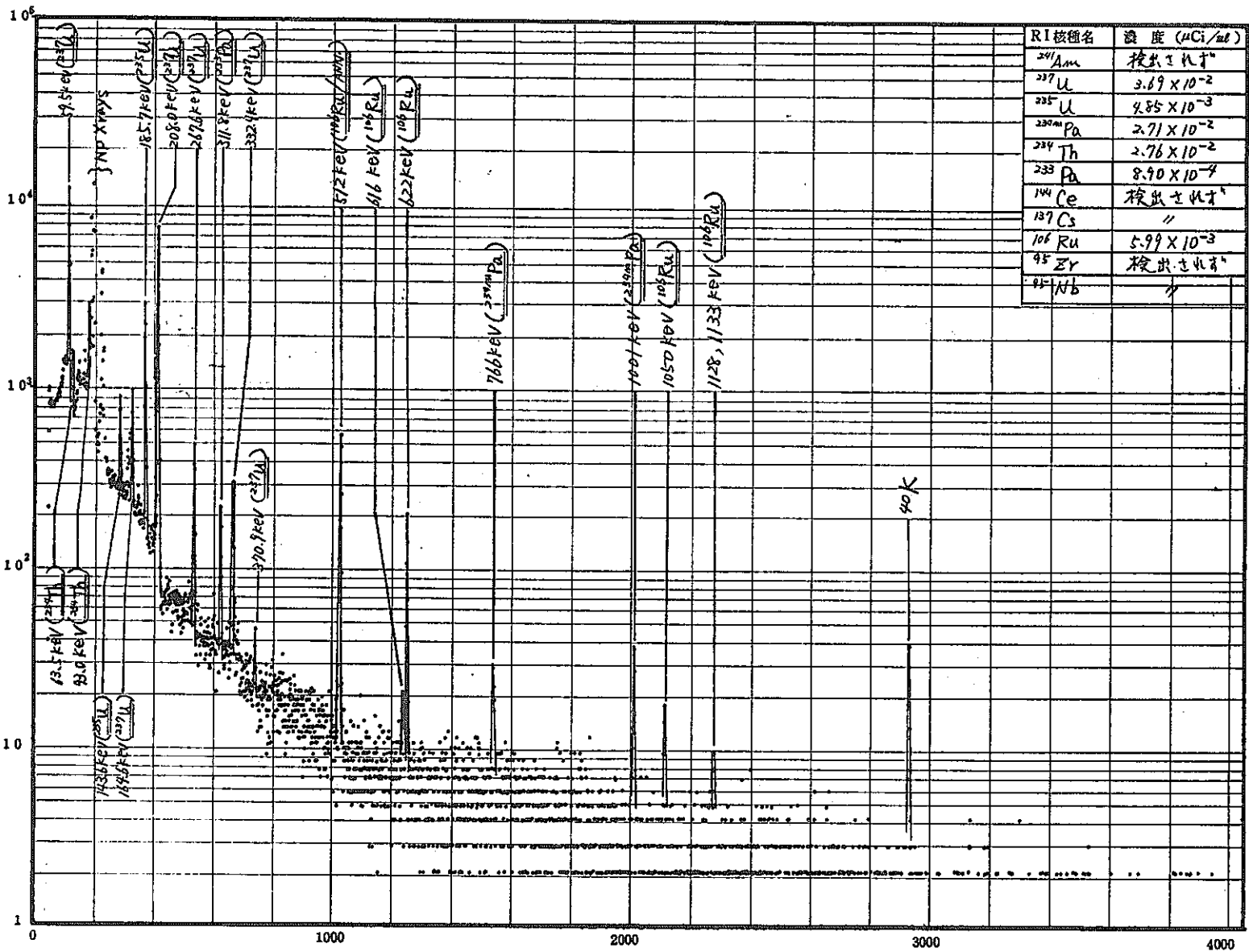


図 4.1.3 - 1 三酸化ウラン製品のγ線スペクトル例

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析法

35-271-55-FP-01 (1980)



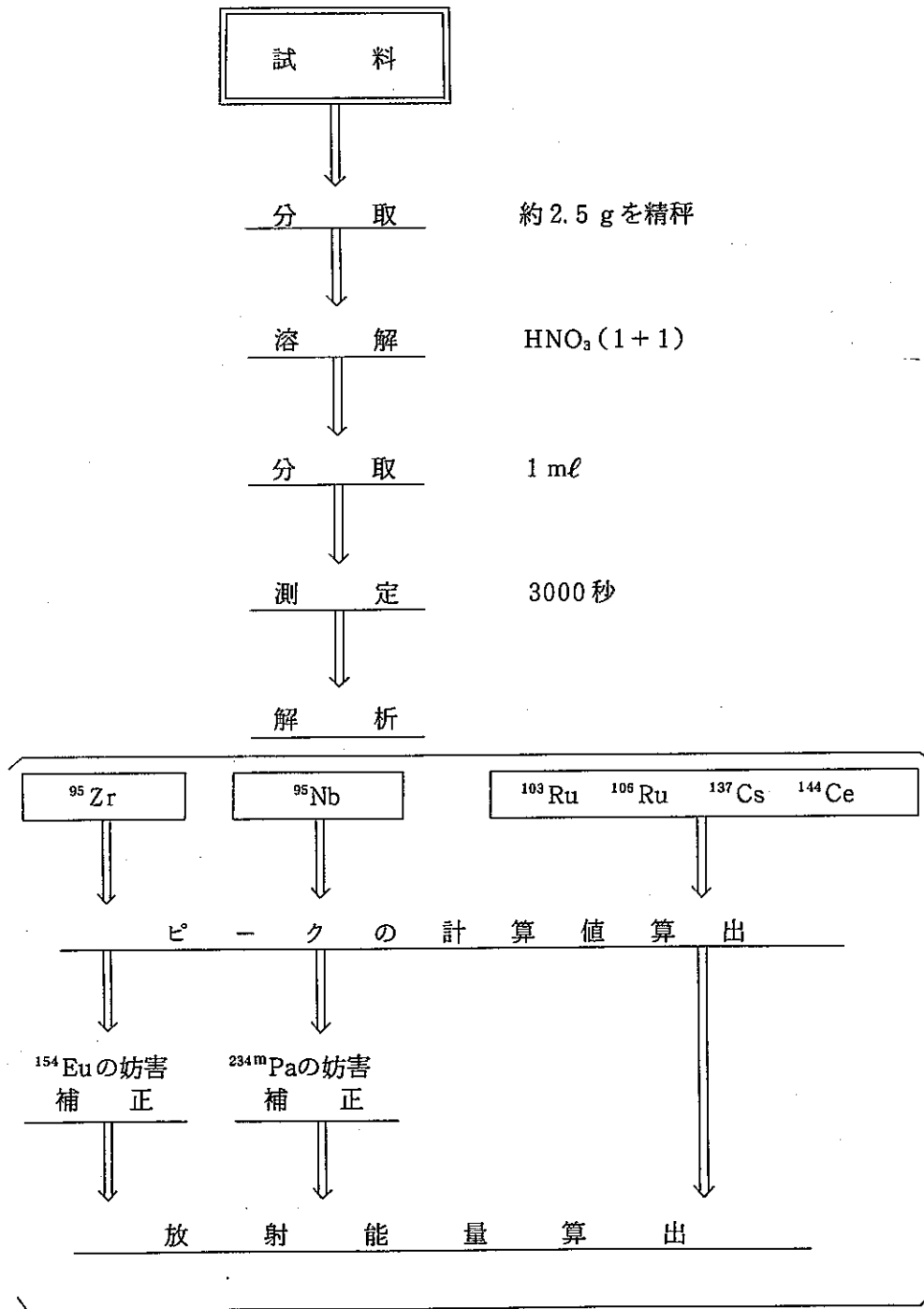


図 4.1.3-2 分析操作手順フローシート

三酸化ウラン製品中の核分裂生成物の分析法

(Ge(Li)検出器によるγ線スペクトロメトリー)

4.1.4 硝酸プルトニウム製品中の核分裂生成物 (Zr-95, Nb-95, Ru-103, Ru-106, Cs-137, Ce-144) の分析法

(Ge (Li) 検出器による γ 線スペクトロメトリー)

1. 要 旨

試料を硝酸で希釈し、Ge (Li) 検出器で測定して核分裂生成物を定量する。

2. 適用範囲

本法は硝酸プルトニウム製品中の核分裂生成物の分析に適用する。検出限界は $1 \times 10^{-2} \mu\text{Ci} / \text{g Pu}$ である。

3. 試薬および装置

- (1) 硝 酸 (1+1)
- (2) 測定容器：ポリエチレン製棒状瓶 (RI カプセル, 容量 5ml)
- (3) 検 出 器：ORTEC 製 8001-1020V 型 Ge (Li) 検出器
- (4) 多重波高分析器：CANBERRA 製 8100 型
- (5) 高圧電源；CANBERRA 製 3005 型
- (6) デジタルプリンタ：HEWLETT PACKARD 製 5050B 型
- (7) X-Yプロッタ：HEWLETT PACKARD 製 7004 B 型
- (8) ^{152}Eu 標準溶液 ($0.1 \mu\text{Ci}/\text{ml}$) 1ml

4. 操 作

操 作 手 順	備 考
(1) 試料 0.5ml をエッペンドルフピペットでメスフラスコ (50ml) に採取し、硝酸 (1+1) で定容する。	(1) 原液は放射能強度が大きく、測定が困難であるので希釈を行なう。
(2) 希釈液 1ml をエッペンドルフピペットで測定容器に採取し、ビニール袋に入れて口をシールにする。	
(3) 試料を検出器の中段にセットし、3000 秒間測定を行なう。	(3)(4) Ge (Li) 検出器 / 波高分析器の分析操作法参照。

操 作 手 順	備 考
<p>(4) 測定結果をデジタルプリンタとY-Yプロッタに打ち出す。</p> <p>(5) ^{152}Eu 標準溶液の測定を行ない、エネルギー較正線を算出する。</p> <p>(6) 核分裂生成物の放出する各核種の各γ線(4.1.4-1)のピークの予想チャンネル数を、エネルギー較正線から算出する。</p> <p>(7) ピークの中心チャンネルとピークエネルギーを、ピークの存在の有無の場合に分けて以下のように求める。 <u>ピークが存在する場合</u> γ線スペクトルの解析法(3.1)にしたがってピークの中心チャンネルとピークエネルギーを算出する。 <u>ピークが存在しない場合</u> (6)で算出したチャンネルと表3.1.4-1のエネルギー値それぞれをピークの中心チャンネルとエネルギーとする。</p> <p>(8) ピークの計数値と標準偏差をγ線スペクトルの解析法(3.1)にしたがって算出する。ここで^{106}Ruについてはピークが存在する場合は616.3KeVと622.2KeVの2本のピークを1本のピークと見なして計算し、ピークが存在しない場合には622.2KeVについてのみ計算する。</p> <p>(9) 次式にしたがって^{95}Zrと^{95}Nbの計数値からそれぞれのピークへの妨害核種、^{154}Euと$^{234\text{m}}\text{Pa}$の寄与分を差し引いて正味の計数値を算出する。</p>	<p>(5) γ線スペクトルの解析法(3.1)参照</p> <p>(7) (6)で算出したチャンネルから±5チャンネル以内にピークがあるかどうかで判定する。</p> <p>(8) ピークが存在しない場合には、ピークの中心から境界までを±5チャンネルとする。</p>
$A(\text{Zr})_{756.7} = A(\text{Zr} + \text{Eu})_{756.7} - 0.212 \cdot A(\text{Eu})_{1274.4}$ $A(\text{Nb})_{765.8} = A(\text{Nb} + \text{Pa})_{765.8} - 0.804 \cdot A(\text{Pa})_{1001.0}$ <p>$A(\text{Zr})_{756.7}$: ^{95}Zrの正味の計数値</p> <p>$A(\text{Zr} + \text{Eu})_{756.7}$: 756.7KeVピークの全計数値</p> <p>$A(\text{Eu})_{1274.4}$: ^{154}Euの1274.4KeVピークの計数値</p> <p>$A(\text{Nb})_{765.8}$: ^{95}Nbの正味の計数値</p> <p>$A(\text{Nb} + \text{Pa})_{765.8}$: 765.8KeVピークの全計数値</p> <p>$A(\text{Pa})_{1001.0}$: $^{234\text{m}}\text{Pa}$の1001.0KeVピークの計数値</p>	

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

35・282・55・FP・01 (1980)

操 作 手 順	備 考
<p>(10) 計数值Aと標準偏差の3倍(3ΔA)とを比較する。A < 3ΔAの場合にはその核種は検出限界以下である。A ≥ 3ΔAの場合には、次式にしたがって放射能量x (μCi/gPu)を算出する。</p> $x (\mu\text{Ci/gPu}) = \frac{A}{2.22 \times 10^6 t \cdot a_i} \times \frac{1000}{C} \times \frac{100}{\epsilon_r}$ <p>t : 測定時間 (min) ε_r : 計数効率(%) (表 4.1.4-1) a_i : γ線の放出率 (表 4.1.4-1) C : 試料のプルトニウム濃度* (g/l)</p>	<p>* 計量分析結果を使用する。</p>

5. 解 説

(1) 本法は

i) 科学技術庁：Ge(Li)半導体検出器を用いた機器分析法 (昭和51年制定)

ii) C.M.Lederer et al.: Table of Isotopes, 7th edition

を参考にして作成した。

(2) 試料のγ線スペクトルの一例を図4.1.4-1に示す。

(3) 本法の分析操作手順フローシートを図4.1.4-2に示す。

表 4.1.4 核分裂生成物の放出するγ線データ

核 種	半 減 期	γ線エネルギー (KeV)	計 数 効 率 (ε _r)	放 出 率 (a _i)
Zr-95	63.98 d	756.7	1.19 × 10 ⁻³	0.546
Nb-95	34.97 d	765.8	1.17 × 10 ⁻³	0.9982
Ru-103	39.35 d	497.1	1.83 × 10 ⁻³	0.864
Ru-106	366.58 d	616.3 (622.2)	1.45 × 10 ⁻³	0.106
Cs-137	30.17 y	661.6	1.35 × 10 ⁻³	0.850
Ce-144	284.5 d	133.5	5.60 × 10 ⁻³	0.111

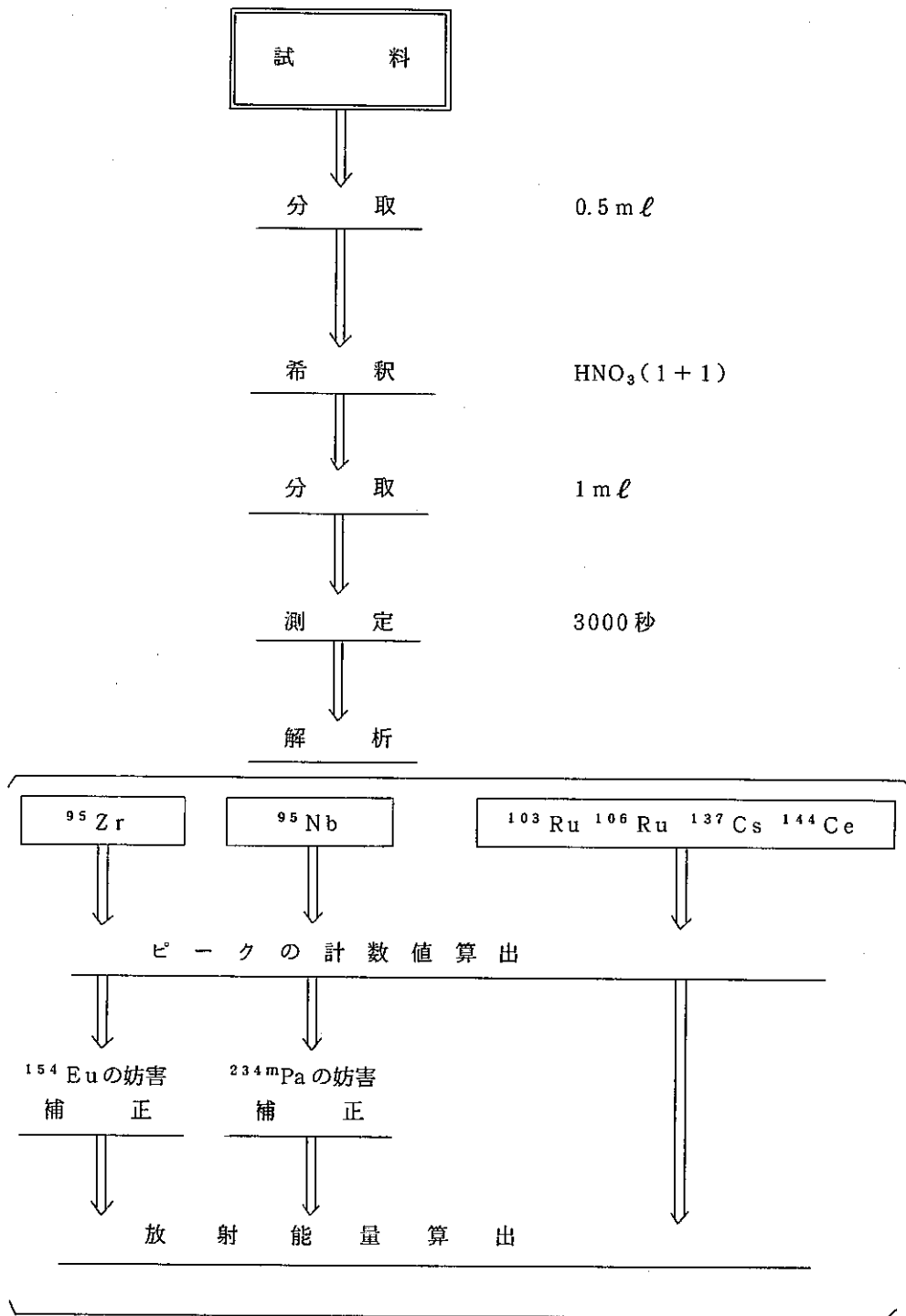


図 4.1.4-2 分析操作手順フローシート図

硝酸プルトニウム製品中の核分裂生成物の分析法
(Ge(Li)検出器によるγ線スペクトロメトリー)

4.1.5 硝酸プルトニウム製品中の Am-241 の分析法

(Ge(Li)検出器による γ 線スペクトロメトリー)

1. 要 旨

試料を硝酸で希釈し、Ge(Li)検出器で測定して硝酸プルトニウム中の²⁴¹Amの定量を行なう。

2. 適用範囲

本法は硝酸プルトニウム製品中の²⁴¹Amの分析に適用する。検出限界は、0.15 ppm/Pu である。

3. 試薬および装置

- (1) 硝 酸 (1+1)
- (2) 測定容器：ポリエチレン製棒状瓶 (RI カプセル, 容量 5ml)
- (3) 検 出 器：ORTEC 製 8001-1020V 型 Ge(Li) 検出器
- (4) 多重波高分析器：CANBERRA 製 8100 型
- (5) 高圧電源：CANBERRA 製 3005 型
- (6) デジタルプリンタ：HEWLETT PACKARD 製 5050B 型
- (7) X-Yプロッタ：HEWLETT PACKARD 製 7004 B 型
- (8) ¹⁵²Eu 標準溶液 (0.1 μ Ci/ml)

4. 操 作

操 作 手 順	備 考
(1) 試料 0.5ml をエペンドルフピペットでメスフラスコ (50ml) に採取し、硝酸(1+1)で定容する。	(1) 原液は放射能強度が大きく、測定が困難であるので希釈を行なう。
(2) 希釈液 1ml エペンドルフピペットで測定容器に採取し、ビニル袋に入れて口をシールする。	
(3) 試料を検出器の中段にセットし、3000 秒間測定を行なう。	(3)(4) Ge(Li)検出器/波高分析器の分析 操作法参照

操 作 手 順	備 考
(4) 測定結果をデジタルプリンタとX-Yプロッタに打ち出す。	
(5) ^{152}Eu 標準溶液の測定を行ない、エネルギー校正線を算出する。	(5) γ 線スペクトルの解析法(3.1)参照
(6) γ 線スペクトルの解析法(3.1)にしたがって、表4.1.5-1に示す ^{241}Am , ^{239}Pu , ^{237}U の γ 線ピークについてピークを中心チャンネル、ピークエネルギーおよびピークの計数値を算出する。	
(7) ^{237}U の208.0KeVピークの正味計数値 $A(\text{U})_{208.0}$ を次式にしたがって算出する。 $A(\text{U})_{208.0} = A(\text{Pu} + \text{U})_{203.5+208.0} - 0.0727A(\text{Pu})_{129.3}$ $A(\text{Pu} + \text{U})_{203.5+208.0} : ^{239}\text{Pu} \text{の } 203.5\text{KeV} \text{と} ^{237}\text{U} \text{の } 208.0\text{KeV} \text{の二重ピーク計数値}$ $A(\text{Pu})_{129.3} : ^{239}\text{Pu} \text{の } 129.3\text{KeV} \text{ピークの計数値}$	
(8) ^{241}Am の59.5KeVピークの正味計数値 $A(\text{Am})_{59.5}$ を次式にしたがって算出する。 $A(\text{Am})_{59.5} = A(\text{Am} + \text{U})_{59.5} - 1.48A(\text{U})_{208.0}$ $A(\text{Am} + \text{U})_{59.5} : 59.5\text{KeV} \text{ピークの全計数値}$	
(9) ^{241}Am の含有量を次式にしたがって算出する。 $^{241}\text{Am}(\mu\text{Ci}/\text{g}\cdot\text{Pu}) = \frac{A(\text{cpm})}{2.22 \times 10^6} \times \frac{1000}{C} \times \frac{100}{\epsilon r(\%) } \times \frac{1}{t} \times \frac{100}{ai(\%)}$ <p>t : 測定時間 (min) ϵr : 計数効率 (%) ai : γ線の放出率 (%) C : 試料のプルトニウム濃度* (g/ℓ)</p>	* 計量分析結果を使用する。

5. 解 説

(1) 本法は

i) 科学技術庁 : Ge(Li)半導体検出器を用いた機器分析法(昭和51年制定)

ii) R. Gunnink et al : UCRL-52139(1976)

を参考にして作成した。

(2) 試料の γ 線スペクトルは図4.1.4-1に示したものと同様である。

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

35・282・55・Am・01 (1980)

(3) 本法の分析操作手順フローシートを図 4.1.5 に示す。

表-4.1.5-1 核分裂生成物の放出する γ 線データ

核種	半減期	γ 線エネルギー (KeV)	計数効率 ($\epsilon\gamma$)	放出率 (ai)
Am-241	432y	59.5	5.50×10^{-2}	0.359
U-237	6.752d	59.5 208.0	5.50×10^{-2} 5.02×10^{-2}	0.345 0.217
Pu-239	2.413×10^4 y	129.3 203.5	6.80×10^{-2} 5.15×10^{-2}	6.26×10^{-5} 5.60×10^{-6}

表-4.1.5-1 ^{241}Am 等の放出する γ 線

核種	γ 線エネルギー (KeV)	備考
^{241}Am	59.5	^{237}U (59.5KeV)が妨害する。
^{239}Pu	129.3	
^{237}U	208.0	^{239}Pu (203.5KeV)が妨害する。

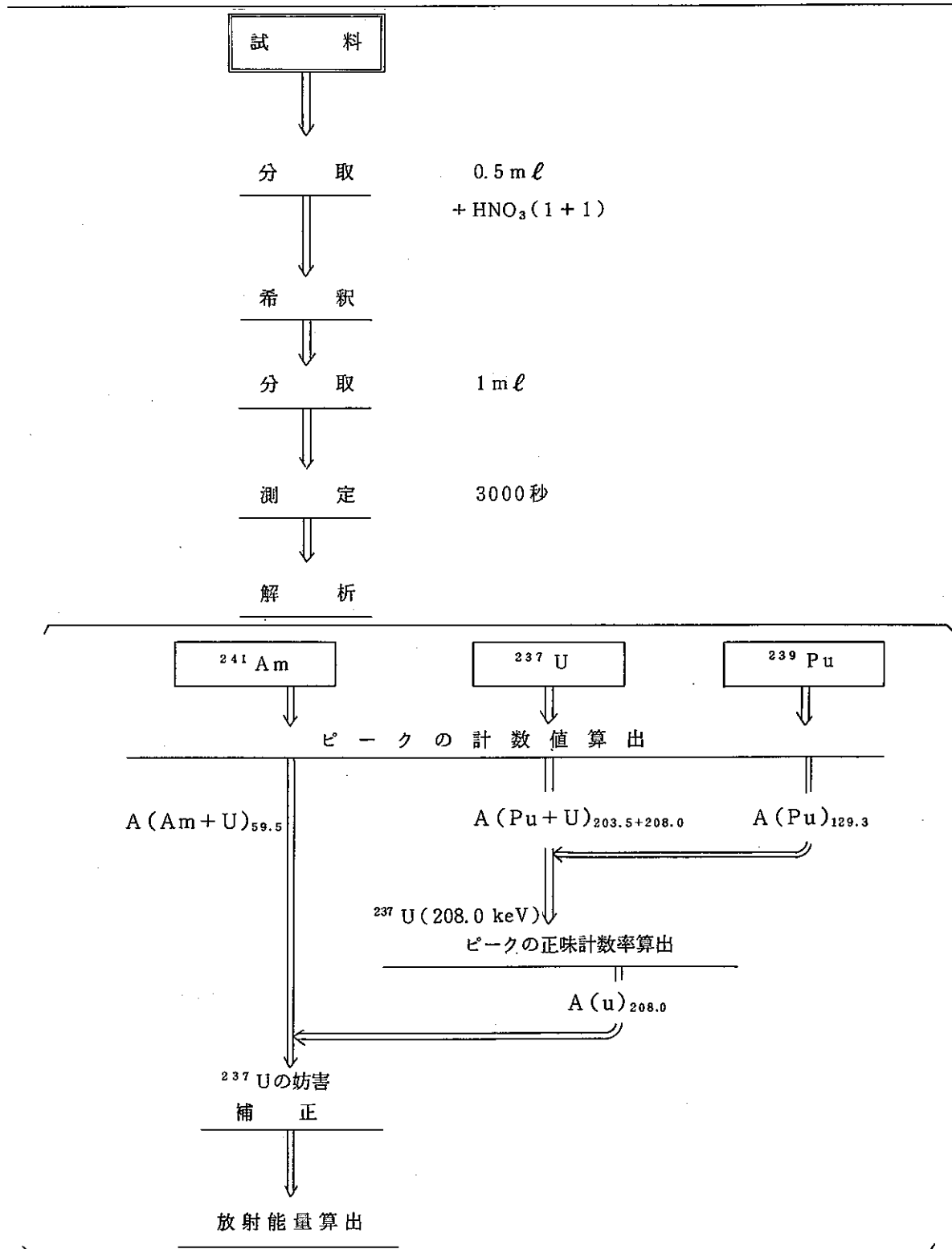


図- 4.1.5 分析操作手順フローシート

硝酸プルトニウム製品中のAm-241の分析法
(Ge(Li)検出器によるγ線スペクトロメトリー)

4.1.6 ^{129}I の分析法(四塩化炭素抽出/Ge(Li)検出器による r 線スペクトロメトリー)

1. 要 旨

試料に含まれる ^{129}I を四塩化炭素抽出法により分離し、 r 線計測法により測定、定量する。

2. 適用範囲

本法は、再処理工程中の水相試料中の ^{129}I の分析に適用する。検出限界は $1 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ である。

3. 試薬および装置

- (1) ヨウ化カリウム溶液 (10 mg I / ml)
- (2) 硝 酸 (1+1)
- (3) 過酸化水素 (30%)
- (4) 四塩化炭素
- (5) 亜硫酸ナトリウム (0.5%)
- (6) 振とう器 : TAIYO製 MIX-TOWER
- (7) r 線スペクトル測定装置 : APTEC PS-305-B31C Ge(HP)検出器
: CANBERRA製 8100型
- (8) 抽出容器 : ポリエチレン製棒状瓶 (容量 20 ml)
- (9) 測定容器 : ポリエチレン製試料瓶 (容量 5 ml)

4. 操 作

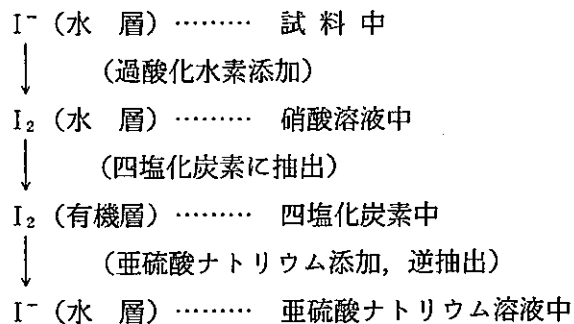
操 作 手 順	備 考
(1) 試料 2ml を抽出容器に採取する。	(3) 試料が 1 N 以上の酸性度の場合には、この操作は省略する。
(2) ヨウ化カリウム溶液 (10 mg I / ml) 1 滴を添加する。	
(3) 硝酸 (1+1) で溶液を約 1 N の酸性度に調整する。	
(4) 過酸化水素 (30%) 0.1 ml を加え、栓をして静かに攪	

操 作 手 順	備 考
<p>拌し、5分間放置する。</p> <p>(5) 四塩化炭素 2ml を加え密封(栓をし、その上からビニールテープで封をする)して、振とう器で2分間振とうする。</p> <p>(6) 水層(上層)を完全に吸い取り、四塩化炭素層(下層) 1 ml を別の抽出容器に採取する。</p> <p>(7) 採取した四塩化炭素層に亜硫酸ナトリウム溶液(0.5%) 1ml を加えて密封し、2分間振とうする。</p> <p>(8) 亜硫酸ナトリウム層 0.5ml を測定容器に採取する。</p> <p>(9) 採取した試料の γ 線スペクトルを測定し、39.6 KeV のピークの面積を算出する。</p> <p>(10) 次式にしたがって¹²⁹I 濃度を算出する。</p> $^{129}\text{I 濃度}(\mu\text{Ci/ml}) = \frac{A}{2.22 \times 10^6 t \cdot y} \times \frac{100}{\epsilon r}$ <p>A : 39.6 KeV のピーク面積 ϵ_r : ピークの計数効率 (%) t : 測定時間 (min) y : 抽出率 ai : γ 線の放出率 (0.0752)</p>	<p>(6) 最終調製試料への FP の混入を最小限にするため、水層をできるだけ除去する。</p> <p>(7) 亜硫酸ナトリウム溶液は酸化されやすいため、その日に調整する。</p> <p>(9) Ge (HP) 検出器/波高分析器の分析操作および γ スペクトルの解析法(3-1) 参照</p>

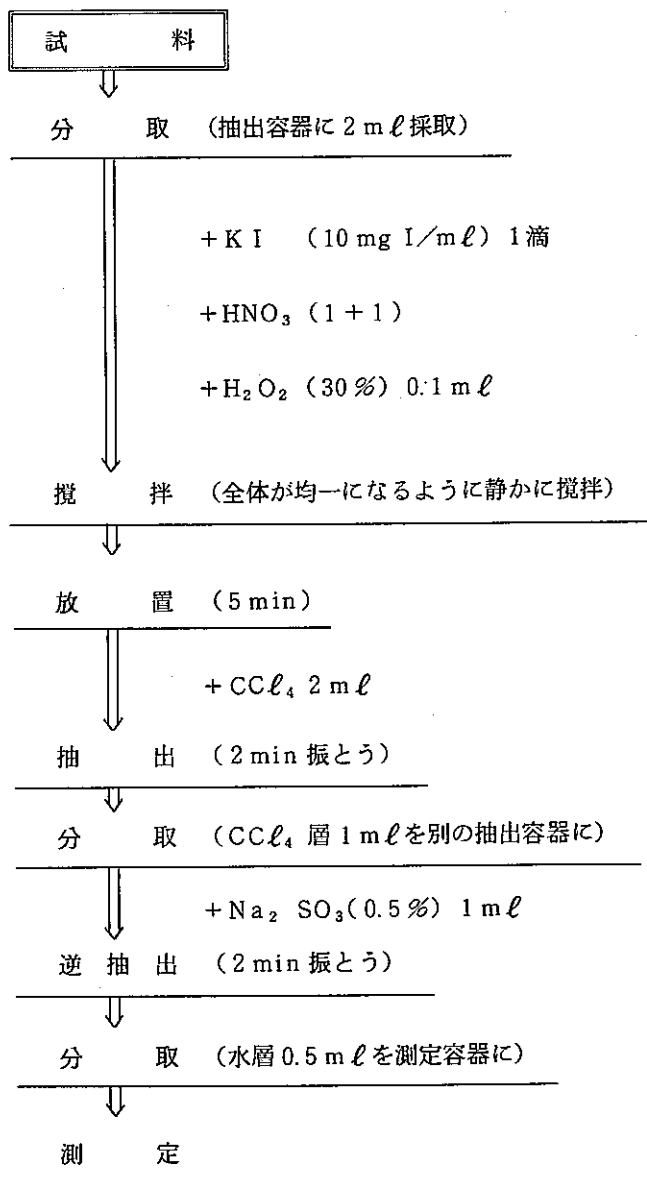
5. 解 説

(1) 原 理

本法はヨウ素が I_2 の状態で四塩化炭素に抽出され、他の F・P は抽出されないことを利用している。操作の各段階におけるヨウ素の化学形態変化を以下に示す。



- (2) 本法は、
- 1) 日本アイソトープ協会編,
 アイソトープ便覧 (1970), P107
 - 2) 日本アイソトープ協会編,
 ラジオアイソトープ講義と実習 (1975), P563 ~ 566
 - 3) Milton Kahn et al, Radiochemistry of Iodine NAS-NS-3062 (1977)
 を参考としてトレーサー試験を行ない実試料を用いて確立した。
- (3) 本法の分析操作手順フローシートを図-4.1.6に示す。



	A : ピーク面積 (Count)
	ϵ_T : 計数効率 (%)
	t : 測定時間 (30 min)
	y : 抽出率
$^{129}\text{I 濃度 } (\mu\text{Ci/ml}) = \frac{A}{2.22 \times 10^6 t \cdot y} \times \frac{100}{\epsilon_T}$	

図 4.1.6 分析操作手順フローシート

 ^{129}I の分析法(四塩化炭素抽出, γ 線スペクトロメトリー)

4.2 α 線放出核種の分析法

4.2.1 三酸化ウラン製品中の微量プルトニウムの分析法

(TTA抽出/Si検出器による α 線スペクトロメトリー)

1. 要 旨

三酸化ウランを溶解し、含有される微量のプルトニウムをTTA-キシレン溶液に抽出して α 線スペクトルを測定し、プルトニウムを定量する。

2. 適用範囲

本法は、三酸化ウラン製品中の微量プルトニウムの分析に適用する。検出限界は1(ppb)である。

3. 試薬および装置

- (1) 硝 酸 (1+4)
- (2) 塩酸ヒドロキシルアミン溶液 (35%)
- (3) 硝酸第二鉄溶液 (10%)
- (4) 亜硝酸ナトリウム溶液 (10%)
- (5) TTA-キシレン溶液 (11.1%)
- (6) 加熱装置(A) : エピラディアツール
- (7) 加熱装置(B) : ガスバーナーまたは高周波加熱装置
- (8) 試料皿 : SUS製, 直径25mm, 厚さ0.3mm
- (9) 抽出容器 : ポリエチレン製棒状瓶 (容量20ml)
- (10) α 線スペクトル測定装置 : ORTEC製 Si検出器
: 日立製505型 多重波高分析器
- (11) 振とう器 : TAIYO製 MIX-TOWER
- (12) 分光々度計 : 日立139型

4. 操 作

操 作 手 順	備 考
(1) UO_3 約 1.5 g をコニカルビーカー (100 ml) に採取し、硝酸 10 ml を加えて加熱、溶解する。	(1) ホットプレート上で加熱する。
(2) 溶解液のウラン濃度を直接比色法で測定する。	(2) 再処理工程における標準分析方法Ⅲ工程分析編 3.1.4 硝酸ウラン溶液中のウランの分析方法参照。
(3) 抽出容器に溶解液 2 ml を採取し、硝酸第二鉄溶液 (3.5%) 2 滴、塩酸ヒドロキシルアミン溶液 (35%) 2 滴を加えて 5 分間振とうする。	(3) 振とう器の設定値 (SPEED SELECT) は 8 とする。 振とう時に抽出容器のフタがはずれないようにビニールテープを巻いて封をしておく。
(4) 亜硝酸ナトリウム溶液 (10%) 10 滴を加え、10 分間振とうする。	
(5) TTA-キシレン (11.1%) 2 ml を加え、20 分間振とうする。5 分間放置して有機層 (上層) と水層 (下層) を分離する。	(5) 再処理工程における標準分析方法Ⅲ工程分析編 2.1.29 TTA-キシレン溶液 (11.1%) の調製法参照。
(6) 試料皿を、加熱装置 (A) であらかじめ加熱しておく。有機層 100 μl をエペンドルフピペットを用いて採取し、試料皿の中央に 1 滴ずつ滴下し、蒸発乾固する。	(6) 有機層の滴下は 1 滴が完全に乾固した後、次の 1 滴を滴下する。
(7) 試料皿を、加熱装置 (B) で 30 秒間赤熱状態で加熱する。	
(8) 試料の α 線スペクトルを 6000 秒測定する。	(8) α 線スペクトロメータの分析操作法参照。
(9) 次式にしたがってプルトニウムの含有量を算出する。 $\text{Pu (ppb/U)} = \frac{A}{0.222 \cdot E \cdot t} \times \frac{1000}{\text{Cu}} \times \frac{100}{\epsilon_\alpha} \times \frac{1}{\text{SA}}$ A : 5.16 MeV のピーク面積 (^{239}Pu , ^{240}Pu) (COUNT) ϵ_α : 計数効率 (%) t : 測定時間 (min) Cu : 溶解液のウラン濃度 (g/l) E : 抽出率	(9) SA は質量分析結果または燃料仕様書から算出しておく。 A は α 線スペクトルの解析法 (3.2) にしたがって算出する。

5. 解 説

(1) 原 理

本法は、TTAが選択的にプルトニウム(IV)を抽出することを利用している。試料を酸化、還元し、4価に調製する。その溶解試料からプルトニウムを抽出分離し α 線スペクトルを測定して、プルトニウムを定量する。

(2) 本法は、

1) R. A. Schnelder et al,

CACTUS, No.100 : HW53368

2) 動力炉・核燃料開発事業団東海事業所

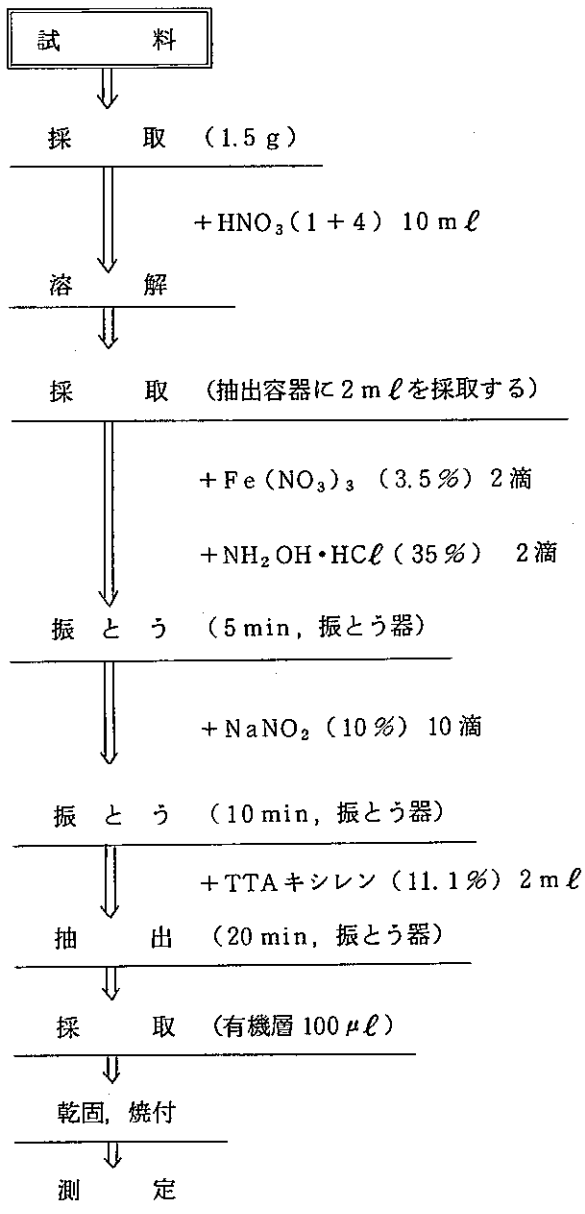
再処理工場工務部分析課, 再処理分析法

を参考としてトレーサー試験を行ない実試料を用いて確立した。

(3) TTAはプルトニウム(IV)を選択的に抽出するが、ウランもわずかに抽出するので、 α 線エネルギースペクトルを測定してウランの妨害を除く必要がある。

(4) 本法は、プルトニウムの含有率が低いウラン精製工程試料中のプルトニウムの分析にも適用できる。その場合には操作手順(1)を省略する。

(5) 本法の分析操作手順フローシートを図4.2.1に示す。



$$\text{Pu (ppb/U)} = \frac{A}{0.222 \cdot \epsilon_{\alpha} \cdot t \cdot S_A \cdot \text{Cu} \cdot E}$$

A : ピーク面積 (Count)
 ϵ_{α} : 計数効率
 t : 測定時間 (min)
 S_A : Puの比放射能 (Ci/g)
 Cu : U濃度 (g/l)
 E : 抽出率

図 4.2.1 分析操作手順フローシート

三酸化ウラン製品中の微量プルトニウムの分析法

(TTA抽出, α 線スペクトロメトリー)

4.2.2 プルトニウム中のプルトニウム-238の分析法

(Si 検出器による α 線スペクトロメトリー)

1. 要 旨

強塩基性陰イオン交換樹脂を用いて他の α -放射性核種よりプルトニウムを分離したのち、放射能計数試料皿上に乾固し、 α 線スペクトル分析を行ない、プルトニウム-238を定量する。

2. 適用範囲

本法はプルトニウム、およびプルトニウム-ウラン混合物中のプルトニウム-238の同位体比の測定に適用する。

3. 試薬および装置

- (1) 硝酸 (1+1), (1+5), (1+30), (1+500)
- (2) 硫酸第一鉄溶液 (0.001M)
- (3) 亜硝酸ナトリウム (0.1M)
- (4) イオン交換樹脂 : Dowex 1×2 または 1×4 の 200 ~ 400 メッシュのものを用いる。
- (5) α 線スペクトル測定装置 : ORTEC 製 Si 検出器, 日立製 505 型多重波高分析装置
- (6) イオン交換カラム
- (7) 試料皿 : SUS 製, 直径 25 mm
- (8) 加熱装置(A) : エピラディアツール
- (9) 加熱装置(B) : 高周波加熱装置

4. 操 作

操 作 手 順	備 考
[イオン交換カラムの調製] (1) イオン交換カラムの先端に石英ウール 5 mm, イオン交換樹脂 20mm を入れ, さらに石英ウールを 5 mm 入れる。 (2) カラムを保持台に設置し, 硝酸(1+500) 2ml, 硝酸	(1) 樹脂柱に気泡が入らないようにする。

操 作 手 順	備 考
<p>(1+1) 2 ml を順次流出する。</p> <p>(分離操作)</p> <p>(1) Puとして0.1~1 μg の試料をビーカー(25ml)に採取し、第一鉄溶液(0.001M) 100 μlを加えてよく振り混ぜ、5分間放置する。</p> <p>(2) 亜硝酸ナトリウム溶液1滴を加え、軽く振りまぜる。</p> <p>(3) 加熱装置(A)の上でゆっくり加熱蒸発し、乾固しない程度まで濃縮する。</p> <p>(4) 硝酸(1+1) 250 μlを加え、残渣を溶解する。</p> <p>(5) 溶解液をエッペンドルフピペットを用いて、イオン交換カラムの調製の操作手順(2)で準備したイオン交換樹脂の上端から流下する。受器として別のビーカー(25ml)を置き、流出液はすてる。</p> <p>(6) 硝酸(1+1)数滴でカラム内壁を洗い流す。流出液はすてる。</p> <p>(7) 硝酸(1+5) 2.5mlをカラムに加える。流出液はすてる。</p> <p>(8) 受器として新しいビーカー(25ml)を置き、カラムに硝酸(1+30) 2 mlを加えて、流出液を集める。</p> <p>(9) 溶離液は加熱装置(A)の上で乾固しないように蒸発濃縮する。</p> <p>(試料皿への試料焼付)</p> <p>(1) 加熱装置(A)の上であらかじめ試料皿を予熱しておく。</p> <p>(2) 試料をエッペンドルフピペットで一滴ずつ試料皿の中央に滴下して乾固する。くり返し操作し、全量を乾固させる。</p> <p>(3) 加熱装置(B)の上で試料皿を赤熱状態で15秒間加熱する。</p> <p>(試料の計測)</p> <p>(1) α線スペクトル測定装置を用いて最大ピークの高さが500カウント以上になるまで計測する。</p> <p>(2) プリンターに各チャンネルのカウント数とその積算値を打ち出す。</p>	<p>(1) Pu(VI)は第一鉄イオンによりPu(IV)に還元される。</p> <p>(2) PuをPu(III)からPu(IV)に酸化する。</p> <p>(3)(4) 試料の硝酸濃度の調整のために行なう。</p> <p>(5) Pu(IV)は樹脂に吸着される。流出液はAm, U, 一部のPuを含有している。</p> <p>(7) Pu以外のUなどを洗浄する。</p> <p>(8) Puを溶離する。</p> <p>(3) 試料によるα線の自己吸収を防ぐため。</p> <p>(1) α線スペクトロメータの分析操作法を参照。</p>

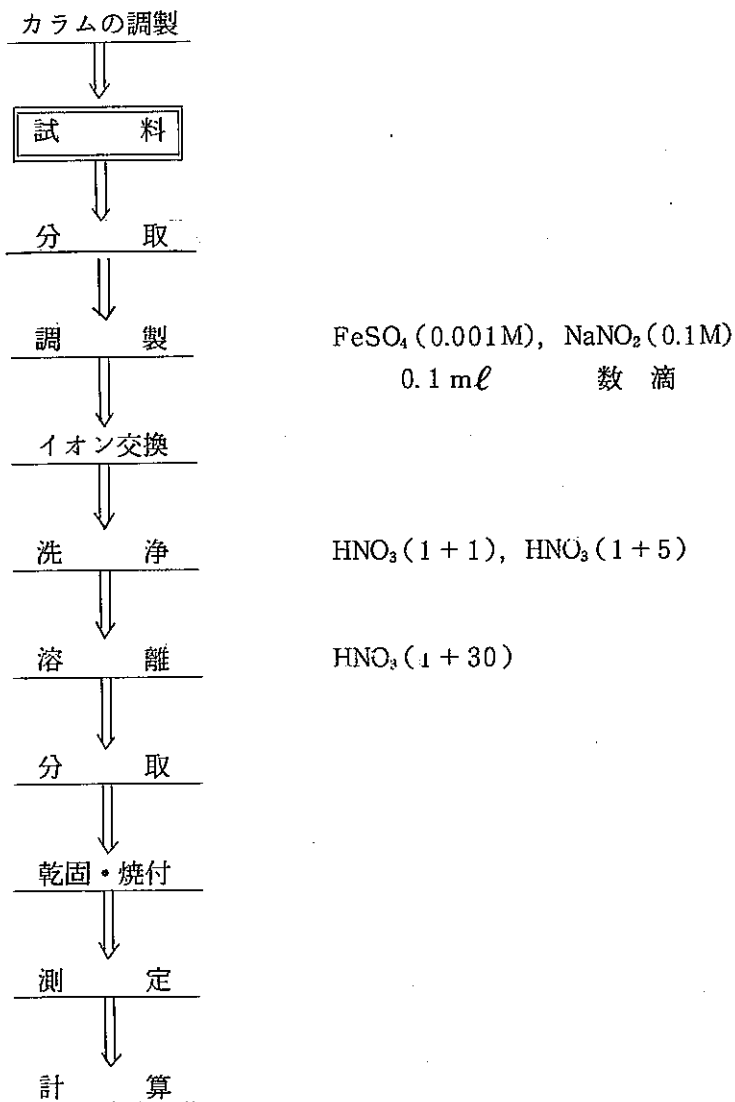
動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

35・892・54・Pu-238・01(1980)

操 作 手 順	備 考
<p>(3) X-Yレコーダーにスペクトルを打ち出す。</p> <p>(4) 検出器に新しい試料皿を入れ、1時間バックグラウンドを計測し、プリンターを用いて記録しておく。</p> <p>(5) γスペクトル測定装置を用いて試料を測定し、^{241}Amの放射エネルギー(A dpm)を算出する。</p> <p>(計 算)</p> <p>(1) 次のように結果の整理を行なう。</p> <p>(i) ^{238}Puのピーク(5.50MeVと5.46MeVの複合ピーク)のカウント数(B counts)を計算する。</p> <p>(ii) 1分間当りの^{238}Puピーク範囲のバックグラウンドのカウント数(C cpm)を計算する。</p> <p>(2) 次式により^{238}Puの放射エネルギー(D dpm)を計算する。</p> $D = \frac{(B/t - C)}{\epsilon_{\alpha}} - A$ <p>ϵ_{α} : 計数効率 t : 測定時間 (min)</p> <p>(3) 同様にして^{239}Pu(5.16MeV, 5.11MeV)と^{240}Pu(5.17MeV, 5.12MeV)の複合ピークの放射エネルギー(E dpm)を計算する。</p> <p>(4) 次式から^{238}Puの重量比の計算を行なう。</p> $W_8 = \frac{D}{E} \cdot \frac{(W_9 S_9 + W_0 S_0)}{S_8}$ <p>W_8, W_9, W_0 : $^{238}\text{Pu}, ^{239}\text{Pu}, ^{240}\text{Pu}$の重量比 S_8, S_9, S_0 : $^{238}\text{Pu}, ^{239}\text{Pu}, ^{240}\text{Pu}$の比放射能*</p>	<p>(5) 核分裂生成物の分析法(4.1.2)を参照。イオン交換後2日以内に測定する場合にはこの操作は省略してもよい。(その場合にはA=0)</p> <p>(i) α線スペクトルの解析法(3.2)を参照。</p> <p>(4) W_9, W_0については質量分析の結果を用いる。</p> <p>* $S_8 = 17.5 \text{ Ci/g}$ $S_9 = 6.16 \times 10^{-2}$ $S_0 = 2.22 \times 10^{-1}$</p>

5. 解 説

- (1) 本法はプルトニウムを取扱う作業のため、必ずグローブボックス内で操作を行なう。
- (2) プルトニウムの同位体分析は、通常は質量分析法により行なうが、この方法では ^{238}Pu は ^{238}U の妨害を受けて誤差が大きくなるので、本法を適用する。
- (3) 本法の分析操作手順フローシートを図4.2.2-1に示す。



$$W_8 = \frac{D}{E} \cdot \frac{(W_9 S_9 + W_0 S_0)}{S_8}$$

D : ²³⁸Pu の放射エネルギー (dpm)

E : ²³⁹Pu と ²⁴⁰Pu の放射エネルギー (dpm)

W₈, W₉, W₀ : ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu の重量比

S₈, S₉, S₀ : ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu の比放射能

図 4.2.2-1 分析操作手順フローシート

プルトニウム中のプルトニウム-238 の分析法

(α線スペクトロメトリー)

4.2.3 キュリウムの分析法

(Si検出器による α 線スペクトロメトリー)

1. 要 旨

試料を硝酸で希釈し、放射能計数試料皿上に乾固したのち、 α 線スペクトル分析を行ない、キュリウム-242, 244 を定量する。

2. 適用範囲

本法は、燃料溶解液、高放射性廃液および高放射性廃液濃縮液中のキュリウム-242, 244 の分析に適用する。定量下限は $0.1 \mu\text{Ci}/\text{m}\ell$ である。

3. 試薬および器具

- (1) 硝酸(1+5)
- (2) α スペクトル測定装置: ORTEC 製Si検出器, 日立製505型多重波高分析装置
- (3) 試料皿: SUS製, 25 mm
- (4) 加熱装置(A): エピラディアツール
- (5) 加熱装置(B): 高周波加熱装置あるいはガスバーナー

4. 操 作

操 作 手 順	備 考
〔試料の希釈〕 (1) 試料 $0.5 \text{ m}\ell$ を三角フラスコ($50 \text{ m}\ell$)に採取し、全量が $50 \text{ m}\ell$ になるように、硝酸(1+5)を加えて希釈する。(分析セルライン中で行なう。)	(1) 希釈倍率: 1×10^2
(2) (1)で得られた希釈液 $0.5 \text{ m}\ell$ を別の三角フラスコ($50 \text{ m}\ell$)に採取し、全量が $50 \text{ m}\ell$ になるように、硝酸(1+5)を加えて希釈する。(分析セルライン中で行なう。)	(2) 希釈倍率: 1×10^4
〔試料皿への試料焼付〕 (1) 加熱装置(A)の上であらかじめ試料皿を予熱しておく。	

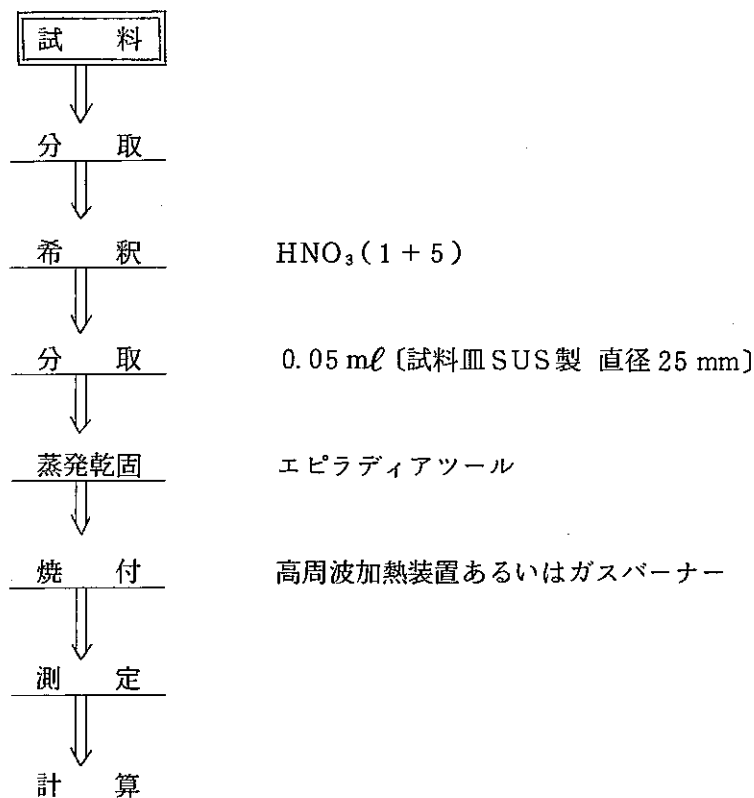
動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

35・222・54・Cm・01 (1980)

操 作 手 順	備 考
<p>(2) 試料0.05mℓをエッペンドルフピペットで採取し、試料皿の中央に滴加する。(ヒュームフード中で行なう。)</p> <p>(3) 加熱装置(B)で試料皿を赤熱状態で15秒間加熱する。(ヒュームフード中で行なう。)</p> <p>〔試料の計測〕</p> <p>(1) αスペクトル測定装置を用いて6000秒以上計測する。</p> <p>(2) プリンターに各チャンネルのカウント数とその積算値を打ち出す。</p> <p>(3) X-Yレコーダーにスペクトルを打ち出す。</p> <p>(4) 検出器に新しい試料皿を入れ、バックグラウンドを6000秒以上計測し、プリンターを用いて記録しておく。</p> <p>〔計 算〕</p> <p>(1) ^{242}Cmのピーク(6.12 MeVと6.07 MeVの複合ピーク)のカウント数(A_2 counts)を計算する。</p> <p>(2) 1分間当りの^{242}Cmのピーク範囲のバックグラウンドのカウント数(B_2 CPM)を計算する。</p> <p>(3) 同様に^{244}Cmのピーク(5.81 MeVと5.77 MeVの複合ピーク)のカウント数(A_4 counts)とバックグラウンド(B_4 cpm)を計算する。</p> <p>(4) 次式にしたがって^{242}Cmと^{244}Cmの放射能濃度を算出する。</p> $^{242}\text{Cm}(\mu\text{Ci}/\text{m}\ell) = \frac{(A_2/t - B_2)}{2.22 \times 10^6} \times \frac{100}{\epsilon_\alpha}$ $^{244}\text{Cm}(\mu\text{Ci}/\text{m}\ell) = \frac{(A_4/t - B_4)}{2.22 \times 10^6} \times \frac{100}{\epsilon_\alpha}$ <p>ϵ_α : 計数効率(%)</p> <p>t : 測定時間 (min)</p>	<p>(3) 試料によるα線の自己吸収を防ぐため。</p> <p>(1) α線スペクトロメータの分析操作法を参照。</p> <p>(1) α線スペクトルの解析法(3.2)を参照。</p>

5. 解 説

- (1) 溶解液には通常 ^{242}Cm が0.1~20 $\mu\text{Ci}/\text{m}\ell$ 、 ^{244}Cm が1~100 $\mu\text{Ci}/\text{m}\ell$ 含まれている。
- (2) 本法の分析操作フローシートを図4.2.3-1に示す。



$${}^{242}\text{Cm} (\mu\text{Ci}/\text{ml}) = \frac{(A_2/t - B_2)}{11.1 \varepsilon_\alpha}$$

$${}^{244}\text{Cm} (\mu\text{Ci}/\text{ml}) = \frac{(A_4/t - B_4)}{11.1 \varepsilon_\alpha}$$

A_2 : ${}^{242}\text{Cm}$ ピークのカウント数

A_4 : ${}^{244}\text{Cm}$ ピークのカウント数

B_2 : ${}^{242}\text{Cm}$ ピーク範囲のバックグラウンド (cpm)

B_4 : ${}^{244}\text{Cm}$ ピーク範囲のバックグラウンド (cpm)

ε_α : 計数効率

t : 測定時間 (min)

図 4.2.3. 分析操作手順フローシート

キュリウムの分析法
(α 線スペクトロメトリー)

4.2.4 三酸化ウラン中の非ウラン α 放射能の分析

(溶媒抽出- α 線スペクトロメトリー)

1. 要 旨

試料を硝酸溶液とし、TTA-キシレン抽出（プルトニウム、ネプツニウム）およびTBP-ドデカン抽出除去（アメリカシウム、キュリウム）により核種を分離し、 α 線スペクトル分析を行なって定量する方法である。

2. 適用範囲

本法は、再処理工程で製造される三酸化ウラン中の非ウラン α 放射能（プルトニウム、ネプツニウム、アメリカシウムおよびキュリウム）の定量分析に適用する。検出限界はプルトニウム、アメリカシウムおよびキュリウムについては2000 dpm/g \cdot U、ネプツニウムについては4000 dpm/g \cdot uである。

3. 試薬・器具および装置

(1) 試 薬

- 1) 硝酸第二鉄溶液 (3.5%)
- 2) 塩酸ヒドロキシルアミン溶液 (35%)
- 3) 塩酸ヒドロキシルアミン溶液 (2 N)
- 4) 亜硝酸ナトリウム溶液 (10%)
- 5) TTA-キシレン溶液 (TTA 11.1%)
- 6) スルファミン酸第一鉄 (スルファミン酸 35g, 金属鉄 6.7 g, 水 400 ml)
- 7) TBP-n \cdot ドデカン溶液 (TBP 30%)
- 8) 硝酸 (1+9)
- 9) 硝酸 (4.7 N)

(2) 器 具

- 1) ビーカー (容量 50 ml)
- 2) ホールピペット
- 3) マグネチックスターラー
- 4) エッペンドルフピペット

- 5) 時計皿
 - 6) シェーカー
 - 7) 分液ロート (容量 25 ml)
 - 8) 放射能試料皿 (SUS製 直径 1 インチ)
 - 9) 加熱装置 (エピラディアツール)
 - 10) ガスバーナー
- (3) 放射能測定装置
- 1) Si 検出器 表面障壁型 ORTEC製
 - 2) 多重波高分析器 日立製 505型
 - 3) X-Yプロッター 日立製 057型
 - 4) デジタルプリンター 青葉製 DP-7
 - 5) 真空ポンプ 日電バリアン製 直結型 ロータリーポンプ
- (4) 標準線源: AMR-43 ($^{239}\text{Pu} + ^{241}\text{Am} + ^{244}\text{Cm}$)

ウランは α 線を放出し作業環境への汚染を生ずる。したがって操作はヒュームフード内で行なう。

5. 操作手順

5.1 プルトニウムの分析

操 作 手 順	備 考
(1) ウラン濃度 200 g/l, 硝酸濃度 1~2 N に調製した三酸化ウランの硝酸溶液 5 ml をビーカー (容量 50 ml) にホールピペットで正確に採取する。	(1) n = 2 で行なう。
(2) 硝酸第二鉄溶液 (3.5%) を 2 滴添加する。	
(3) 塩酸ヒドロキシルアミン (35%) を 2 滴添加する。	(3) プルトニウムは III 価に還元される。
(4) マグネチックスターラーで 5 分間攪拌する。	(4) ビーカーに時計皿をかぶせる。
(5) 亜硝酸ナトリウム溶液 (10%) を 10 滴加える。	(5) プルトニウムを IV 価に調整する。
(6) マグネチックスターラーで 10 分間攪拌する。	
(7) TTA-キシレン溶液 (TTA 11.1%) をホールピペットで 5 ml 添加する。	

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

35・271・54・Pu, Am, Cm, Np・01 (1980)

操 作 手 順	備 考
(8) マグネチックスターラーで15分間攪拌する。	(8) プルトニウムを有機相に抽出する。
(9) 5分間放置する。	(9) 水相と有機相の分離を良くする。
(10) 有機相(TTA-キシレン相)から、エペンドルフピペットで0.1 mlを試料皿に分取する。	(10) 水相はサンプリングしない。
(11) 試料皿をエピラディアツールで蒸発乾固する。	(11) 突沸しないように温度を調節する。
(12) 試料皿をガスバーナーで焼付ける。	(12) 赤熱するまで焼付ける。
(13) 放冷後、試料皿を検出器にセットし、真空ポンプで検出器内を真空にする。	
(14) 多重波高分析装置で6000秒間測定する。	
(15) 測定終了後、X-Yプロッターおよびデジタルプリンターに記録する。	
(16) ピークチャンネルよりエネルギー校正してプルトニウムの核種を求め、デジタルプリンターのデータより放射能濃度を計算して求める。	(16) プルトニウムの抽出率は80%である。

プルトニウムの放出エネルギー

核 種	放 出 エ ネ ル ギ ー	
^{238}Pu	5.50 MeV (71%)	5.45 MeV (29%)
^{239}Pu	5.16 MeV (88%)	5.11 MeV (11%)
^{240}Pu	5.17 MeV (76%)	5.12 MeV (24%)

()内は放出率

5.2 ネプツニウムの分析

操 作 手 順	備 考
(1) ウラン濃度 200 g/l, 硝酸濃度 1~2N に調製した三酸化ウランの硝酸溶液をホールピペットでビーカー(容量 50 ml)に正確に 5 ml 採取する。	(1) n = 2 で行なう。

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

35・271・54・Pu, Am, Cm, Np・01 (1980)

操 作 手 順	備 考
(2) 塩酸ヒドロキシルアミン溶液 (2N) を4滴加える。	(2) プルトニウムをⅢ価に還元する。
(3) スルファミン酸第一鉄溶液を1mℓ加える。	(3) ネプツニウムをⅣ価に還元する。
(4) マグネチックスターラーで5分間攪拌する。	(4) ビーカーに時計皿をかぶせる。
(5) TTA-キシレン溶液(TTA 11.1%)を正確に2.5 mℓ加える。	(5) ネプツニウムをTTA-キシレン相に抽出する。
(6) マグネチックスターラーで15分間攪拌する。	
(7) 5分間放置する。	(7) 水相と有機相との分離を良くする。
(8) 有機相(TTA-キシレン相)を試料瓶に採取する。	(8) 水相は採取しないこと。
(9) (5)~(8)をもう一度繰返す。	
(10) 有機相からエッペンドルフピペットで試料皿に0.1 mℓ採取する。	
(11) エピラディアツールで試料皿を乾固する。	(11) 突沸しないように温度を調節する。
(12) 試料皿をガスバーナーで赤熱するまで焼付ける。	
(13) 放冷後、試料皿を検出器にセットし、真空ポンプで検出器内を真空にする。	
(14) 多重波高分析装置で6000秒間測定する。	
(15) 測定終了後、X-Yプロッターおよびデジタルプリンターに記録する。	
(16) ピークチャンネルよりエネルギー校正してネプツニウムのピークを捜し、デジタルプリンターのデータより放射能濃度を計算して求める。	(16) 抽出率は75%である。

ネプツニウム関連の放出エネルギー

核 種	放 出 エ ネ ル ギ ー	
^{237}Np	4.78 MeV (75%)	4.65 MeV (12%)
^{234}U	4.77 MeV (72%)	4.72 MeV (28%)
^{238}U	4.20 MeV (75%)	4.15 MeV (25%)

() 内は放出率

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

35・271・54・Pu, Am, Cm, Np・01 (1980)

^{237}Np は4.78MeVにスペクトルが現われる。このスペクトルには ^{234}U (4.76MeV)のピークが重なる。これを補正するために、次のような操作を行なう。 ^{238}U ($T = 4.51 \times 10^9$ 年)と ^{234}U ($T = 2.47 \times 10^6$ 年)が放射平衡すると仮定して、 ^{238}U (4.18MeV)のピークの有無を調べ、ピークがあれば、4.78MeVでのカウント数を差引いてネプツニウムの放射能濃度を求める。

5.3 アメリシウムとキュリウムの分析

操 作 手 順	備 考
(1) ウラン濃度 200 g/l, 硝酸濃度 4.7 N に調製した三酸化ウランの硝酸溶液を分液ロート(容量 25 ml)にホールピペットで正確に 5 ml 採取する。	(1) $n = 2$ で分析を行なう。
(2) TBP-n・ドデカン(TBP 30%)を 10 ml 添加する。	
(3) シェーカーで 5 分間搅拌する。	(3) ウラン溶液がもれないようにシェーカーに取付ける。
(4) 5 分間放置する。	(4) 水相と有機相の分離を良くする。
(5) 水相を別の分液ロートに移す。	(5) 有機相は廃液貯蔵瓶に捨てる。
(6) TBP-n・ドデカン(TBP 30%)を 10 ml 添加する。	
(7) シェーカーで 5 分間搅拌する。	
(8) 5 分間放置する。	
(9) 水相をポリ瓶容量 20 ml に採取し、そこからエッペンドルフピペットで試料皿に 0.1 ml 採取する。	
(10) 試料皿をエピラディアツールで蒸発乾固させる。	(10) 突沸しないように温度を調節する。
(11) 試料皿をガスバーナーで赤熱するまで焼付ける。	
(12) 放冷後、試料皿を検出器にセットし、真空ポンプで検出器内を真空にする。	
(13) 多重波高分析装置で 6000 秒間測定する。	
(14) 測定終了後、X-Yプロッターおよびデジタルプリンターに記録する。	
(15) ピークチャンネルよりエネルギー校正してアメリシウムのピークを捜し、デジタルプリンターのデータより放射能濃度を計算して求める。	(15) 残存率はアメリシウムが60%、キュリウムが75%である。

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

35-271-54・Pu, Am, Cm, Np・01 (1980)

アメリカシウム（Am）の放出エネルギー

核種	放出エネルギー	
^{241}Am	5.49 MeV (86%)	5.44 MeV (13%)

()内は放出率

キュリウム（Cm）の放出エネルギー

核種	放出エネルギー	
^{242}Cm	6.11 MeV (74%)	6.07 MeV (26%)
^{244}Cm	5.81 MeV (77%)	5.76 MeV (23%)

()内は放出率

6. 非ウラン α 放射能（プルトニウム、ネプツニウム、アメリカシウムおよびキュリウム）濃度
(dpm/g・U)を求める。

プルトニウム、ネプツニウム (dpm/g・U)

$$= \frac{N_T - N_B}{W} \times \frac{T}{T_i} \times \frac{1}{t} \times \frac{1}{\epsilon_\alpha} \times \frac{1}{a_i} \times \frac{1}{E} \times \frac{1}{F} \times C$$

W : 試料採取量(g)

 ϵ_α : 計数効率(%) a_i : α 線の放出率(%) N_T : 計数值 (cpm) N_B : 自然計数值 (cpm)

T : TTA-キシレン採取量 (mℓ)

 T_i : 有機相分取量 (mℓ)

t : 測定時間 (min)

E : 抽出率(%)

F : 三酸化ウラン中のウラン含量(%)

C : 希釈倍数

ただし、試料中に ^{234}U が含まれている場合は ^{234}U と放射平衡にある ^{238}U のピークを ^{237}Np のピークから差引いて計算する。

アメリカシウム, キュリウム (dpm/g・U)

$$= \frac{N_T - N_B}{W} \times \frac{1}{\epsilon_\alpha} \times \frac{1}{t} \times \frac{1}{a_i} \times \frac{1}{E} \times \frac{1}{F} \times C$$

W : 試料採取量(g)

ϵ_α : 計数効率(%)

a_i : α 線の放出率(%)

N_T : 計数值 (cpm)

N_B : 自然計数值 (cpm)

t : 測定時間 (min)

E : 抽出率(%)

F : 三酸化ウラン中のウラン含量(%)

C : 希釈倍数

7. 解 説

1) 本法は、 $\circ\text{N}-841-72-24$ 再処理確性試験のための分析法。

$\circ\text{N}-851-71-06$, 超ウラン元素 (^{237}Np , ^{238}Pu , ^{241}Am , ^{242}Cm , ^{244}Cm および ^{252}Cf)の回収法と利用法にもとづき作成した。

2) 本法の分析操作手順フローシートを図4.2.4-1, 図4.2.4-2, 図4.2.4-3に示す。

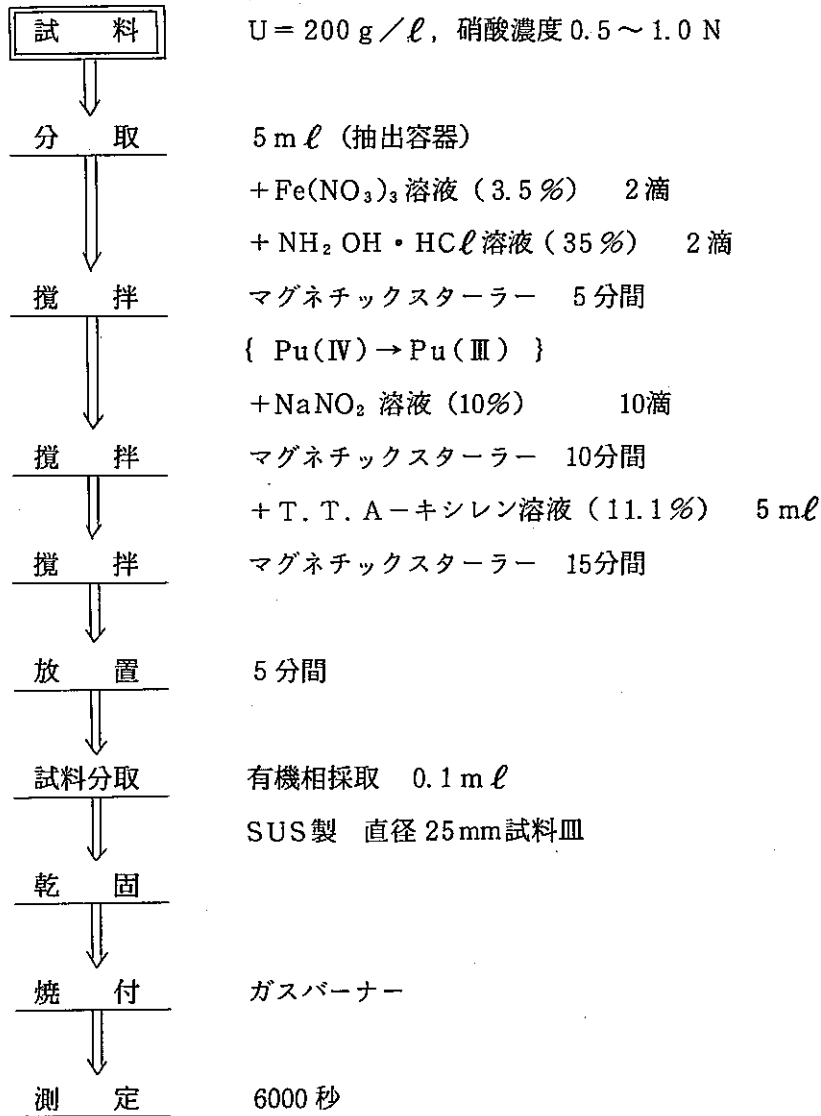


図 4.2.4-1 分析操作手順フローシート

三酸化ウラン中の非ウランα放射能の分析

{ (Pu), T. T. A. キシレン抽出-α線スペクトロメトリー }

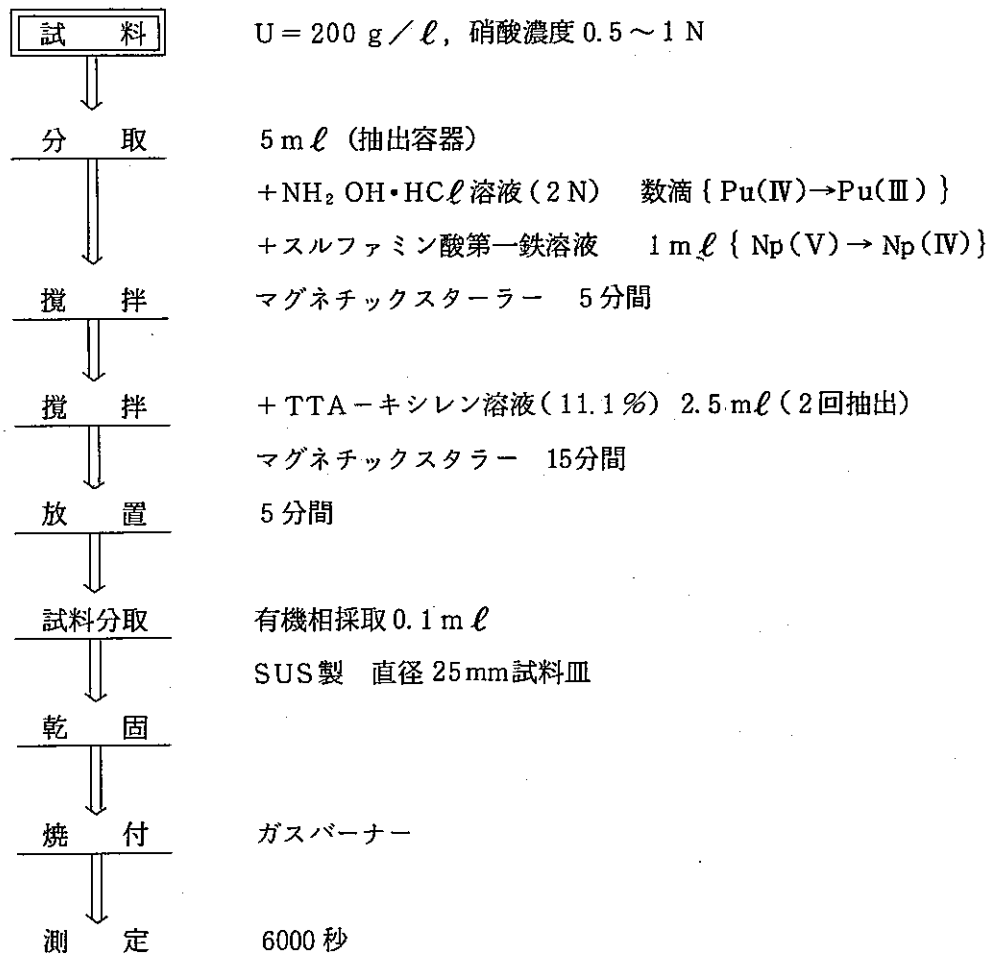


図 4.2.4.-2 分析操作手順フローシート

三酸化ウラン中の非ウラン α 放射能の分析{ (Np), T. T. A-キシレン抽出, α 線スペクトロメトリー }

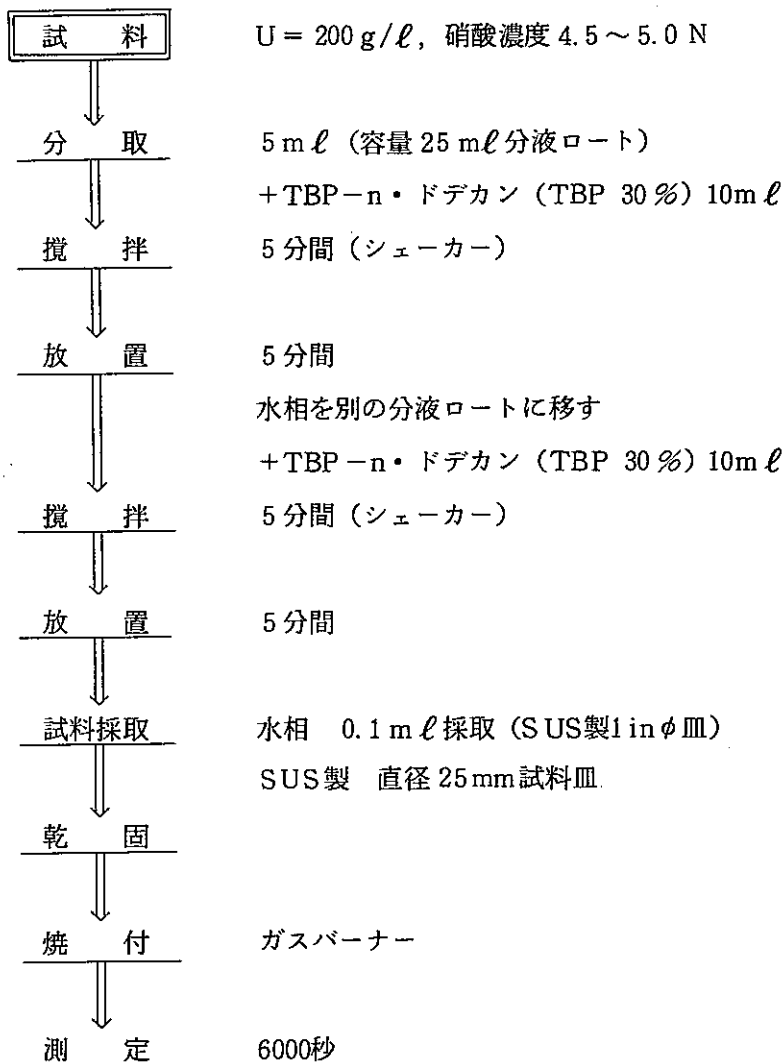


図 4.2.4.-3 分析操作手順フローシート

三酸化ウラン中の非ウランα放射能の分析
{ (Am, Cm) 溶媒抽出除去, α線スペクトロメトリー }

4.2.5 工程中のネプツニウムの分析法

(スルファミン酸第一鉄還元-TTA-キシレン抽出- α 線スペクトロメトリー)

1. 要 旨

試料を硝酸またはイオン交換水により酸調整したのち、塩酸ヒドロキシルアミン溶液を加え、プルトニウムをⅢ価、ウランをⅣ価にし、スルファミン酸第一鉄溶液を加え、ネプツニウムをⅣ価に還元した後、TTA-キシレン溶液でネプツニウムを抽出し、有機相を試料皿に焼付け α 線スペクトル分析を行ない、ネプツニウムを定量する。

2. 適用範囲

本法は再処理工程中のネプツニウムの分析に適用する。

3. 試薬および装置

(1) 硝酸

(2) 硝酸 (1+13)

(3) 塩酸ヒドロキシルアミン溶液 (2N) : $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$

(4) スルファミン酸第一鉄溶液 : $\text{Fe}(\text{SO}_3\text{NH}_2)_2$

(スルファミン酸 35 g, 金属鉄 6.7 g, 水 400 ml)

(5) TTA-キシレン溶液 (11.1%) : $\text{C}_8\text{H}_5\text{O}_2\text{SF}_3$ 硝酸 (1+13) と 1 : 1 の割合で15分間洗浄したものを5日毎に再調整して用いること。

(6) 加熱装置 A ……エピラディアツール

B ……ガスバーナー

(7) 試料皿 : SUS製 直径 25 mm 試料皿

(8) 波高分析装置 : 日立製 505 型

(9) 検出器 : Si半導体検出器

(10) 攪拌器 : マグネチックスターラー

4. 操 作

操 作 手 順	備 考
(1) 抽出容器に試料を正しくはかりとる。水相試料は硝酸または水を加えて硝酸濃度を1.0～1.5 Nに調整する。有機相試料はスルファミン酸第一鉄でネプツニウムを逆抽出し、硝酸(1+13) 1 mℓを加えて硝酸濃度を1.0～1.5 Nに調整する。	(1) 抽出容器はガラス製で直径27mm 長さ5.5 cmのもの。
(2) 塩酸ヒドロキシルアミン溶液(2 N) 1 mℓ, スルファミン酸第一鉄溶液 1 mℓを加えマグネチックスターラーで5分間攪拌する。	(2) プルトニウムがIII価に還元され、ネプツニウムがIV価に還元される。
(3) TTA-キシレン溶液(11.1%)を正確に1 mℓ加える。	
(4) マグネチックスターラーで10分間攪拌する。	
(5) 5分間放置して有機相と水相をよく分離する。	
(6) 有機相を採取する。	
(7) 加熱装置上にてあらかじめ予熱してある試料皿の中央に1滴ずつ滴下し乾固する。	(7) 飛散しないように注意する。
(8) 試料皿をガスバーナーを用いて赤熱状態で加熱する。	
(9) アルファ線波高分析装置で計数を測定する。	
(10) 次式に従って試料1 mℓ当りの放射能濃度(μCi/mℓ)を求める。	(10) 計数効率は、あらかじめ求めておく。

$$\text{ネプツニウム } (\mu\text{Ci}/\text{m}\ell) = \frac{N_T - N_B}{W} \times \frac{T}{T_i} \times \frac{1}{t} \times \frac{1}{\epsilon} \times \frac{1}{a_i} \times \frac{1}{E} \times \frac{F}{2.22 \times 10^6}$$

W : 試料採取量 (mℓ)
 ε : 計数効率(%)
 a_i : α線の放出率(%) (87%)
 N_T : 計数值 (cpm)
 N_B : 自然計数值 (cpm)
 T : TTA-キシレン採取量 (mℓ)
 T_i : 有機相分取量 (mℓ)
 t : 測定時間 (min)
 E : 抽出率 (%)
 F : 希釈倍数

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

35・222・54・Np-237・01(1980)

操 作 手 順	備 考
ただし、試料中に ^{234}U が含まれている場合は ^{234}U と放射平衡にある ^{238}U のピークを ^{237}Np のピークから差引いて計算する。	

5. 解 説

1) 本法は、N841-72-24再処理確性試験のための分析法。

◦ PNCT841-71-34 再処理工程におけるネプツニウムの回収坪各、根本、星野にもとづき作成した。

2) 本法の分析操作手順フローシートを図4.2.5に示す。

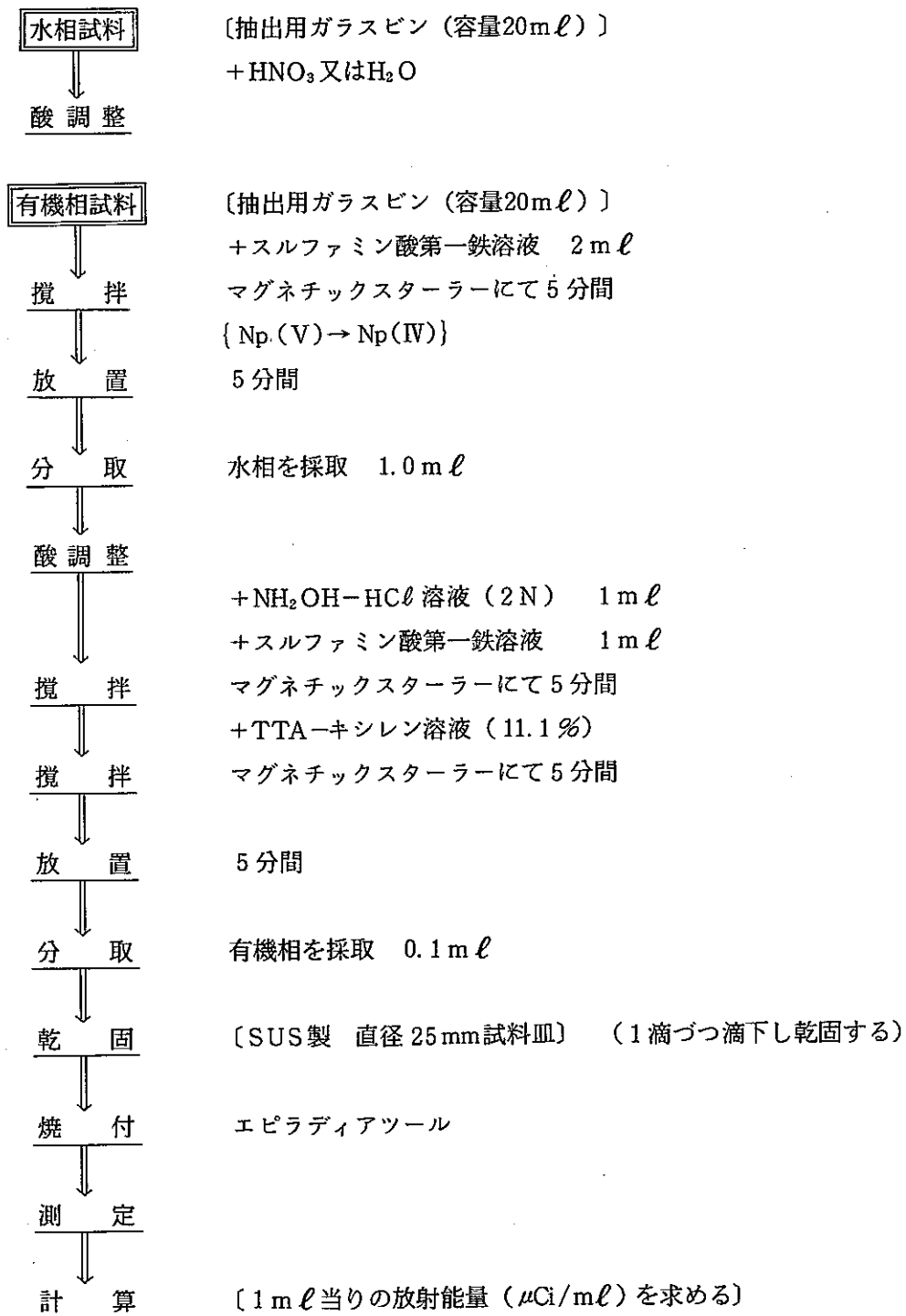


図 4.2.5 分析操作手順フローシート

再処理工程試料中のネプツニウムの分析方法

(スルファミン酸第一鉄還元-TTA-キシレン抽出-α線スペクトロメトリー)

4.3 β 線放出核種の分析法

4.3.1 トリチウムの分析法

(イオン交換分離、液体シンチレーションスペクトロメトリー)

1. 要 旨

試料中に含まれるHTO, T₂Oをイオン交換分離法により分離し、液体シンチレーション・スペクトロメータで測定・定量を行なう。

2. 適用範囲

本法は、再処理工程の水相試料中のトリチウムの分析に適用する。検出限界はイオン交換液について $1 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ である。

3. 試薬および装置

- (1) 硝 酸 (2 N)
- (2) 水酸化ナトリウム (2 N)
- (3) 陽イオン交換樹脂 (Dowex 50W-×4 H型 100~200メッシュ)
- (4) 陰イオン交換樹脂 (ダイヤイオンSA#100 CL型 100~200メッシュ)
- (5) イオン交換カラム (内径5 mm 長さ15 cmガラス製)
- (6) 液体シンチレータ (パッカード製インスターゲル)
- (7) バイアルビン (ガラス製)
- (8) 液体シンチレーションスペクトロメータ (堀場製LS-700型)
- (9) 標準線源 (堀場製³H標準線源)

4. 操 作

操 作 手 順	備 考
(1) 2個のビーカー(100ml)に、それぞれ別々に陽、陰イオン交換樹脂を2mlずつ入れ、水酸化ナトリウム溶液(2N)を加え調製する。	(1) 陽イオン交換樹脂はNa型、陰イオン交換樹脂はOH型にする。
(2) イオン交換カラムに、下層に陰イオン交換樹脂を、上層	(2) 樹脂層高さは、約5cmずつで合計

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

35・222・57・H-3・01 (1980)

操 作 手 順	備 考
<p>が陽イオン交換樹脂になるように、それぞれ約1.5 mlずつ詰める。</p>	<p>約10 cmになる。</p>
<p>(3) イオン交換水約20 mlで樹脂層を洗浄する。</p>	
<p>(4) 0.05 Nの硝酸で硝酸系に調製した試料をエッペンドルフピペットで3 ml採取し、樹脂層に滴下する。流出液はビーカーに受け、次にイオン交換水20 mlで洗浄し、その流出液も同じビーカーに受ける。</p>	<p>(4) 流下速度は約0.5 ml/minとなる。</p>
<p>(5) ビーカーに受けた流出液を25 mlメスフラスコで定容する。</p>	
<p>(6) 25 mlに定容した試料1 mlを採取し、バイアルビンに入れる。</p>	
<p>(7) (6)のバイアルビンに液体シンチレータ14 mlを加え、よく振とうする。</p>	
<p>(8) シンチレータのみを14 ml入れたバイアルビンをブランク試料とし、バックグラウンド測定用試料とする。</p>	
<p>(9) 試料とバックグラウンド試料のバイアルビンを液体シンチレーションスペクトロメータにセットして測定を開始する。</p>	<p>(9) 液体シンチレーションスペクトロメータの分析操作法参照。</p>
<p>(10) 一組のクエンチング標準線源を同一条件で測定し、図4.3.1-1のグラフの様に縦軸に計数効率、横軸に¹³⁷Cs外部線源計数(EXT, Ch)をプロットし、クエンチング校正曲線を作成する。</p>	<p>(10) クエンチング標準線源の計数効率(ϵ)は、 $\epsilon = \frac{[\text{標準線源の測定値}]}{[\text{標準線源の崩壊数}]}$から求める。</p>
<p>(11) 測定試料の外部線源計数(ECH, Ch)に相当する計数効率を、グラフから読みとる。</p>	
<p>(12) 放射能濃度を次のようにしてもとめる。</p>	<p>(12) 図4.3.1-1および図4.3.1-2を参照。</p>
<p>1) 放射能量(μCi)を次式によって求める。</p>	
$\mu\text{Ci} = \left(\frac{A_S}{t_S \times \epsilon_S} - \frac{A_B}{t_B \times \epsilon_B} \right) \times \frac{100}{2.22 \times 10^6}$	
<p>A_S : 試料の計数値</p>	
<p>A_B : ブランク試料の計数値</p>	
<p>t_S : 試料の測定時間(min)</p>	
<p>t_B : ブランク試料の測定時間(min)</p>	

操 作 手 順	備 考
<p> ϵ_s : 試料の計数効率 (%) ϵ_B : ブランク試料の計数効率 (%) 2) 放射能濃度 ($\mu\text{Ci}/\text{m}\ell$) を計算する。 $\mu\text{Ci}/\text{m}\ell = \frac{[\text{放射能量}(\mu\text{Ci}/\text{m}\ell)] \times [\text{希釈倍率}]}{[\text{試料採取量}(\text{m}\ell)]}$ 希 釈 倍 率 : シンチレータとの混合前の希釈倍率 試料採取量 : 1 mℓ </p>	

5. 解 説

(1) 本法は、

- 1) 液体シンチレーションスペクトロメータ TYPE LS-700 取扱説明書 堀場製
- 2) 石河著 液体シンチレーション測定法 南山堂 (1977)
- 3) 日本アイソトープ協会編 アイソトープ便覧 新版 丸善 (1970)
- 4) 山崎著 放射線 実験物理学理学講座 26 共立出版 (1973)
- 5) W. Baumann and W. MacMurdo DP-MS-77-36
- 6) アロカ技術資料 液体シンチレーションカウンター
- 7) 科学技術庁 トリチウム分析法 (1977)
- 8) 日本原子力学会 トリチウム その性質と挙動 (1977)

に基づき作成した。

- (2) 本法は、F. P. (核分裂生成物) などトリチウム以外の放射性核種が含まれる水相試料中のトリチウム (HTO , T_2O) を測定、分析するものである。したがって、AAFや酸回収工程等における凝縮液など、F. Pが検出されない試料については、この方法のイオン交換分離の操作を省略し、直接試料採取して測定する。
- (3) 本法の原理は、トリチウムから放出される低エネルギー β 線が、液体シンチレータと相互作用して発光する。この光を光電子増倍管で検出し、これによる出力パルスが同時計数回路等を経て、波高分析器に入り計数測定される。このデータと計数効率等よりトリチウム濃度を決定することができる。
- (4) 測定印字例と放射能計算例を図 4.3.1-2 に示す。
- (5) クエンチング校正曲線を図 4.3.1-1 に示す。
- (6) 分析操作手順フローシートを図 4.3.1-3 に示す。

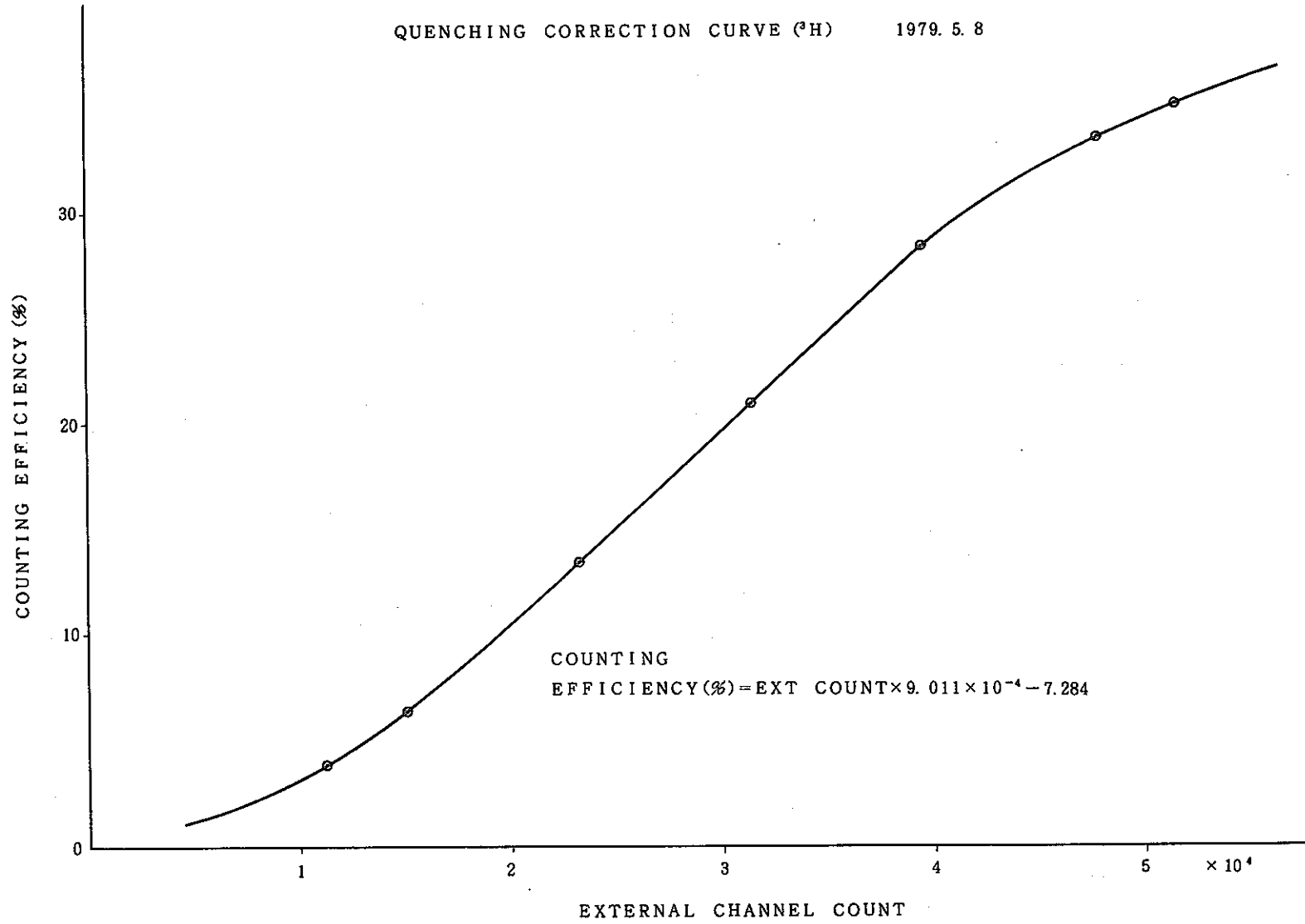


図-4.3.1-1 クエンチング補正曲線

動力炉・核燃料開発事業団東海事業所
標準分析作業法

35・222・57・H-3・01 (1980)

ブランク試料測定

A - ch	0. * *
B - ch	1 3. * *
A - ch	1 8. * *
Time	1 0 0. * *
S . N.	2 5. * *
A - ch	4 0 4 0 3. * *

試料測定 (トリチウム標準溶液)

C - ch	0. * *	→ 任意に設定
B - ch	5 6 1. * *	→ ¹⁴ C測定値 (カウント数)
A - ch	3 4 0 0 7. * *	→ ³ H測定値 (カウント数)
Time	1 0 0. * *	→ 測定時間 …… 1.00 (min)
S . N.	2 6. * *	→ サンプル番号
A - ch	4 1 8 6 5. * *	→ 補正用データ (EXT - ch)

印字の順番

(計算例)

試料 (標準溶液) 1 ml, インスターゲル 14 ml

測定時間 1 min, PRESET ERROR 0.1%

補正用データはクエンチング補正曲線より, 計数効率ブランク試料 (29.2%), 試料 (30.2%) である。

$$\text{放射能量} (\mu\text{Ci}) = \left(\frac{34007}{1 \times 30.2} - \frac{18}{1 \times 29.2} \right) \times \frac{100}{2.22 \times 10^6}$$

図 4.3.1 - 2 測定印字例と放射能計算例

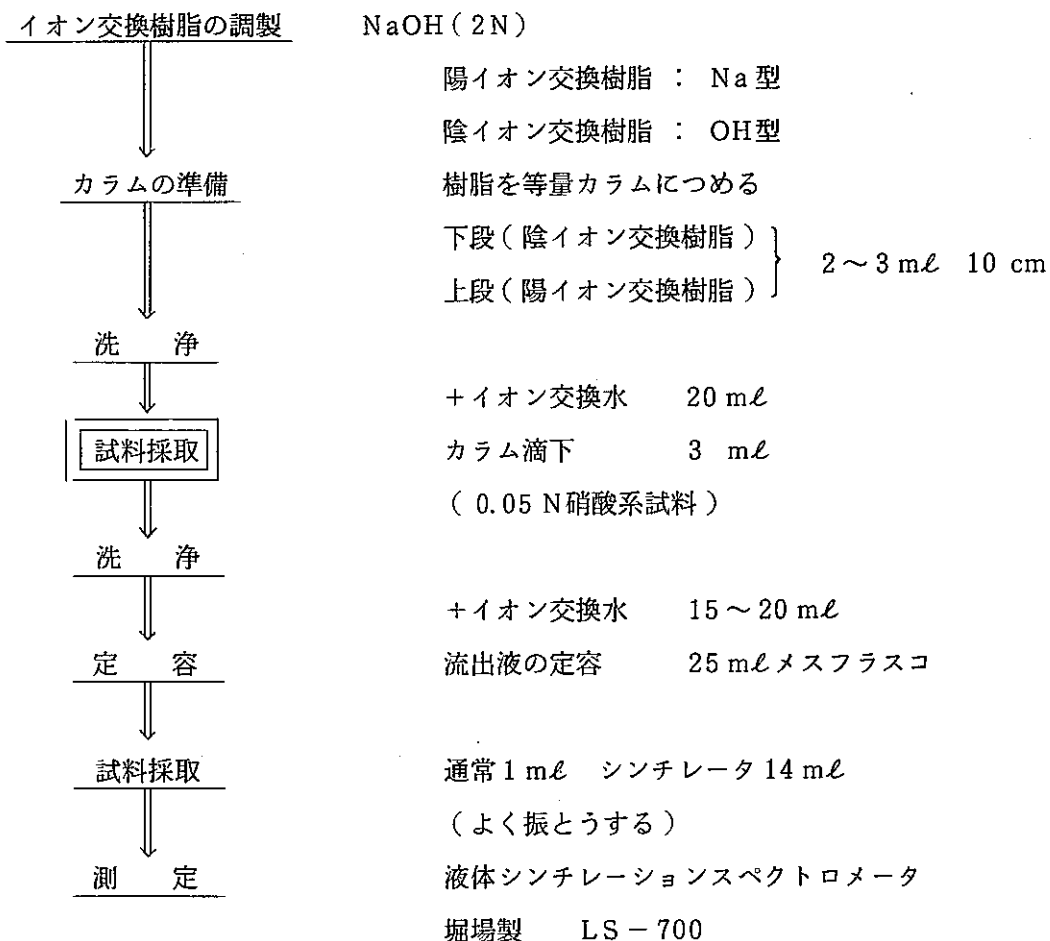


図 4.3.1-3 分析操作手順フローシート

トリチウムの分析

(イオン交換分離 液体シンチレーションスペクトロメトリー)

4.3.2 ストロンチウム-90の分析法

(イオン交換分離-β線計測法)

1. 要 旨

試料中に含まれる放射性核種から、 ^{90}Sr を陽イオン交換樹脂により分離し、SUS製試料皿に採取しGM管で測定、定量を行なう。

2. 適用範囲

本法は、再処理工程中の水相試料に適用する。検出限界は、イオン交換液について $1 \times 10^{-3} (\mu\text{Ci}/\text{ml})$ である。

3. 試薬および装置

- (1) 塩酸 (0.25 N)
- (2) 塩酸 (1 N)
- (3) シュウ酸 (0.5%)
- (4) 塩化アンモニウム溶液 (5%)
- (5) 陽イオン交換樹脂 (Dowex 50 W-X 4, H型, 100~200メッシュ)
- (6) イオン交換カラム (内径 5 mm, 長さ 15 cm, ガラス製)
- (7) 試料皿 (直径 25 mm, 厚さ 0.3 mm, SUS製)
- (8) 測定器 (アロカ製 GM-5004 型 GM管 アロカ製 TDC-501 型ユニバーサルスケーラ)
- (9) 器具 (ホールピペット, メスピペット, エッペンドルフピペット)

4. 操 作

操 作 手 順	備 考
(1) カラムの内壁をイオン交換水で洗浄する。	
(2) 陽イオン交換樹脂約 2.5 ml をイオン交換水と混ぜながら静かに流し込む。	(2) 樹脂層に気泡を生じないように注意する。
(3) 塩酸 (1 N) 20 ml を樹脂層に流下する。	(3) 流下速度は、0.1~0.3 ml/min とする。

操 作 手 順	備 考
	以下の流下操作は、すべて前操作による流下が完了後に開始する。
(4) イオン交換水約 20 ml で樹脂層を洗浄する。	
(5) 試料 1 ml をエッペンドルフを使って樹脂層に滴下する。	(5) イオン交換を容易にするため、あらかじめ試料を塩酸系に調製しておく。
(6) 塩酸 (0.25 N) 22 ml を流下する。	(6) Ru の溶離
(7) イオン交換水約 20 ml で樹脂層を洗浄する。	(試料→蒸発乾固→ $\xrightarrow{0.25\text{N}} \text{HCl}$ 溶解→定容)
(8) シュウ酸 (0.5%) 22 ml を流下する。	(8) Zr (Nb) の溶離
(9) イオン交換水約 20 ml で樹脂層を洗浄する。	
(10) 塩化アンモニウム溶液 (5%) 10 ml を流下する。	(10) Cs の溶離
(11) 塩化アンモニウム溶液 (5%) 30 ml を流下する。溶離液をポリ容器に受ける。	(11) Sr の溶離
(12) (11) の溶離液 0.2 ml をエッペンドルフピペットを使って SUS 皿に採取し、蒸発乾固した後、GM 管で測定する。	(12) 溶離した ^{90}Sr から ^{90}Y が生成するので、溶離後試料乾固測定までを 1 時間内に行なうこと。時間内に測定までできないときは、 $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$ の放射平衡時 (溶離後 14 日を経過した時点) に測定を行なう。
(13) 次式から濃度を計算する。 $^{90}\text{Sr} (\mu\text{Ci}/\text{ml}) = \frac{(A - B) \times 100}{C \cdot D \cdot \epsilon \cdot F \times 2.22 \times 10^6}$ A : 試料の計数率 (cpm) B : バックグラウンドの計数率 (cpm) C : 試料の採取量 (0.2 ml) D : 収 率 E : 試料の希釈倍率 ε : 計数効率 (%)	(13) $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$ の放射平衡時の試料の場合は (A - B) の半分は ^{90}Y によるもので、計算結果の 1/2 が ^{90}Sr の濃度となる。 D : 時々標準試料で収率の確認を行なうこと。

5. 解 説

(1) 本法は、

- 1) 日本アイソトープ協会編 ラジオアイソトープ講義と実習 改訂 3 版 丸善 (1975)

-
- 2) 山田武郎 無機分離化学 技報堂
 - 3) 木村健二郎, 南英一, 本田雅健他 分析化学3 335 (1954)
 - 4) 夏目晴夫, 佐々木行美, 本田雅健他 分析化学4 240 (1954)
 - 5) H・Tsubota, Y・Kitano Bull, Chem, Soc, Japan 33 765 (1960)
 - 6) W. J. Blaedel, E. D. Olsen, R. F. Buchanan Anal, Chem, 32
1866 (1960)
 - 7) 日本アイソトープ協会編 アイソトープ便覧 新版 丸善 (1970)
を参考にし, トレーサー試験および実試料測定により, 分析法として確立した。
- (2) 本法の原理として, ^{90}Sr は β 線最大エネルギー 0.546 Mev をもつ純 β 核種であり, F.P (核分裂生成物) 中の ^{90}Sr の分析を行なうにあたって, イオン交換の特性を利用し, 陽イオン交換樹脂を用いたイオン交換分離法により, 他核種と ^{90}Sr を分離後, GM管で測定し定量を行なう。
- (3) 分析操作手順フローシートを図 4.3.2 に示す。
-

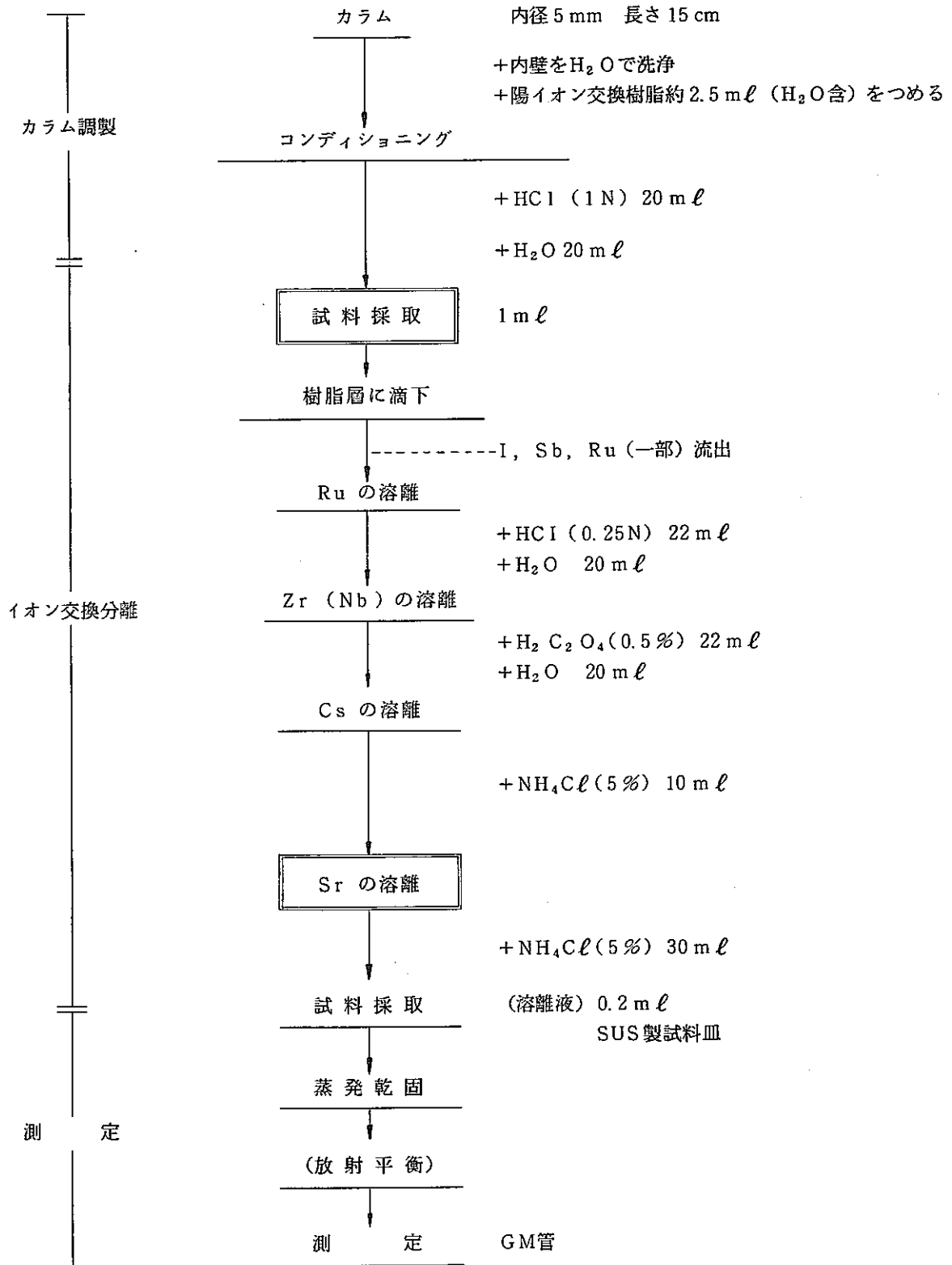


図 4.3.2 分析操作手順フローシート

ストロンチウム-90の分析
(イオン交換分離, β線計測法)

4.4 その他の分析法

4.4.1 還境レベル試料中の全 α 及び全 β の分析方法(α 線, β 線同時計数法)

1. 要 旨

試料を試料皿に焼付けた後、自動 α - β 測定装置にて試料中より放出される α 線量、 β 線量を同時に測定し、全 α 線量及び全 β 線量を定量する。

2. 適用範囲

本法は、再処理工程より放出される廃液及び機器冷却水、建家冷却水等の還境レベル試料中の全 α 線、全 β 線の測定に適用する。

検出限界	全 α	1×10^{-8} ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)
	全 β	1×10^{-6} ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)

3. 装 置

- 1) 測定器 : CANBERRA製 2201型 α - β システム
- 2) 検出器 : ガスフロー型比例計数管 2 1/4 インチ (薄窓型)
- 3) 加熱装置 : ホットプレート, ガスバーナー
- 4) 試料皿 : SUS製 直径2インチ
- 5) ピペット : ホールピペット

4. 操 作

操 作 手 順	備 考
1) ホットプレート上に試料皿を置く。試料をよく振り混ぜた後、正しく採取する。n=2	1) 試料採取量は10 mlとする。
2) 蒸発乾固後、ガスバーナーを用いて赤熱状態で加熱する。	2) 試料が突沸しない様に注意する。
3) 試料皿を放冷後、試料皿アダプターにセットする。	3) 注1
4) スタートボタンを押し測定を開始する。	4) 測定時間 30分
5) あらかじめ求めてある計数効率から次式により全 α 線量、全 β 線量を求める。	5) 効正は ^{241}Am および U_3O_8 , ^{90}Sr 標準試料を使用。

操 作 手 順		備 考
印 字 例		
	3	印字した回数
1	1	アダプターの段数
2	300	測定時間 (30.0 min)
3	4	α カウント数
4	52	β カウント数
$\mu\text{Ci}/\text{m}\ell = \frac{C - B}{t \cdot \epsilon \cdot S \cdot 2.22 \times 10^6}$		
全 α が検出されている時の全 β の計算は次式による。		
$\beta (\mu\text{Ci}/\text{m}\ell) = \frac{C_\beta - B_\beta - K_\alpha (C_\alpha - B_\alpha)}{t \cdot \epsilon_\beta \cdot S \cdot 2.22 \times 10^6}$		
C - 計数值	B - 自然計数值	
C_α - α 計数值	B_α - α 自然計数值	
C_β - β 計数值	B_β - β 自然計数值	
K_α - α クロスソース計数	t - 測定時間	
ϵ - 計数効率	ϵ_β - β 計数効率	
S - 試料採取量		

注1 通常装置を安定させる為、PR ガスを流し高圧電源を入れて連続運転をしている。

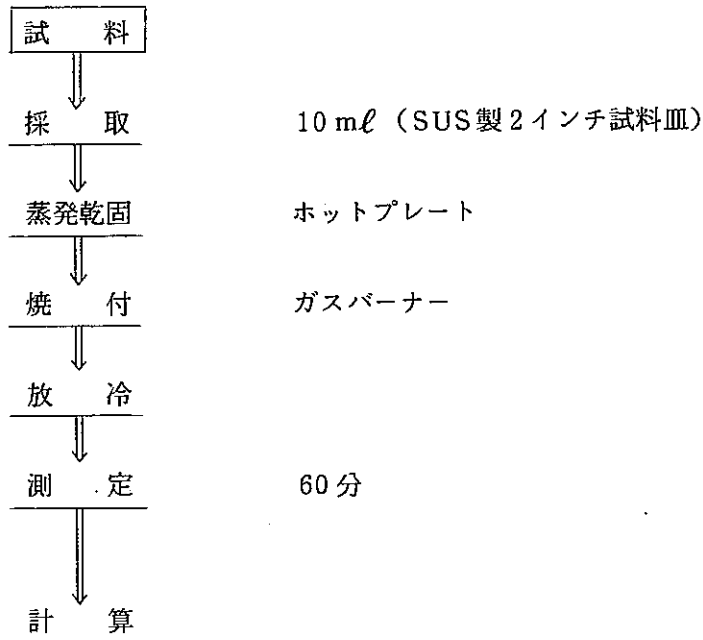
この場合、自然計数值は低く安定しているので自然計数值用皿をアダプターの1、2段目にセットし、3段目から試料をセットする。

装置スタート時及び再スタート時 (PR ガスを止めたりガスポンベを交換し再度ガスを流通した時) は、自然計数值が安定するのに5~6時間を要する。このためアダプターの1~4段目までに自然計数值用皿をセットし、5段目から試料をセットし、装置スタートから5~6時間後に測定を行なうこと。

5. 解 説

- 1) 本法はCANBERRA ユーザーズマニュアルに基づき作成した。

- 2) 本法の分析操作手順フローシートを図 4.4.1 に示す。



$$\text{全}\alpha \text{ or 全}\beta = \left[\left(\frac{N_s}{t_s} - \frac{N_b}{t_b} \right) + \left(\frac{N_s}{t_s^2} + \frac{N_b}{t_b^2} \right)^{1/2} \right] \times \frac{1}{\epsilon} \times \frac{1}{S} \times \frac{1}{2.22} \times 10^{-6}$$

($\mu\text{Ci/ml}$)

N_s : 計数值 (α or β)

N_b : 自然計数值 (α or β)

t_s : 測定時間

t_b : 自然計数の測定時間

ϵ : 計数効率 (α or β)

S : 試料採取量

全 α が検出されている時の全 β の計算

$$\text{全}\beta = \left\{ \left[\left(\frac{N_\beta}{t} - \frac{B_\beta}{t} \right) + \left(\frac{N_\beta}{t^2} + \frac{B_\beta}{t^2} \right)^{1/2} \right] - \left[\left(\frac{N_\alpha}{t} - \frac{B_\alpha}{t} \right) + \left(\frac{N_\alpha}{t^2} + \frac{B_\alpha}{t^2} \right)^{1/2} \right] \times K_\alpha \right\}$$

$$\times \frac{1}{\epsilon_\beta} \times \frac{1}{S} \times \frac{1}{2.22} \times 10^{-6}$$

N_β : β 計数值

N_α : α 計数值

B_β : β 自然計数值

B_α : α 自然計数值

t : 測定時間

K_α : α クロストーク計数

ϵ_{β} : β 計数効率

S : 試料採取量

図 4.4.1 分析操作手順フローシート

還境レベル試料中の全 α 及び全 β の分析方法
(α - β システムによる全 α , 全 β 計測法)

4.4.2 工程試料中の全 γ の分析方法

(r線計測法)

1. 要 旨

試料を測定用試料瓶に採取し、ウエル型r線測定器にて試料中より放出されるr線量を測定し、あらかじめ求めてある計数効率から全r線量を定量する。

2. 適用範囲

本法は、再処理工程の水相および有機相試料中の全r線測定に適用する。

検出限界 1×10^{-5} ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)

3. 試薬および装置

1) 水相希釈液 : 硝酸 (1 + 13)

2) 有機相希釈液 : ブチルセロソルブ溶液 (硝酸 (0.5 N) + ブチルセロソルブ (1 + 2))

3) 測定器 : アロカ製 TDC-501型 ユニバーサルスケラー

検出器 : NaI シンチレーションディテクター (ウエルタイプ)

4) 測定用試料瓶 : ポリエチレン棒状瓶 (容量 5 ml)

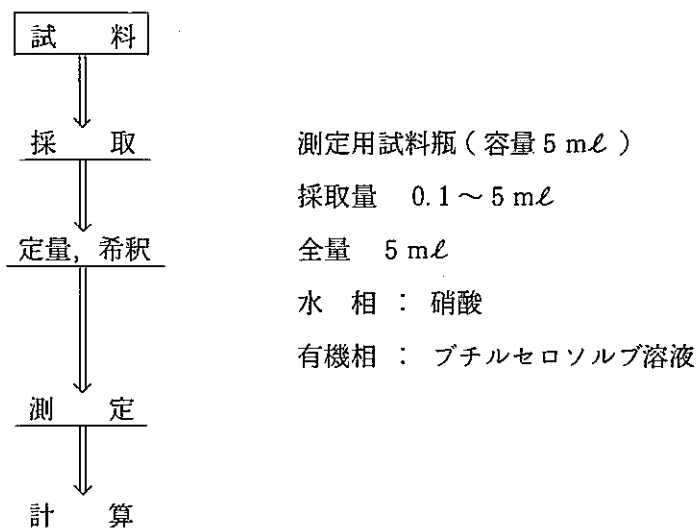
4. 操 作

操 作 手 順	備 考
〔水相試料〕 1) 測定用試料瓶に試料を採取し全量が5 mlになる用に希釈する。	1) 濃度に応じて0.1~5 mlまで採取する。計数値が 5×10^5 cpmを越える時は希釈液で希釈する。
〔有機相試料〕 1)' 試料採取は1)と同様。 2) 測定用試料瓶を検出器内に入れて測定する。 3) あらかじめ求めてある計数効率から次式により、全r線量を求める。	1)' 1)と同様。 3) 効正は ^{137}Cs 標準線源を使用

操 作 手 順	備 考
$\text{全 } r (\mu\text{Ci/ml}) = \left[\left(\frac{N_s}{t_s} - \frac{N_b}{t_b} \right) \pm \left(\frac{N_s}{t_s^2} + \frac{N_b}{t_b^2} \right)^{1/2} \right] \times \frac{1}{\epsilon} \times \frac{1}{S} \times \frac{1}{2.22} \times 10^{-6}$	
N_s : 計数值	t_s : 測定時間
N_b : 自然計数值	t_b : 自然計数の測定時間
ϵ : 計数効率	S : 試料採取量

5. 解 説

- 1) 本法の分析操作手順フローシートを図 4.4.2 に示す。



$$\text{全 } r (\mu\text{Ci/ml}) = \left[\left(\frac{N_s}{t_s} - \frac{N_b}{t_b} \right) \pm \left(\frac{N_s}{t_s^2} + \frac{N_b}{t_b^2} \right)^{1/2} \right] \times \frac{1}{\epsilon} \times \frac{1}{S} \times \frac{1}{2.22} \times 10^{-6}$$

N_s : 計数值

t_s : 測定時間

N_b : 自然計数值

t_b : 自然計数の測定時間

ϵ : 計数効率

S : 試料採取量

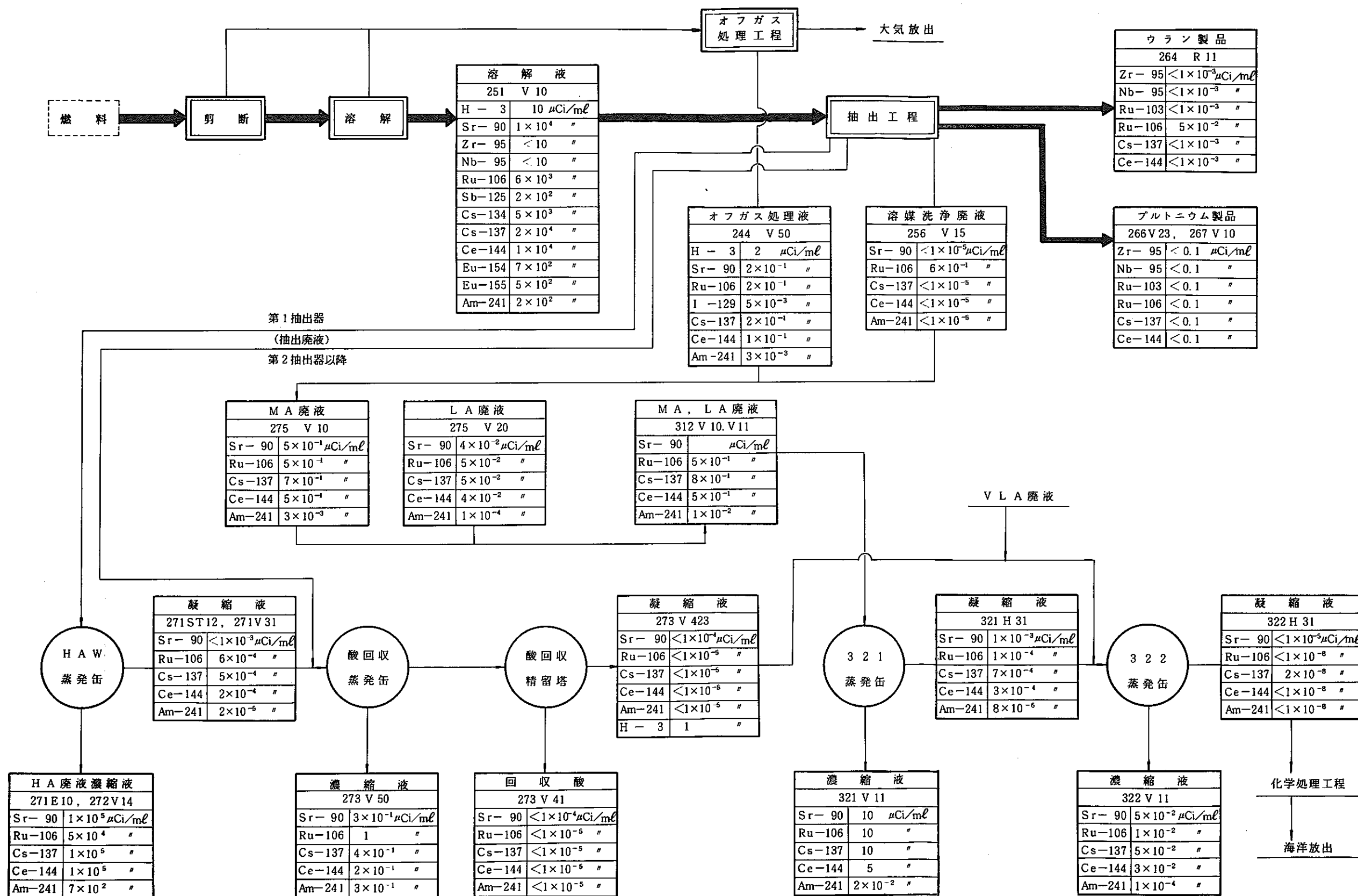
図 4.4.2 分析操作手順フローシート

試料中の全 r の分析方法

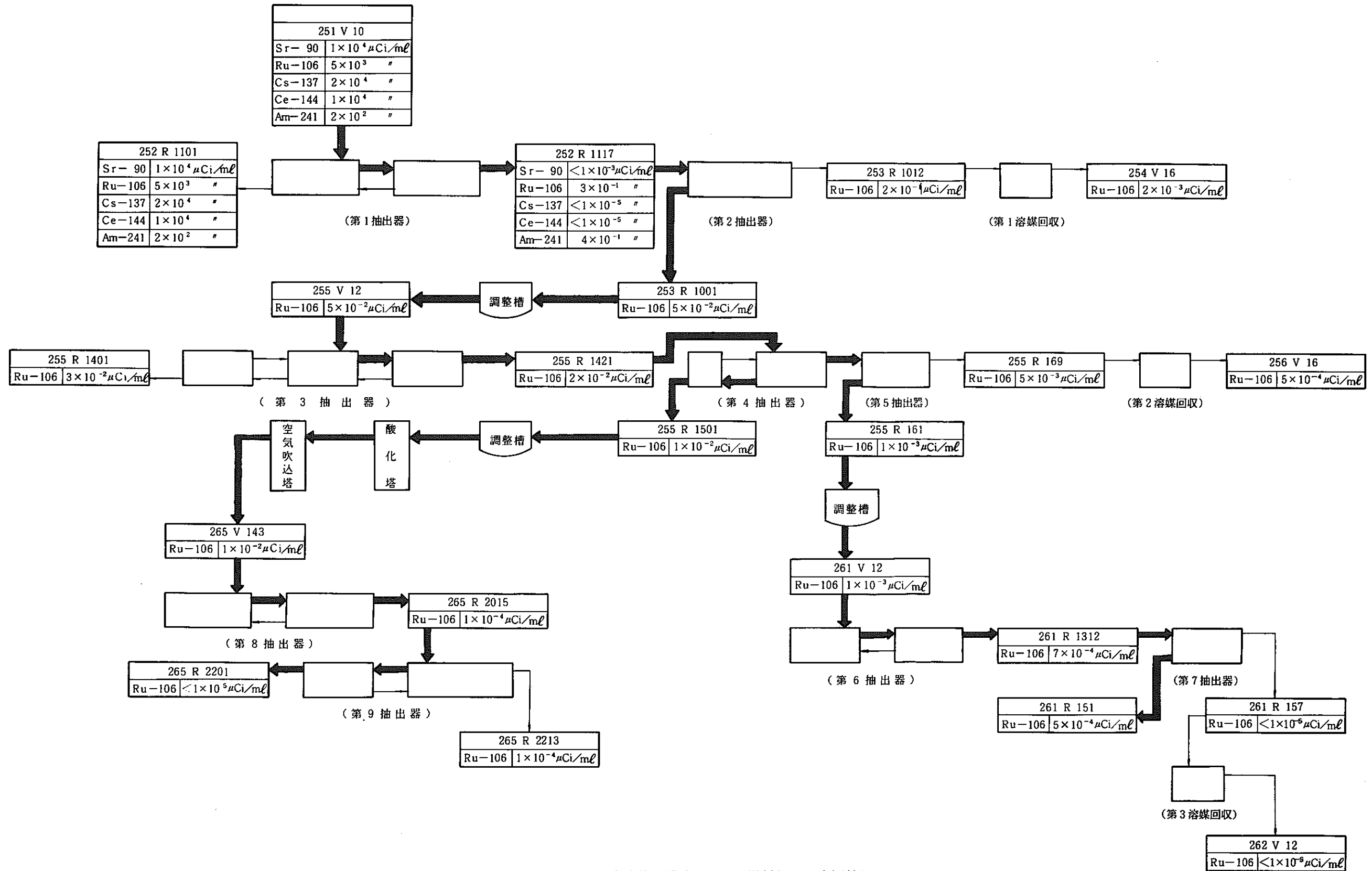
(全 r 計測法)

付 録 一 1

- 図 A - 1 再処理工程における核分裂生成物の濃度
- 図 A - 2 抽出工程における核分裂生成物の濃度
- 表 - 1 再処理分析所における放射性同位元素の
使用許可と数量



付録 図A-1 再処理工程における核分裂生成物の濃度 (PWR燃料処理 実測値)



付録 図A-2 抽出工程における核分裂生成物の濃度 (PWR燃料処理 実測値)

注: Sr-90, Cs-137, Ce-144については, 第1抽出器で検出下限以下に除染され, 以下の工程では検出されなかったため, 第2抽出器以降では省略した。またAm-241は時間の経過とともにPu-241から生成して増加するのでAm-241濃度は試料採取から測定までの経過時間に依存する。そのため, Am-241濃度も第2抽出器以降では省略し, Ru-106濃度のみを記載した。

表-1 再処理分析所における放射性同位元素の使用許可と数量

核 種	群 別	一日最大取扱量 (μCi)	物理的 形状
ストロンチウム - 90	1	10	液 体
ネプツニウム - 237	"	"	"
アメリカシウム - 241	"	"	"
キュリウム - 242	"	"	"
キュリウム - 244	"	"	"
カルフォニウム - 252	"	"	"
ナトリウム - 22	2	"	"
マ ン ガ ン - 54	"	"	"
コ バ ル ト - 58	"	"	"
コ バ ル ト - 60	"	"	"
イットリウム - 88	"	"	"
ストロンチウム - 85	"	"	"
ストロンチウム - 89	"	"	"
ジルコニウム - 95	"	"	"
ニ オ ブ - 95	"	"	"
ル テ ニ ウ ム - 103	"	"	"
ル テ ニ ウ ム - 106	"	"	"
ヨ ウ 素 - 125	"	"	"
セ シ ウ ム - 137	"	"	"
バ リ ウ ム - 133	"	"	"
セ リ ウ ム - 144	"	"	"
プロメシウム - 147	"	"	"
ユウロピウム - 152	"	"	"
クリプトン - 85	"	1	気 体
核分裂生成物	"	10	液 体
アンチモン - 125	"	"	"
ヨ ウ 素 - 129	"	"	"
ユウロピウム - 154	"	"	"
ビスマス - 207	"	"	"
リ ン - 32	3	"	"
イ オ ウ - 35	"	"	"
鉄 - 59	"	"	"
ヨ ウ 素 - 131	"	"	"
キセノン - 133	"	1	気 体
プラセネジウム - 143	"	10	液 体
ネオジウム - 147	"	"	"
プロトアクチニウム - 234	"	"	"
トリチウム - 3	4	"	"
炭 素 - 14	"	"	"

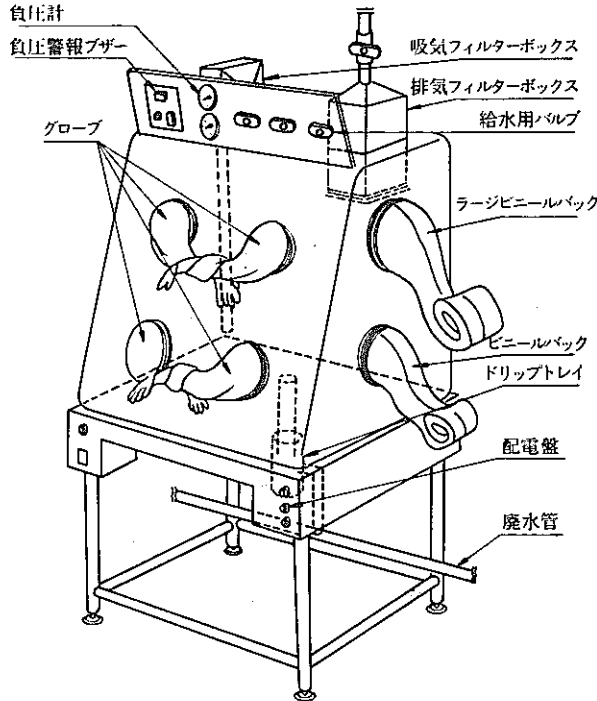
付 録 - 2

教育資料「 α - 計数法によるプルトニウムの測定」

課内教育資料

α-計数法によるプルトニウムの測定

安全



- ・ グローブボックス内負圧維持
20 ~ 35 mmaq
- ・ 除染剤
エチルアルコール (1 + 1)
硝酸 (1 + 13)
合成洗剤
ライボン F
クリーン 99 L
クリーン 99 - 100

最大許容身体負荷量 μCi

239 Pu	238 U	237 Np	241 Am	244 Cm
0.04	5×10^{-3}	0.06	0.04	0.1

原子炉照射後の主なU, Pu, Am, Cmの量 (g/fuelg)

	122MWD T	3775MWD T	6000MWD T	12750MWD T	19600MWD T	23000MWD T
U-235	2.59×10^{-2}	2.18×10^{-2}	1.50×10^{-2}	1.18×10^{-2}	8.30×10^{-3}	1.01×10^{-2}
238	9.73×10^{-1}	9.73×10^{-1}	9.75×10^{-1}	9.68×10^{-1}	9.63×10^{-1}	9.53×10^{-1}
Pu-238	7.43×10^{-12}	2.22×10^{-7}	1.16×10^{-6}	9.60×10^{-6}	2.98×10^{-5}	4.88×10^{-5}
239	7.37×10^{-7}	1.80×10^{-3}	2.79×10^{-3}	4.30×10^{-3}	4.70×10^{-3}	4.73×10^{-3}
240	2.23×10^{-7}	1.59×10^{-4}	4.32×10^{-4}	1.25×10^{-3}	1.75×10^{-3}	1.83×10^{-3}
241	5.55×10^{-10}	1.54×10^{-5}	8.98×10^{-5}	4.30×10^{-4}	8.85×10^{-4}	1.05×10^{-3}
242	1.08×10^{-12}	7.51×10^{-7}	7.29×10^{-6}	7.98×10^{-5}	2.55×10^{-4}	3.15×10^{-4}
Np-237	8.49×10^{-9}	7.55×10^{-6}	1.98×10^{-5}	7.90×10^{-5}	1.54×10^{-4}	2.34×10^{-4}
Am-241	5.33×10^{-10}	7.87×10^{-6}	2.48×10^{-5}	1.26×10^{-4}	1.80×10^{-4}	1.26×10^{-4}
Cm-242	5.22×10^{-25}	4.61×10^{-14}	8.37×10^{-11}	4.45×10^{-10}	2.43×10^{-8}	4.63×10^{-7}
244	3.53×10^{-19}	3.01×10^{-10}	1.22×10^{-8}	6.50×10^{-7}	5.68×10^{-6}	9.08×10^{-6}
冷却日数	5000	2916	1670	1652	1177	458

作成	宮原 顕治
計算	菊地 琢男
資料	池田 久
	石黒 信治
	朝倉 祥郎
	桜井 明
	和地 勇
	松浦 洋治
53. 6. 7	

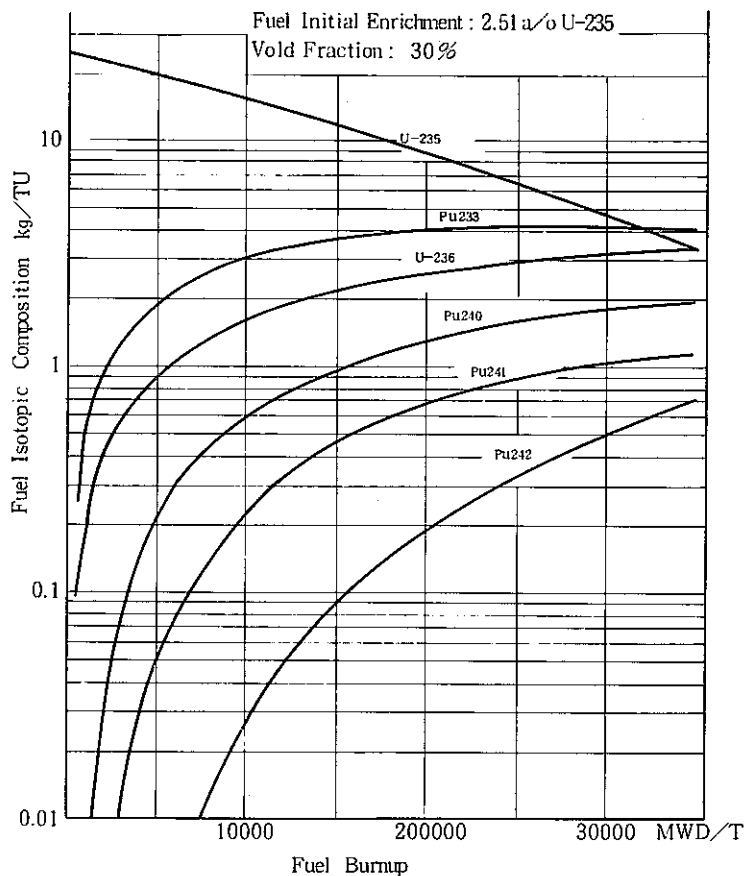
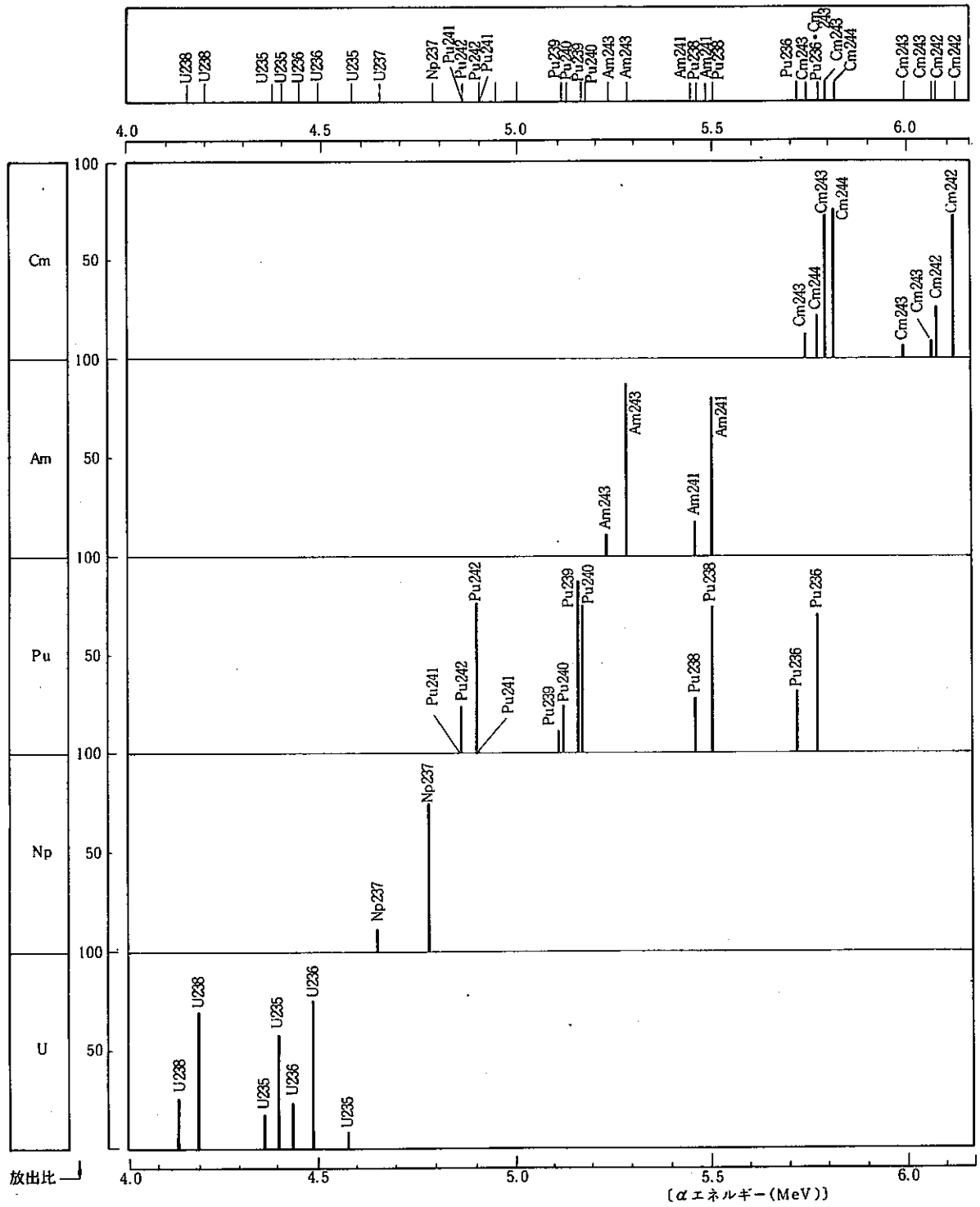


Fig.14 Change of Fuel Isotopic Composition with Fuel Burnup for Ref. Design (30 % Void)

Pu 同位体の分析例と比較放射能

	Pu 同位体分析値 (%)					比放射能 (dpm/Pu 1μg)
	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu	
120	< 0.01	99.75	0.25	< 0.01	< 0.01	1.40 ₇ × 10 ⁵
3800	< 0.01	90.78	8.44	0.72	0.06	1.69 ₇ × 10 ⁵
6800	0.11	82.34	14.21	2.85	0.49	2.25 ₉ × 10 ⁵
10.000	0.30	74.36	18.56	5.66	1.12	3.10 ₃ × 10 ⁵
13.000	0.35	70.82	20.53	7.08	1.32	3.34 ₇ × 10 ⁵
19.000	0.50	63.52	23.72	12.01	3.45	3.988 × 10 ⁵



α 核種 (U , Np , Pu , Am , Cm ,) のエネルギー

比放射能の計算方法

$$\text{比放射能 (dpm)} = \frac{0.69315}{\text{半減期}} \times \frac{(10^{-6})(6.025 \times 10^{23})}{\text{原子量}}$$

および (比放射能) × (半減期) × (原子量) = 一定
 = (0.69315) × (10⁻⁶) (6.025 × 10²³) = 4.176 × 10¹⁷

求める核種の半減期 (S, m, h, d, y) に応じて次の定数を使用する。

半減期の単位	定数
秒	2.506 × 10 ¹⁹
分	4.176 × 10 ¹⁷
時	4.960 × 10 ¹⁵
日	2.900 × 10 ¹⁴
年	7.940 × 10 ¹¹

[計算例] 半減期 24390 Y, 原子量 239.5 の比放射能 (dpm/μg) を計算せよ。

$$\text{比放射能 (}\mu\text{g/g)} = \frac{7.940 \times 10^{11}}{24390 \times 239.05} = \frac{7.940 \times 10^{11}}{5.830 \times 10^6} = 1.36 \times 10^5$$

平均放射能の求め方

$$St = W_s S_s + W_a S_a + W_o S_o + W_i S_i + W_2 S_2$$

$$St = \text{全 (平均) 比放射能} \dots \dots \dots (\text{dpm/Sample } \mu\text{g})$$

W(8,9,0,1,2,) = Pu の同位体, ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu, (主としてB崩壊のため放出比が小さく無視して計算してよい) および ²⁴²Pu の重量の割合。

$$S(8,9,0,1,2,) = \text{Pu 同位体別の比放射能}$$

[計算例]

同位体	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹	²⁴² Pu
重量存在比	0.50%	63.52%	23.72%	12.01%*	3.45%
比放射能 (dpm/μg)	3.86 × 10 ⁷	1.36 × 10 ⁵	5.03 × 10 ⁵	2.50 × 10 ⁸	8.66 × 10 ³

* 放出比が α < 0.01% なので計算上無視する。

$$St = (0.005 \times 3.86 \times 10^7) + (0.6352 \times 1.36 \times 10^5) + (0.2372 \times 5.03 \times 10^5) + (0.0345 \times 8.66 \times 10^3) = 3.989 \times 10^5 (\text{dpm}/\mu\text{g})$$

Ci → dpm, dpm → Ci 換算法

$$1 \text{ Ci} = 2.22 \times 10^{10} \text{ dpm} = 3.7 \times 10^{10} \text{ dps}$$

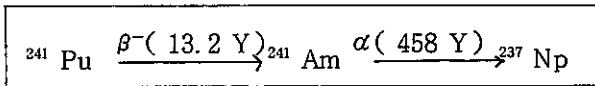
$$1 \text{ Ci} = 1 \times 10^3 \text{ mCi} = 1 \times 10^6 \mu\text{Ci} = 1 \times 10^9 \text{ nCi} = 1 \times 10^{12} \text{ pCi}$$

$$\begin{aligned} \text{Ci} &\times 2.22 \times 10^{12} \\ \text{mCi} &\times 2.22 \times 10^9 \\ \mu\text{Ci} &\times 2.22 \times 10^6 \\ \text{nCi} &\times 2.22 \times 10^3 \\ \text{PCi} &\times 2.22 \times 10^0 \end{aligned}$$

dpm

$$\begin{aligned} \text{Ci} &= \text{dpm} \times 4.5 \times 10^{-13} \\ \text{mCi} &= \text{dpm} \times 4.5 \times 10^{-10} \\ \mu\text{Ci} &= \text{dpm} \times 4.5 \times 10^{-7} \\ \text{nCi} &= \text{dpm} \times 4.5 \times 10^{-4} \\ \text{PCi} &= \text{dpm} \times 4.5 \times 10^{-1} \end{aligned}$$

$^{241}\text{Pu} \xrightarrow{\beta^-} ^{241}\text{Am}$ の生成



^{241}Pu の減衰

$$N_1 = N_0 (e^{-\lambda_1 t})$$

^{241}Am の生成

$$N_2 = N_0 \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_1 t})$$

$$^{241}\text{Pu} = 13.2\text{ Y}$$

$$^{241}\text{Am} = 458\text{ Y}$$

[計算例]

$$\lambda_1 = 0.693 / 13.2 \times 365 = 1.438 \times 10^{-4}$$

$$\lambda_2 = 0.693 / 458 \times 365 = 4.145 \times 10^{-6}$$

$$\frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} = \frac{1.438 \times 10^{-4}}{(4.145 \times 10^{-6}) - (1.438 \times 10^{-4})} = \frac{1.438 \times 10^{-4}}{1.397 \times 10^{-4}} = 1.029$$

$$\begin{aligned} \text{式 } ^{241}\text{Puの減衰 } N_1 &= N_0 (e^{-1.438 \times 10^{-4} t}) \\ ^{241}\text{Amの生成 } N_2 &= N_0 \times 1.029 (e^{-4.145 \times 10^{-6} t} - e^{-1.438 \times 10^{-4} t}) \\ \text{ただし, } t &\text{はdayで代入する。} \end{aligned}$$

1. Pu分離後, 50日経過後の ^{241}Pu 減衰残量

$$N_1 = N_0 (e^{-1.438 \times 10^{-4} t}) \quad N_0 = \text{分離した時の放射能量}$$

$$t = \text{後の経過日数}$$

$$N_1 = 1 (e^{-1.438 \times 10^{-4} \times 50}) = 1 (e^{-7.19 \times 10^{-3}}) = 0.9928$$

2. Pu分離後, 50日経過後の ^{241}Am の生成量

$$\begin{aligned} N_2 &= N_0 \times 1.029 (e^{-4.145 \times 10^{-6} \times 50} - e^{-1.438 \times 10^{-4} \times 50}) \\ &= 1 \times 1.029 (e^{-4.145 \times 10^{-6} \times 50} - e^{-1.438 \times 10^{-4} \times 50}) \\ &= 1 \times 1.029 (e^{-2.072 \times 10^{-4}} - e^{-7.19 \times 10^{-3}}) \\ &= 1.029 (0.99979 - 0.99283) = 1.029 (6.96 \times 10^{-3}) = 7.16 \times 10^{-3} \\ &= 0.00716 \dots \dots \dots ^{241}\text{Pu} \quad 1 \text{ に対し } 50 \text{ 日後は左のようになる。} \dots \dots \text{ (表参照)} \end{aligned}$$

3. YHP Model - 35による ($e^{-1.438 \times 10^{-4} \times 50}$)の計算プログラム例

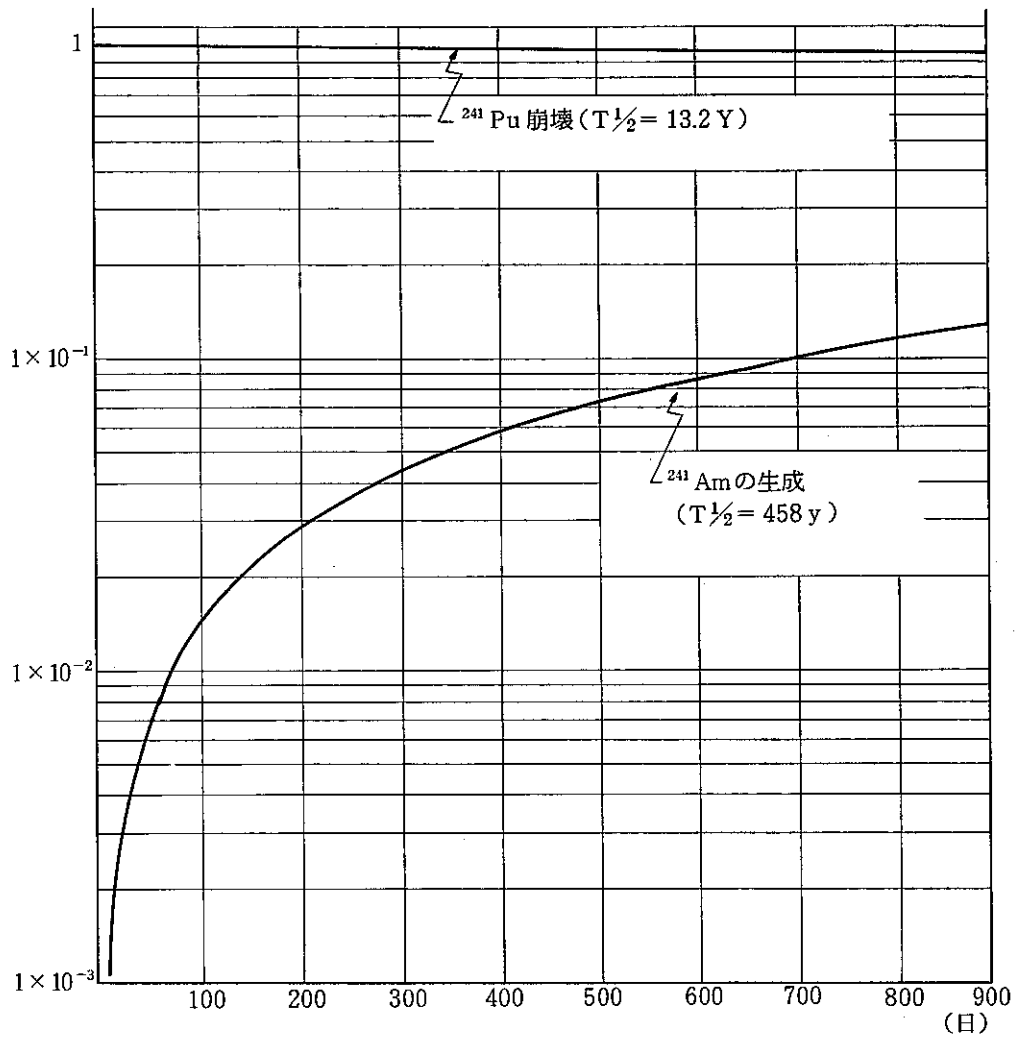
Step 1	<input type="text" value="1."/> <input type="text" value="4"/> <input type="text" value="3"/> <input type="text" value="8"/>	1.438	
2	<input type="text" value="CHS"/>	- 1.438	
3	<input type="text" value="EEX"/>	- 1.438	00
4	<input type="text" value="4"/>	- 1.438	04
5	<input type="text" value="CHS"/>	- 1.438	- 04
6	<input type="text" value="ENTER"/>		
7	<input type="text" value="5"/> <input type="text" value="0"/> 日数	50	
8	<input type="text" value="X"/>	- 7.19	- 03
9	<input type="text" value="ex"/>	0.9928357862	

TIME

Time	Year	Day	Hour	Minute	Second
1 year	1	365.24	8.766×10^3	5.259×10^5	3.156×10^7
1 day	2.738×10^{-3}	1	24	1.440×10^3	8.640×10^4
1 hour	1.141×10^{-4}	0.04167	1	60	3.600×10^3
1 minute	1.901×10^{-6}	6.944×10^{-4}	0.01667	1	60
1 second	3.169×10^{-8}	1.157×10^{-5}	2.778×10^{-4}	0.1667	1

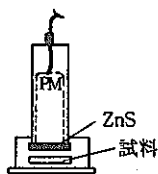
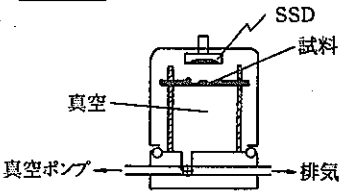
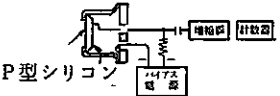
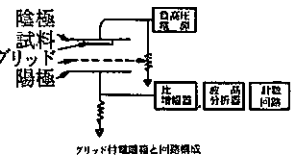
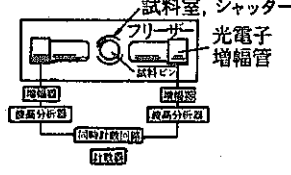
$^{241}\text{Pu} \xrightarrow{\beta^-} ^{241}\text{Am}$ 壊変時の ^{241}Am の生成 ($T_{1/2} = 13.2 \text{ Y}$)

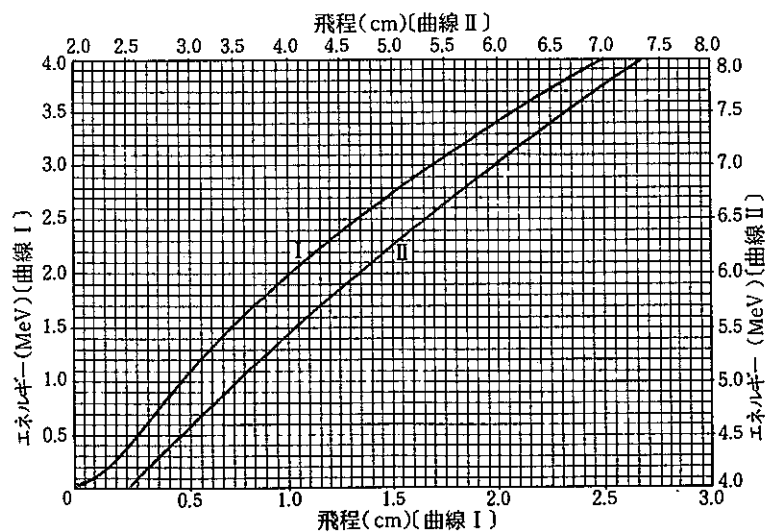
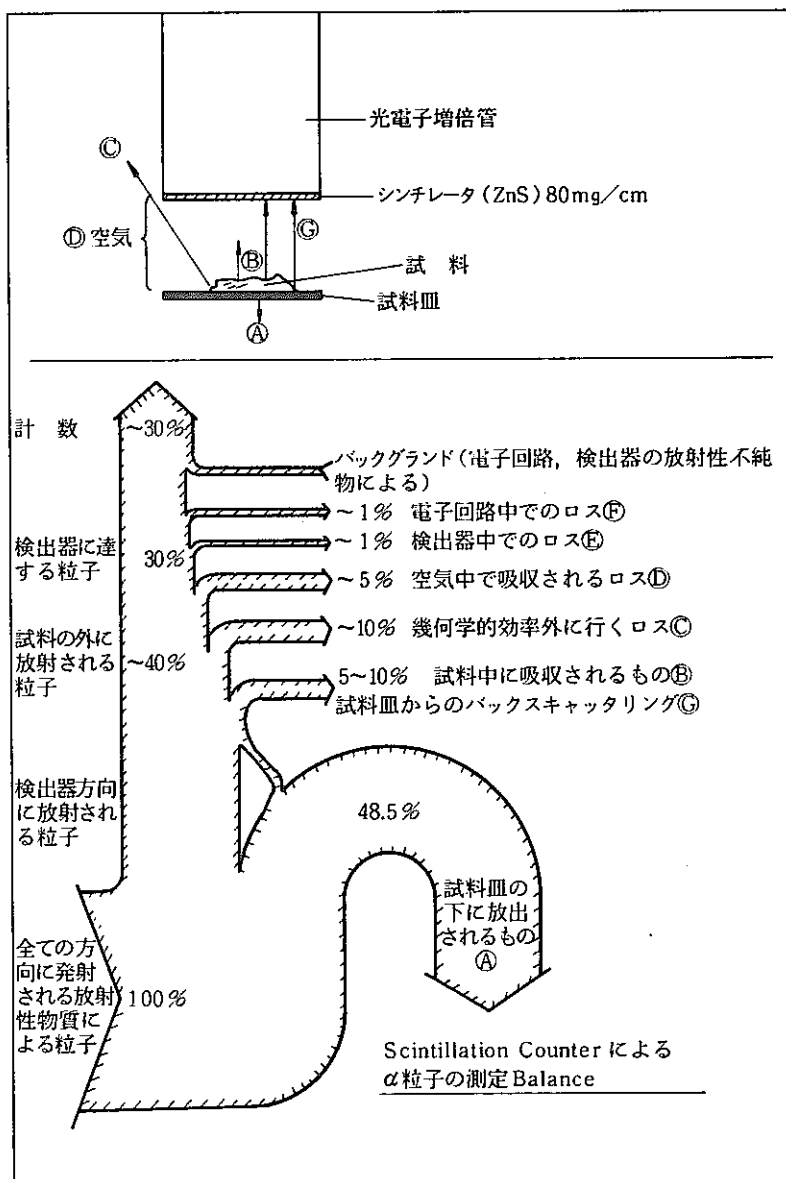
Day	0	10	20	30	40	50	60	70	80	90
0	0.000000	.001437	.002870	.004304	.005733	.007162	.008587	.010011	.011434	.012852
100	.014271	.015685	.017142	.018510	.019920	.021327	.022731	.024134	.025534	.026934
200	.028331	.029726	.031119	.032509	.033897	.035283	.036667	.038050	.039430	.040809
300	.042185	.043560	.044931	.046300	.047668	.049035	.050398	.051761	.053120	.054479
400	.055836	.057188	.058541	.059892	.061239	.062584	.063929	.065278	.066610	.067949
500	.065285	.070618	.071950	.073281	.074608	.075935	.077260	.078580	.079901	.081220
600	.082543	.083850	.085163	.086473	.087782	.089088	.090393	.091696	.092997	.094295
700	.085592	.096888	.098181	.099471	.100760	.102048	.103333	.104618	.105898	.107178
800	.108457	.109732	.111006	.112279	.113548	.114817	.116084	.117349	.118611	.119872
900	.121132	.122388	.123643	.124897	.126149	.127399	.128646	.129892	.131135	.132379

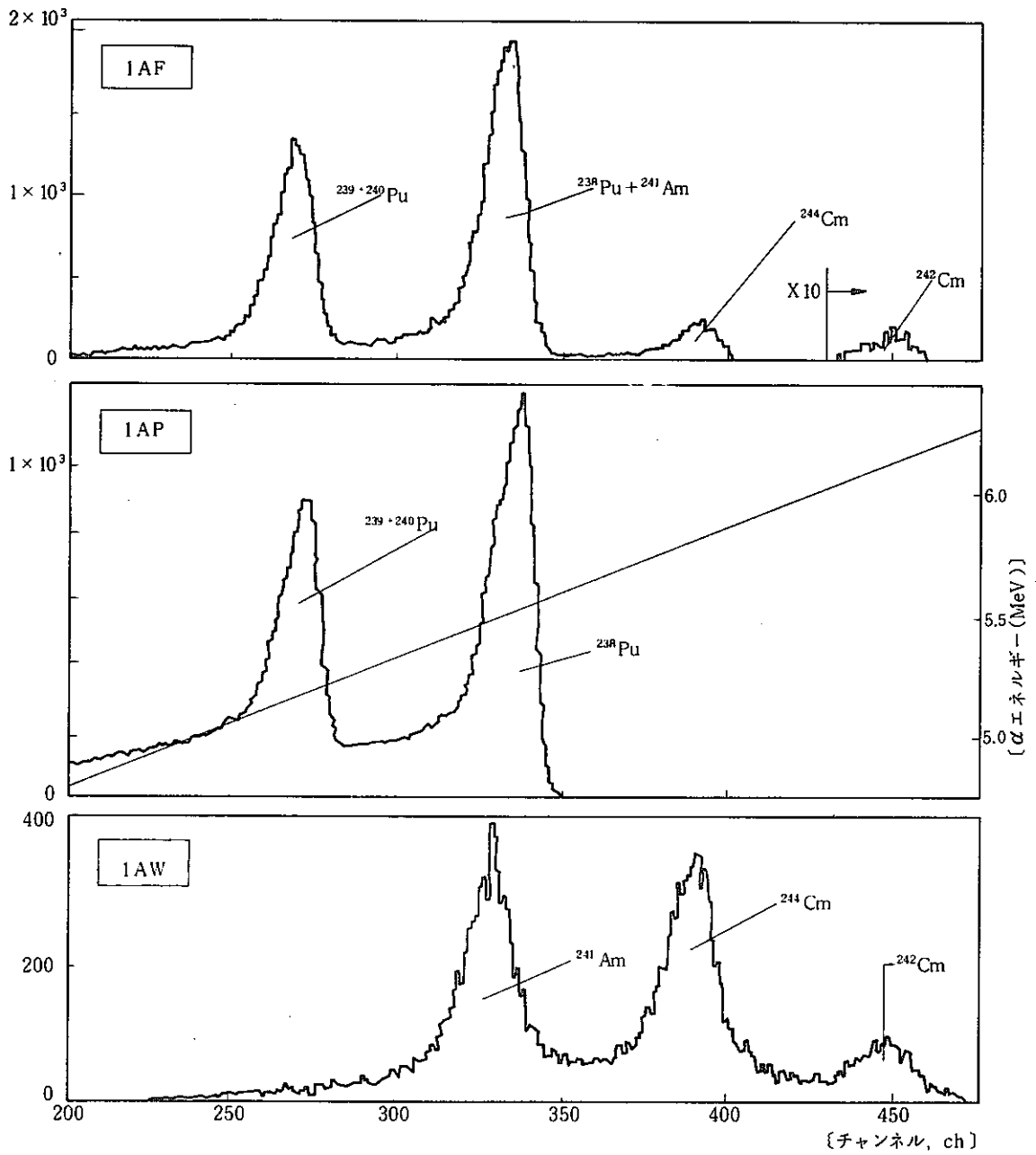


^{241}Pu 崩壊と ^{241}Am の生成曲線

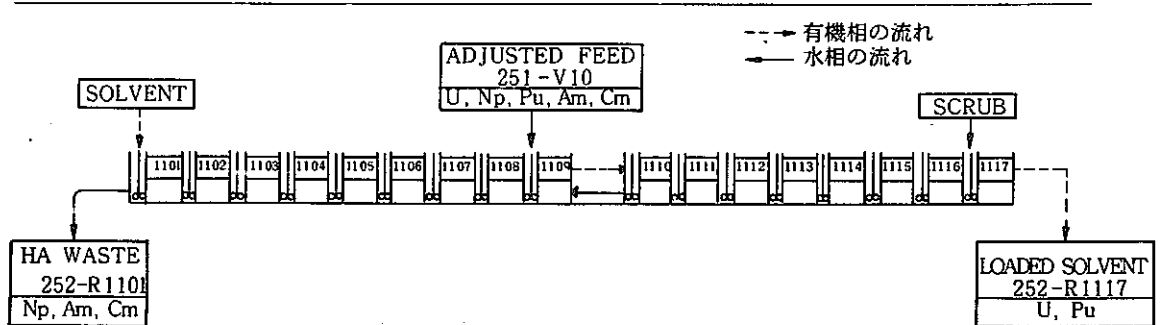
α線測定検出器の作動原理, 特長等

測定方法	作動原理	特長	計数効率	バックグラウンド (新品の場合)	検出器
1. シンチレーションカウンタ	α線がZnS(Ag)シンチレータにあたりZnSが励起され、元の状態に戻る時に、過剰のエネルギーの一部を光の形で放出する。	簡便安価 エネルギー分解能悪 暗箱内で測定する必要あり。	20 ~ 30 %	0.1 cpm	
2. 半導体検出器 (SSD)	α線が、Si半導体で伝導子の正孔の対を作る。それを電界の力で分離しパルスとして取出す。	エネルギー分解能良 エネルギーと強度測定安定性良 機械的強度弱 真空中で測定する必要あり	~ 30 %	低	
3. カスフローカウンタ (2, 4π)	ガスにα線があたってガスを電離する。分かれた電子のイオンが近くのガスをイオン化し、次々と電子なだれ現象を起こす。それを電界の力で集めパルスとして取出す。	エネルギー分解能悪 絶対強度測定可能 ガス (PR) が必	50 % (2π) 100 % (4π)		 <p>半導体検出器・構造と結線</p>
4. グリッド型パルス電離箱	α線の電離作用で、ガス中の陽イオン対を作る。この電子を電界の力で分離して陽極に集めパルスとして検出する。	エネルギー分解能良 大型試料の測定可能 真空装置が必要	50 %		 <p>グリッド付電離箱と回路構成</p>
5. 液体シンチレーションカウンタ	α線が液体シンチレータ (PPO) にあたり可視および近紫外域の光量子を放出、この光をさらに第2のシンチレータにあて比較的長波長側の光に変換する。この光を電気的に測定する。	液体シンチレータおよび測定 バイアルが高価 装置が高価 液状で測定可能 クエンチングがある		30 cpm	 <p>同時計数式液体シンチレーションカウンタの構造と回路構成</p>





再処理工程試料溶液中のαスペクトル
 (波高は、試料採取量および測定時間の影響
 で定量的なものではない。)



0285	000088	023925
0286	000087	023913
0237	000086	023995
0288	000075	024071
0289	000080	024151
0290	000073	024224
0291	000067	024291
0292	000087	024375
0293	000100	024476
0294	000116	024594
0295	000104	024598
0296	000099	024797
0297	000093	024880
0298	000098	024988
0299	000099	025097
0300	000120	025207
0301	000130	025337
0302	000125	025452
0303	000127	025533
0304	000140	025229
0305	000128	025857
0306	000147	026004
0307	000159	026163
0308	000143	026306
0309	000155	026451
0310	000183	026544
0311	000248	026892
0312	000214	027105
0313	000230	027336
0314	000254	027530
0315	000248	027836
0316	000299	028137
0317	000327	028464
0318	000357	028871
0319	000436	029257
0320	000504	029751
0321	000550	030311
0322	000697	031763
0323	000772	031780
0324	000877	032567
0325	000955	033612
0326	001180	034732
0327	001345	036137
0328	001504	037641
0329	001672	038313
0330	001736	041045
0331	001804	042853
0332	001885	044735
0333	001866	045685
0334	001930	048535
0335	001723	050253
0336	001434	051552
0337	001251	052943
0338	000558	053551
0339	000594	054595
0340	000521	055113
0341	000324	055442
0342	000198	055532
0343	000141	055772
0344	000083	055864
0345	000052	055910
0346	000025	055940
0347	000023	055953
0348	000010	055972
0349	000012	055985
0350	000013	055998
0351	000020	055919
0352	000011	055930
0353	000012	056942
0354	000014	056950
0355	000019	056990

α-スペクトル波高解析法

1. 定量しようとするピークについてのBGを求める。

(1) 低エネルギー側の境界チャンネル(i)を求める。

(例) 289 ch

(2) 高エネルギー側の境界チャンネル(f)を求める。

(例) 350 ch

(3) i-1, i, i+1の計数の平均値を計算

(例) $\bar{N}_i = 75 + 80 + 73 / 3 = 76$

(4) f-1, f, f+1の平均値Nfを求める。

(例) $N_f = 12 + 13 + 21 / 3 = 15$

(5) 境界中のバックグラウンドN_Bを求める。

$$N_B = \frac{(f-i+1)(\bar{N}_i + \bar{N}_f)}{2} = \frac{(350-289+1)(76+15)}{2} = 2821$$

2. 境界内の計数の合計値N_Tを求める。

$$N_T = N_f (INT) - N_{i-1} (INT) = 55998 - 24071 = 31927$$

3. ピークの正味面積Aを求める。

$$A = N_T - N_B = 31927 - 2821 = 29106$$

4. 壊変率 (dpm) を求める。

$$\text{壊変率 (dpm)} = \frac{\{\text{ピーク面積 (cpm)}\}}{\{\text{計数効率}^*\} \{\text{放出率}\}}$$

* 計数効率, Si 半導体検出の計数効率は ~ 20 % 位

ので, 使用前に標準線源を用いて, 校正しておく必要がある。

ただし, 3 ~ 7 Mev の範囲ではエネルギーによる計数効率の変動はない。

5. 放射量を算出する。

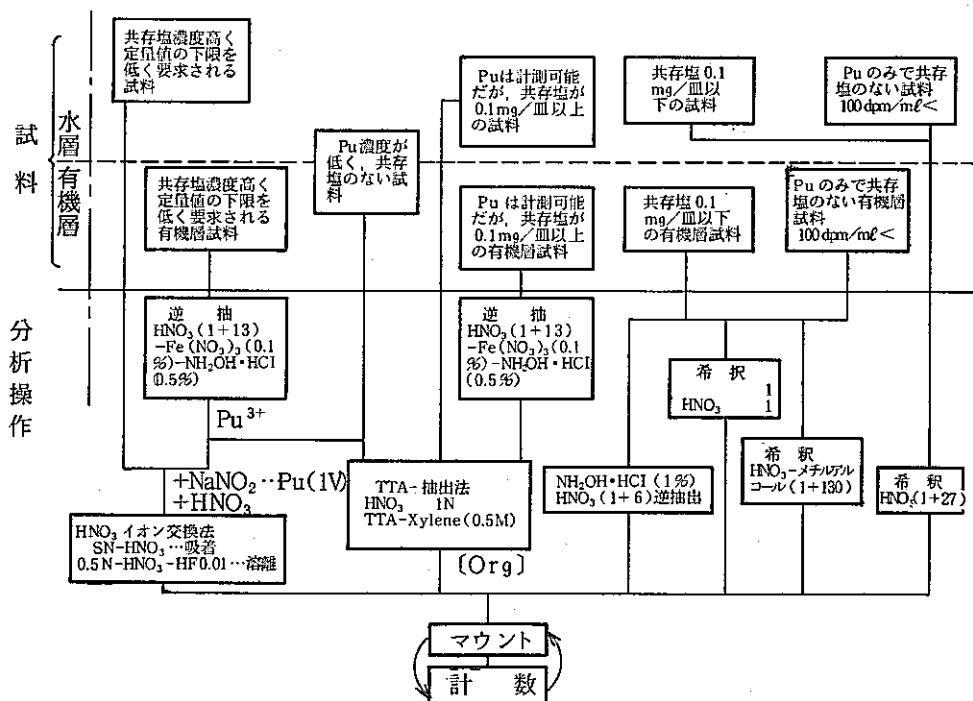
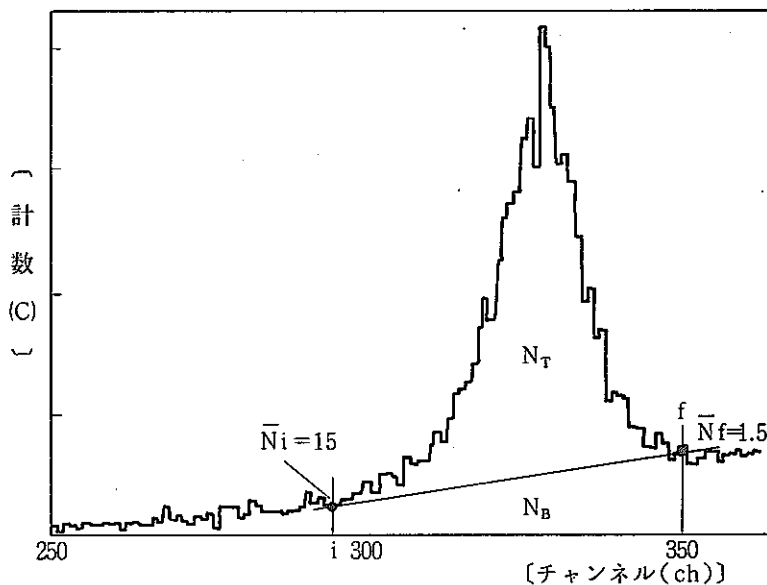
$$\text{放射量} (\mu\text{Ci}) = \text{壊変率 (dpm)} / 2.22 \times 10^6$$

6. 放射能濃度を算出する。

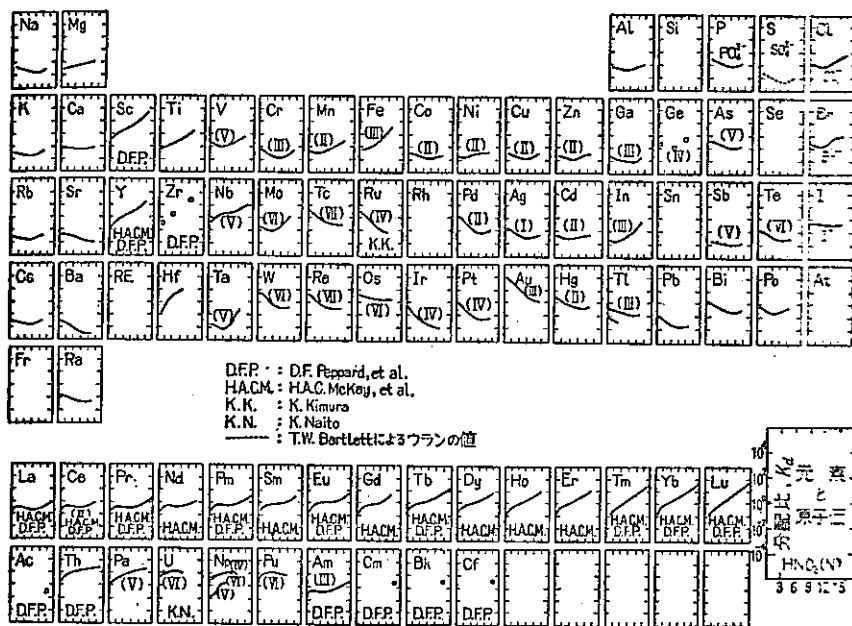
$$\text{放射能濃度} (\mu\text{Ci/ml}) = \text{放射量} (\mu\text{Ci}) \times \text{希釈倍率} / \text{試料採取量 (ml)}$$

INTEGRAL デジタルデータ

チャンネル別のデジタルデータ



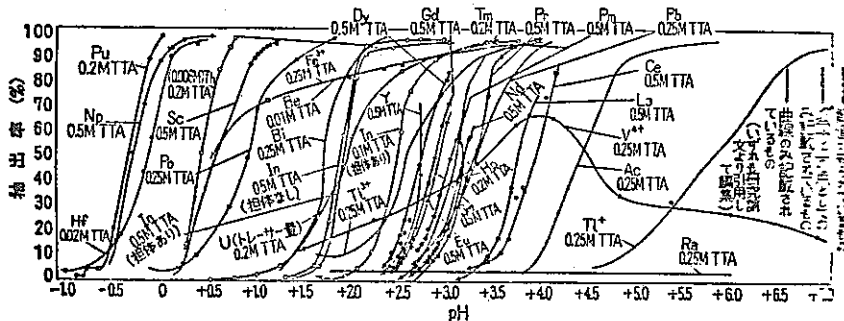
Pu α-計数法の前処理選択図



(使用例) 図で K_d 値の大きい元素と、小さい元素との相互分離は容易である。たとえば、薄い塩酸溶液からは Au は TBP にきわめてよく抽出される (K_d 約 10^4) が、Cu はほとんど抽出されない (K_d 約 10^{-2}) から分離可能である (図 9.4 の文献参照)。図 9.6-図 9.7 では、分離しようとするおのおのの元素の抽出曲線が重ならないような pH 値を定めてことによって相互分離ができる。

T. Ishimori, K. Watanabe, *Bull. Chem. Soc. Japan*, 33, 1443 (1960) による。

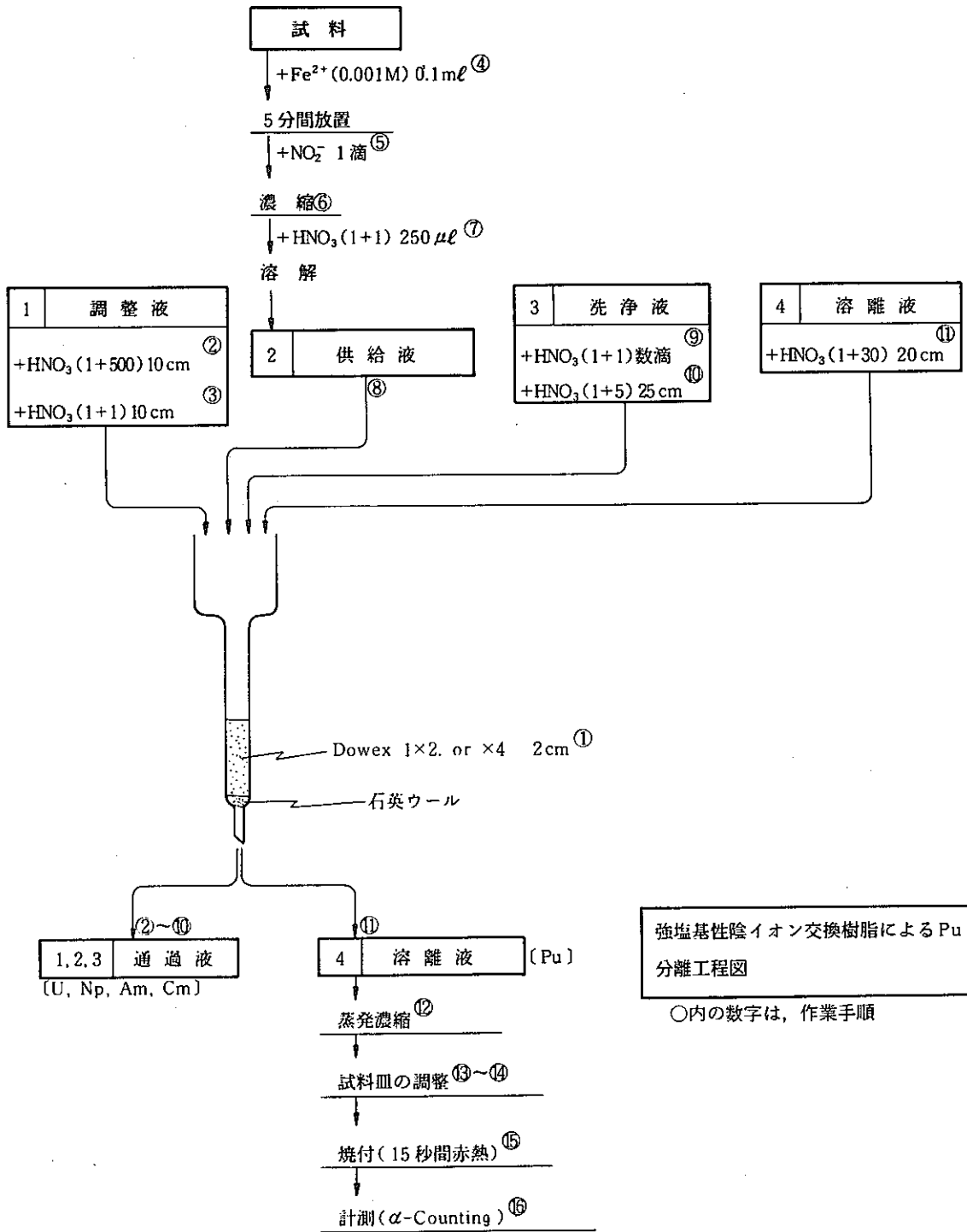
図 9.5 硝酸-TBP 系における諸元素の分配



TTA は水には不溶であるが、普通ベンゼン溶液として用いられる。

E. Sheperd, W. W. Meinke, AECU-3879 (1958): 斎藤信房 (訳・引用), 和光純薬時報, 28, No. 2, p. 3 (1959) による。

図 9.6 TTA による抽出



イオン交換法による Pu の分離作方法

試料 10 ml (ビーカー 50 ml)

↓ + HNO₃ (1 + 6)

酸濃度調整 ——— 0.5~1.5 N に調整

↓ + Fe(NO₃)₃ (3.5%) 2 滴

↓ + NH₂OH · HCl (35%) 2 滴

原子価調整 …………… Pu(Ⅲ, IV, VI) → Pu(Ⅲ)

攪 ↓ 拌 (5 分間)

↓ + NaNO₂ (10%) 10 滴

攪 ↓ 拌 (10 分間)

↓ + TTA-Xylene (11.1%) 5 ml

攪拌抽出 (15 分間)

放 ↓ 置 (5 分間) ————— [水相]

[有機相]

↓ + HNO₃ (1 + 13) 10 ml

攪 ↓ 拌 (3 分間)

放 ↓ 置 (5 分間) ————— [水相]

[有機相]

焼 ↓ 付 …………… 0.2 ml を試料皿 (1 inφ)

灼 ↓ 熱 …………… 赤熱状態 10 秒

測 ↓ 定 …………… ZnS 検出器

計 算

$$Pu \text{ (dpm/ml)} = \frac{\text{計数值 (cpm)} - \text{BG (cpm)}}{\text{試料採取量 (ml)}} \times \frac{\text{TTA採取量 (ml)}}{\text{試料皿焼付量 (ml)}} \times \frac{100}{\text{計数効率}} *$$

* ZnS の場合計数効率は約 20 ~ 30 %

UO₂ (NO₃)₂ 中の Pu の分析手順

(TTA-Xylene 抽出法)

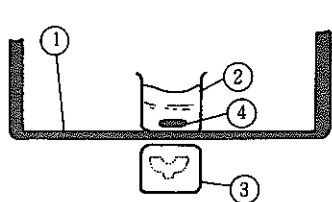
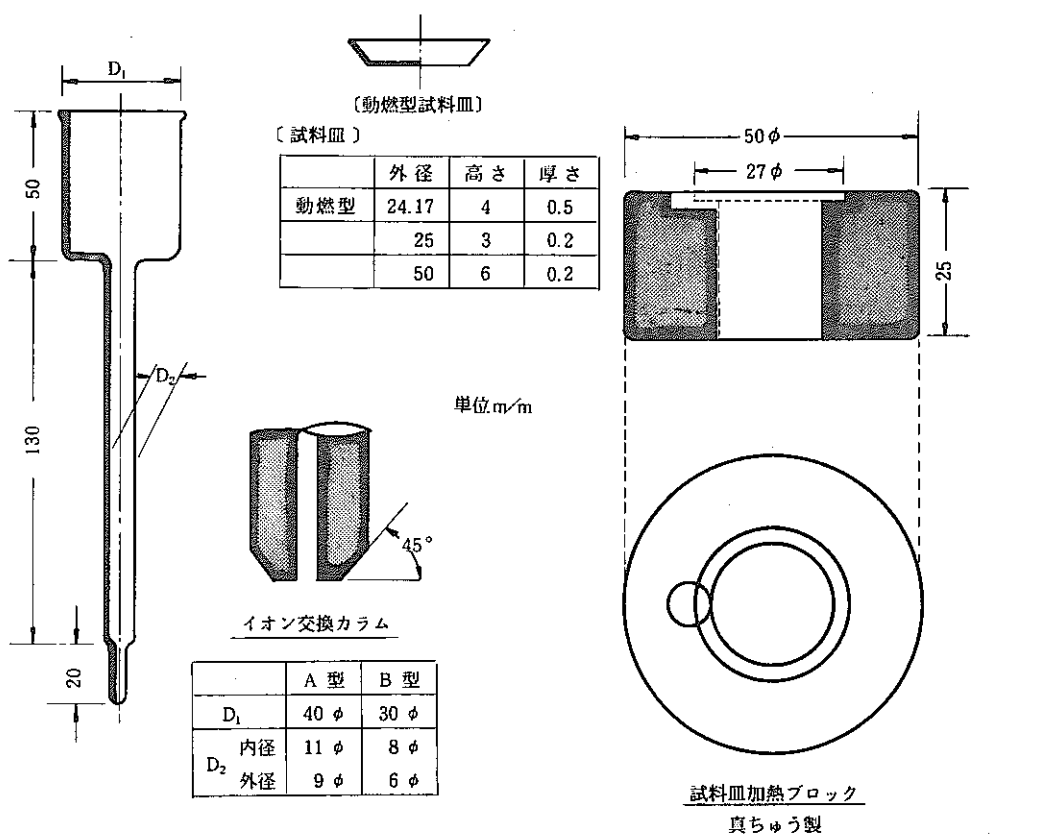
[α-Counting 試料希釈剤]

	適 用		調 製 方 法
	水 相	有機相	
1. 希硝酸	○		硝酸 (1 + 27)
2. ブチルセロソルブ-希硝酸		○	ブチルセロソルブ (1部) 硝酸 (1 + 27) 1部
3. メチルアルコール希硝酸		○	硝酸 (1部) - メチルアルコール (130部)

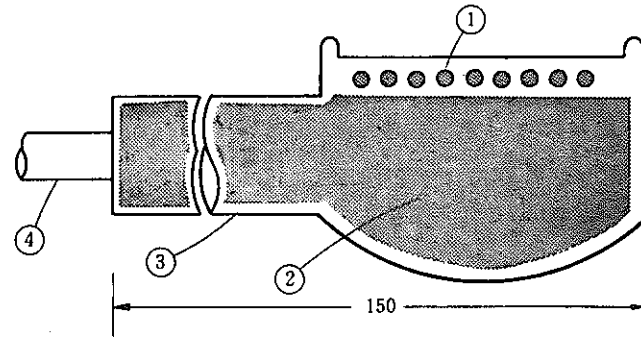
R. C. C. 製 Cat. No. AMR 33 標準線源

(エネルギー校正用)

核種	Am-241	Cm-244	Pu-239
半減期	458 Y	18 Y	24.400 Y
エネルギー (MeV)	5.48 (85)	5.80 (77)	5.15 (72)
放出率 (%)	5.44 (13)	5.76 (23)	5.13 (17)
			5.10 (11)



- 攪拌機構
- ① グローブボックス
 - ② ビーカー
 - ③ マグネチックスタラ
 - ④ 回転子



- 加熱器 (エピラディアツール)
- ① ヒーター (100Vの場合 300W) スライダックで電圧調整
 - ② 石棉 ③ 不透明石英 ④ 電源コード