余裕深度処分対象廃棄物の 核種分析手法の評価について

平成 27 年 3 月

公益財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター

本書の著作権は、北海道電力株式会社、東北電力株式会社、 東京電力株式会社、中部電力株式会社、北陸電力株式会社、 関西電力株式会社、中国電力株式会社、四国電力株式会社、 九州電力株式会社、日本原子力発電株式会社、電源開発株式 会社及び日本原燃株式会社に帰属します。

はじめに

余裕深度処分対象廃棄物は原子炉内での中性子照射によって生成する放射化金属など が対象であり、その放射能濃度を評価する方法として、浅地中ピット処分対象廃棄物で用 いられている直接測定を主体とした方法ではなく、放射化計算を用いて放射能濃度を評価 する方法(以下、「理論計算法」という。)が検討されている。

この余裕深度処分対象廃棄物に対する理論計算法については、日本原子力学会標準「余 裕深度処分対象廃棄物の放射能濃度決定方法の基本手順:2010」において、その基本的な 手順が定められているが、理論計算法で評価した放射能濃度が妥当であることを、余裕深 度処分対象廃棄物の発生者である原子炉設置者(以下、「事業者」という。)が具体的に示 すことも重要となる。

そこで、事業者は、理論計算法で評価した放射能濃度と、余裕深度処分対象廃棄物の実 サンプル試料の放射化学分析により実測した放射能濃度とを比較して、理論計算法で評価 した放射能濃度の妥当性を示すことを検討しているが、余裕深度処分対象廃棄物の評価対 象と考えられている核種の中には、放射化学分析手法(以下、「核種分析手法」という。) が確立されておらず、事業者がメーカと協力して新たに核種分析手法を開発している核種 がある。

本書は、これらを踏まえて、事業者がメーカと協力して開発している余裕深度処分対象 廃棄物の核種分析手法について、第三者の視点から見ても妥当であることを示すために、 公益財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センターに設置した専門家の委員会において その妥当性を評価した結果をまとめたものである。

なお、本書で示した核種分析手法は、現在の知識と経験に基づき定めたものであり、今 後、新たな知見が得られる場合には、必要に応じて適宜見直しがなされるべきものである。

目次

1. 余裕深度処分対象廃棄物の核種分析手法の評価	1
1.1 目的	1
1.2 余裕深度処分対象廃棄物の評価対象核種	1
1.3 核種分析手法の検討・開発	1
2. 核種分析手法の妥当性評価委員会	1
2.1 専門家による委員会の設置	1
2.2 専門家による委員会の開催	2
 核種分析手法の妥当性評価	2
4. 核種分析手法の適用性確認	2
4.1 分析試料の配分と適用した核種分析手法	2
4.2 分析結果の比較	5
4.2.1 放射化学分析の不確かさ評価方法	5
4.2.2 室間再現性について	5
4.2.3 分析結果の比較方法と結果	6
4.3 分析結果の評価	8
4.4 核種分析手法の適用結果	10
4.5 分析を実施する際の留意事項	10
5. 結論	11

別紙:核種毎の核種分析手法の概要

- 1. 余裕深度処分対象廃棄物の核種分析手法の評価
 - 1.1 目的

余裕深度処分対象廃棄物の重要核種と想定される核種について、その核種分析手法の 妥当性を評価する。

- 1.2 余裕深度処分対象廃棄物の評価対象核種
- β、γ核種(15 核種)

C-14、Cl-36、Co-60、Ni-59^{*1}、Ni-63、Sr-90、Zr-93、Nb-94、Tc-99、Sn-126、 I-129、Cs-135^{*1}、Cs-137、Ho-166m、Ir-192m2

(2) α 核種 (7 核種)

Th-232、 Pu-238、 Pu-239、 Pu-240、 Pu-242、 Am-241、 Am-243

- *1: Ni-59、Cs-135 は、それぞれ Ni-63、Cs-137 の放射能濃度を基にした理論計算に よる評価が合理的であるため、核種分析手法の検討対象には含めない。
- 1.3 核種分析手法の検討・開発

事業者は、メーカと協力し、代表的なサンプルとして BWR チャンネルボックス(ジ ルカロイ)及び PWR サーベイランス試験片収納容器(ステンレス鋼)を対象に、1.2 に示した 20 核種の放射能濃度を測定するための核種分析手法を検討・開発した。

なお、妥当性の評価対象となった核種分析手法については、原子力発電の黎明期より 現在までに2つのメーカがそれぞれ検討・開発してきたものである。

開発した核種分析手法を確認するため、運転実績がある原子力発電所の炉内において 中性子照射を受けた上記の金属材料(放射化金属試料)の分析を実施した。当該試料は 極めて放射能濃度が高い試料であり、採取された試料は少量であったこと、更に、核種 分析を実施した分析施設における放射能使用許可量の制限から多くの分析試料量を確保 することが困難であったことから、核種分析は、各金属材料に対して、それぞれの核種 毎に1回ずつの試行にとどめざるを得なかった。

- 2. 核種分析手法の妥当性評価委員会
 - 2.1 専門家による委員会の設置

専門家による「余裕深度処分埋設核種分析手法レビュー委員会」を設置し、事業者が メーカと協力して検討・開発した核種分析手法について審議を行い、その妥当性を評価 した。委員会の委員構成について以下に示す。

- (主査) 森本 隆夫 公益財団法人 日本分析センター 理事
- (委員) 亀尾 裕 独立行政法人 日本原子力研究開発機構 バックエンド研究開
 発部門 原子力科学研究所 バックエンド技術部 放射性廃棄物
 管理技術課 課長
 - 都筑 康男 一般社団法人 原子力安全推進協会 技術支援部 放射線・廃棄 物グループ 部長
 - 本多 哲太郎 公益財団法人 放射線計測協会 事業推進部長
 - 三浦 勉 独立行政法人 產業技術総合研究所 計測標準研究部門 無機分析科 無機標準研究室 室長

2.2 専門家による委員会の開催

「余裕深度処分埋設核種分析手法レビュー委員会」は平成26年2月から平成26年 11月にかけて5回開催し、1.2に示した20核種の核種分析手法の妥当性について審議 を行った。委員会の開催実績及び各委員会での議題を以下に示す。

口	開催日	議題
1	平成26 年2月26日	・委員会の運営要領、目的及び進め方について
		・分析方法の概要について
		 分析方法(γ線放出核種)について
2	平成26 年5月15日	・委員会のコメント対応
		 ・分析方法(α、β線放出核種)について
3	平成26 年7月16日	・委員会のコメント対応
		・放射化学分析結果の比較について
4	平成26 年9月17日	・委員会のコメント対応
		・放射化学分析精度と評価側の要求する分析精度
		・委員会報告書案について
5	平成26 年11月28日	・委員会のコメント対応
		・委員会報告書案について

3. 核種分析手法の妥当性評価

上記委員会において、評価対象核種の分析手法について以下に示す観点から審議した結果、2 つのメーカが検討・開発した核種分析手法は、適切な放射能濃度が得られる手法であると判断された。

- ① 適切な回収率が得られること
- ② 分析対象核種の放射線測定において妨害となる核種が除去されていること
- ③ 測定器の校正方法に問題なく、標準線源、検量線などを用いた定量方法も適切で あること
- 4. 核種分析手法の適用性確認

核種分析手法の適用性確認として、委員会で審議を受けた核種分析手法による2つのメ ーカの分析結果を比較した。

4.1 分析試料の配分と適用した核種分析手法

実機より採取した放射化金属試料(ジルカロイ及びステンレス鋼の2材料)を2つの メーカ(それぞれの核種分析手法を検討・開発したメーカ)にて配分し、核種分析を実 施した。

図-1に分析試料と各分析室における分析対象試料の配分実績を示す。

ジルカロイは、小片化した試験片をそれぞれ個別に溶解し、溶解液と溶解時のオフガスを回収したアルカリトラップ吸収液を分析実施メーカへ配布した。

ステンレス鋼試料は試験片を溶解し、溶解液と溶解時のオフガスを回収したアルカリ トラップ吸収液を、溶液として2分割して分析実施メーカへ配布した。

図-2に方法案1による各核種分析手法の概要を示す。 図-3に方法案2による各核種分析手法の概要を示す。



図-1 分析試料と各分析室における分析対象試料の配分実績



図-2 方法案1による各核種分析手法の概要



図-3 方法案2による各核種分析手法の概要

4.2 分析結果の比較

それぞれの分析を実施した2つのメーカの放射化学分析結果について、それぞれの分 析結果の不確かさを評価した。また、当該試料の分析は各メーカともに1回のみ実施し たものであるため、それらを比較するために必要な室間再現性の評価は、既往研究結果 から求めた。分析結果の比較は、核種分析の不確かさと室間再現性を合成した合成不確 かさから許容差を求め、2つのメーカの分析差が許容差を超えていないものは有意差が 無いものとして評価した。

4.2.1 放射化学分析の不確かさ評価方法

放射化学分析の不確かさは、放射化学分析の各ステップにおいて発生する不確か さを合成することにより算出した。

図-4に放射化学分析の不確かさ評価方法を示す。



【標準的な放射化学分析の流れ】

分析試料採取の不確かさ

同一試料の繰り返し分析を実施する場合は試験片の不均 一性を評価。さらに溶解した試験片採取質量の計量、溶 解後の定容体積、分注器による分取の不確かさを合成し て、不確かさを評価。

②②' 化学回収率補正の不確かさ

放射化学分析時のキャリア添加量と化学回収率を求める 際に分析したキャリア回収量の不確かさを合成し、化学 回収率の不確かさを評価。

③ 放射線測定器校正の不確かさ

放射線測定器の効率校正に使用した標準 RI 及び効率校 正曲線(近似)で最も校正差が大きい値の合成で評価。

④ 放射線測定の不確かさ

分析対象核種の放射線測定時における正味計数値の計数 誤差を放射線測定時の不確さとして評価。

⑤ 放射化学分析結果の不確かさ

上記①~④の不確かさを二乗和の平方根として合成不確 を求めた後、包含係数(今回は 95 %の信頼区間を設定 する事として"2")を乗じて、拡張不確かさを算出。

図-4 放射化学分析の不確かさ評価方法

4.2.2 室間再現性について

既往電力共通研究「低レベル放射性廃棄物の基準整備に関する研究(平成3年度報告)」における、低レベル放射性廃棄物の放射化学分析での室間再現性の確認実績を 参考にして、放射化学分析における室間再現性の変動係数を算出した。

表-1に既往研究をもとに算出した室間再現性の整理結果を示す。

室間再現性は、既往研究により報告されている各分析機関における各核種分析結果 のうち、全ての分析機関で有効な分析結果(検出値)が報告されている核種であって、 検出下限値に対して十分な強度で分析対象核種が検出されていると考えられる核種 の分析結果から評価した。(採用データは表-1中の平均採否欄に「採用」と表記)

室間再現性は、各分析機関から報告された放射能濃度を集計して、核種毎の変動係数(平均値に対する標準偏差の割合)を求め、上記基準に基づき選定した核種の変動 係数の平均値から、室間再現性は25%とした。

セメント固化体	分析機関の分析値(Bq/g) ※					集計結果				
(高炉C)	В	社	С	社	分析機関	平均	:	標準偏差	変動係数	平均採否
H-3	4.2E+0	3.6E+0	5.9E+0	5.9E+0	9.3E+0	5.8E+0)	2.2E+0	38%	採用
C-14	4.3E+0	4.1E+0	4.4E+0	4.8E+0	4.1E+0	4.3E+0)	2.9E-1	6.6%	採用
Co-60	2.7E+2	2.8E+2	2.4E+2	2.4E+2	2.8E+2	2.6E+2	2	2.0E+1	7.8%	採用
Ni-59	1.0E+0	3.5E-1	-	_	4.6E-2	4.7E-	1	4.9E-1	105%	不採用
Ni-63	2.8E+1	2.8E+1	1.3E+1	1.2E+1	2.3E+1	2.1E+	1	7.9E+0	38%	採用
Sr-90	1.6E+1	1.6E+1	1.0E+1	9.6E+0	9.1E+0	1.2E+	1	3.5E+0	29%	採用
Nb-94	ND	1.0E-2	ND	1.4E-2	3.4E-3	9.1E-3	3	5.4E-3	59%	不採用
Tc-99	ND	ND	ND	ND	ND	ND		ND	_	不採用
I-129	ND	ND	1.8E-4	2.1E-4	ND	2.0E-4	4	2.1E-5	11%	不採用
Cs-137	3.4E+2	3.0E+2	2.6E+2	2.6E+2	2.6E+2	2.8E+2	2	3.6E+1	13%	採用
全α	4.0E+0	3.8E+0	3.0E+0	2.9E+0	6.4E+0	4.0E+0)	1.4E+0	35%	採用

表-1 既往研究をもとに算出した室間再現性の整理結果

アスファルト固化体		分析機關	関の分析値(B	q/g) 💥		集計	·結果		
(BWR)	C社		D社		分析機関	平均	標準偏差	変動係数	平均採否
H-3	5.5E+0	5.5E+0	5.6E+0	4.3E+0	1.0E+1	6.2E+0	2.2E+0	36%	採用
C-14	3.9E-1	3.2E-1	ND	ND	ND	3.6E-1	4.9E-2	14%	不採用
Co-60	2.1E+3	1.9E+3	2.9E+3	2.8E+3	3.2E+3	2.6E+3	5.5E+2	21%	採用
Ni-59	-	-	—	—	3.5E-1	3.5E-1	—	_	不採用
Ni-63	1.8E+2	1.8E+2	1.4E+2	1.4E+2	2.0E+2	1.7E+2	2.7E+1	16%	採用
Sr-90	3.0E+1	2.7E+1	1.9E+1	1.6E+1	2.1E+1	2.3E+1	5.8E+0	26%	採用
Nb-94	3.2E-2	3.6E-2	7.5E-2	9.0E-2	3.1E-2	5.3E-2	2.8E-2	52%	不採用
Tc-99	ND	ND	ND	ND	1.7E-2	1.7E-2	—	_	不採用
I-129	5.8E-4	5.6E-4	ND	ND	ND	5.7E-4	1.4E-5	2.5%	不採用
Cs-137	9.3E+2	1.2E+3	1.7E+3	1.7E+3	1.5E+3	1.4E+3	3.4E+2	24%	採用
<u>全</u> α	2.0E+0	2.0E+0	1.1E+0	1.4E+0	1.6E+0	1.6E+0	3.9E-1	24%	採用

※ 「低レベル放射性廃棄物の基準整備に関する研究 平成3年度報告書」より抜粋

4.2.3 分析結果の比較方法と結果

2つのメーカの分析結果の差(絶対値)が、それぞれの分析差の許容差を超えない ことで、両分析値に有意差が無いと判断する。 許容差は以下の式により核種毎に算 出した。

C1	$-C2 \le k$	$\sqrt{(\sigma_{C1}^2 + \sigma_{C2}^2)}$
ここに、	C1	: 方法案1による分析値
	C2	: 方法案2による分析値
	σ_C1	: 方法案1による分析値の不確かさ
	σ_C2	: 方法案2による分析値の不確かさ
	k	: 包含係数(通常は「2」を使用)

図-5に核種毎の分析結果(Co-60放射能濃度に対する比率)を示す。

分析を実施した核種のうち、いずれの核種分析手法、いずれの分析試料においても、 Sn-126、I-129、Ho-166m、Ir-192m2の4核種は検出されなかった。

また、C-14 及び Pu-239+240 は分析値の差が許容差を超えた。さらに、Zr-93、Tc-99 は、いずれかの分析結果が検出下限値以下であったが、もう一方の核種分析手法でそれよりも高い放射能濃度で検出値が得られており、検出値と検出下限値の差が許容差を超える結果が得られた。



サーベイランス試験片収納容器(ステンレス)試料 分析結果比較



図-5 核種毎の分析結果(Co-60 放射能濃度に対する比率)

4.3 分析結果の評価

放射化計算による放射能濃度評価平均値*1の1/100*2を要求検出下限値(以下、「要求DL」という。)として、各核種分析で得られた分析結果と要求DLとの比を求め、検出下限値達成度を確認した。

図-6に各試料の分析要求に対する検出下限値達成度を示す。

2種類の分析試料両方の核種分析において、方法案1及び方法案2の何れの方法においても要求 DL を超えた核種はI-129のみであった。なお、Sn-126については、ジルカロイ試料に適用した方法案1が要求 DL を満足しており、Ir-192m2 については、ステンレス鋼試料に適用した方法案1、ジルカロイ試料に適用した方法案2が、それぞれ要求 DL を満足している。

- *1:余裕深度対象廃棄物の放射能濃度評価検討時の試算値
- *2:当初の目標検出下限値は、平均値の 1/10 としていたが、委員会の審議において放射能濃度管理分析の考え方として用いられる 1/100 に変更した。



○, △(白抜)は検出下限値以下

サーベイランス試験片収納容器(ステンレス)試料 分析要求に対する検出下限値達成度



チャンネルボックス(ジルカロイ)試料 分析要求に対する検出下限値達成度

図-6 各試料の分析要求に対する検出下限達成度

4.4 核種分析手法の適用結果

同一の分析対象試料を2分割して、3項で妥当性が確認された核種分析手法により、2 つのメーカのそれぞれの分析室において核種分析を実施した結果、①~③に示す事項が 確認されたものの、④~⑦に示す事項から、適用性は十分であると判断された。

- いずれの核種分析手法、いずれの分析試料においても、Sn-126、I-129、Ho-166m 及び Ir-192m2 の 4 核種は検出されなかった。
- ② C-14、Th-232 及び Pu-239+240 は、分析値の差が許容差を超えた。
- ③ いずれかの核種分析手法での分析結果が検出下限値以下であったが、もう一方の 核種分析手法でそれよりも高い放射能濃度で検出値が得られた Zr-93 と Tc-99 は、 検出値と検出下限値の差が許容差を超えた。
- ④ それぞれの核種分析手法において、核種毎の放射化学分析の各段階での不確かさに室間再現性の不確かさ25%を合成して分析結果を比較した結果、C-14、Zr-93、Tc-99、Th-232及びPu-239+240を除き、分析の不確かさ(*k*=2)の範囲で一致した。
- ⑤ C-14 については試料保管中のロス防止に留意し、Tc-99 については目標化学回収率の設定など、担体と分析対象核種の挙動一致の確実性を向上させる分析方法の運用に配慮することにより、分析精度向上が期待できる。
- ⑥ Zr-93、Th-232 及び Pu-239+240 は繰り返し分析や試料量の増量により、分析結果の信頼性向上が期待できる。
- ⑦ 分析感度が不足気味のI-129、Sn-126及びIr-192m2については、検討・開発された核種分析手法では、当該核種検出上の妨害因子(他のβ、γ核種等)が十分に除去されているので、試料量を増量することが可能であれば要求DLを満足する結果が得られると判断した。
- ⑧ Ho-166m は検出されなかったが、要求 DL を満足しており、分析感度は十分あると考えられる。
- 4.5 分析を実施する際の留意事項

今回の評価において、委員会で出されたコメントを踏まえ、今後、事業者が実際に行 う分析においては次の点に留意し、分析結果の妥当性について更に担保しておくことが 重要である。

- 放射化学分析を行う際には、分析結果の使用目的に応じて核種分析手法の選択、 試料量の増量等の検討を行うこと
- ② 試料間の汚染による異常値の発生が生じないように注意すること
 (例 セルを用いた前処理等では、ブランク試料を分析試料と同様にセルに入れて分析し、セル内環境からの汚染の影響を確認する。)
- ③ 同一試料の繰り返し分析等で、固体試料から複数の分析試料採取する際には採取 した試料間の均一性を確認すること
 - (例 固体状試料の一部を採取し、複数回の分析を実施する様な場合には、分取 したそれぞれの分析試料について、代表的なッ線放出核種の測定等により、分 析試料間に放射能濃度に偏りが生じていないことを確認する。)

- ④ 可能な範囲で、繰返し分析を行い、分析結果の妥当性を確認すること
- ⑤ 分析試料については放射化学分析に影響が出ないように適切に保管すること
 - (例 C-14は試料保管中、濃度低下などが発生する可能性があるため、前処理から分析まで短期間内に計画的に分析を行う。Nb-94の分析で金属溶解液試料の保管中に塩が析出した場合は、コロイド化して溶解液中に偏在が生じている可能性があるため、純水での希釈ではなく溶解液と同濃度の酸により溶解する。)
- ⑥ 担体などで回収率を直接求めることができない核種については、適切な回収率補 正を行うこと
 (例 適当な担体がない核種の分析については、予備実験や標準添加等により、

適切な回収率を評価する。また、Tc-99の担体として Re を用いる場合には化学 挙動の違いを考慮する。)

- ⑦ 分析時間によって検量線の傾きに影響が出る場合は、適切に補正すること (例 Cs の化学回収率などを誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)で測定す る場合の時間変動による影響を内標準物質で把握する。)
- 5. 結論

3項及び4項に示したとおり、余裕深度処分対象廃棄物の重要核種と想定される核種について、分析操作を実施する上での注意点や改善などの提案が挙げられたものの、2つのメーカが検討・開発した核種分析手法の妥当性及び適用性が確認された。

1. ‡	该種毎の核種分析手法の概要	·別紙-1
1	.1 方法案 1	·別紙-1
	1.1.1 Co-60	別紙-1
	1.1.2 Nb-94 ····	別紙-1
	1.1.3 Cs-137	別紙-1
	1.1.4 Sn-126	別紙-1
	1.1.5 Ho-166m	別紙-2
	1.1.6 Ir-192m	別紙-2
	1.1.7 Th-232	別紙-2
	1.1.8 Pu-238/239/240/242	別紙-2
	1.1.9 Am-241/243	別紙-3
	1.1.10 C-14 ·····	別紙-3
	1.1.11 Cl-36	別紙-3
	1.1.12 Ni-63	別紙-3
	1.1.13 Sr-90	別紙-4
	1.1.14 Zr-93	別紙 - 4
	1.1.15 Tc-99 ·····	別紙 - 4
	1.1.16 I-129 ·····	別紙-5
1.2	方法案 2	·別紙-5
	1.2.1 Co-60	別紙-5
	1.2.2 Nb-94 ·····	別紙-5
	1.2.3 Cs-137	別紙-5
	1.2.4 Sn-126	別紙-6
	1.2.5 Ho-166m	別紙-6
	1.2.6 Ir-192m	別紙-6
	1.2.7 Th-232	別紙-6
	1.2.7 Th-232 1.2.8 Pu-238/239/240/242	別紙-6 別紙-7
	1.2.7 Th-232 1.2.8 Pu-238/239/240/242 1.2.9 Am-241/243	別紙-6 別紙-7 別紙-7
	1.2.7 Th-232 1.2.8 Pu-238/239/240/242 1.2.9 Am-241/243 1.2.10 C-14	別紙-6 別紙-7 別紙-7 別紙-7
	1.2.7 Th-232 1.2.8 Pu-238/239/240/242 1.2.9 Am-241/243 1.2.10 C-14 1.2.11 Cl-36	別紙-6 別紙-7 別紙-7 別紙-7 別紙-8
	1.2.7 Th-232 1.2.8 Pu-238/239/240/242 1.2.9 Am-241/243 1.2.10 C-14 1.2.11 Cl-36 1.2.12 Ni-63	別紙-6 別紙-7 別紙-7 別紙-7 別紙-8 別紙-8
	1.2.7 Th-232 1.2.8 Pu-238/239/240/242 1.2.9 Am-241/243 1.2.10 C-14 1.2.11 Cl-36 1.2.12 Ni-63 1.2.13 Sr-90	別紙-6 別紙-7 別紙-7 別紙-7 別紙-8 別紙-8 別紙-8 別紙-8
	1.2.7 Th-232 1.2.8 Pu-238/239/240/242 1.2.9 Am-241/243 1.2.10 C-14 1.2.11 Cl-36 1.2.12 Ni-63 1.2.13 Sr-90 1.2.14 Zr-93	別紙-6 別紙-7 別紙千7 別紙千7 別紙千8 別紙千8 別紙千8 別紙千8 別紙千8
	1.2.7 Th-232 1.2.8 Pu-238/239/240/242 1.2.9 Am-241/243 1.2.10 C-14 1.2.11 Cl-36 1.2.12 Ni-63 1.2.13 Sr-90 1.2.14 Zr-93 1.2.15 Tc-99	別紙-6 別紙-7 別紙-7 別紙-7 別紙紙-8 別紙紙-8 別紙紙-8 別紙-9 別紙-9

1.3 方法案1

図 1.1-1 Co-60 の分析フロー	別紙-10
図 1.1-2 Nb-94 の分析フロー	別紙-11
図 1.1-3 Cs-137 の分析フロー	別紙-12
図 1.1-4 Sn-126 の分析フロー	別紙-13
図 1.1-5 Ho-166m の分析フロー	別紙-14
図 1.1-6 Ir-192m の分析フロー	別紙-15
図 1.1-7 Th-232 の分析フロー	別紙-16
図 1.1-8 Pu238/239/240/242 の分析フロー	別紙-17
図 1.1-9 Am-241/243 の分析フロー	別紙-18
図 1.1-10 C-14 の分析フロー	別紙-19
図 1.1-11 Cl-36 の分析フロー	別紙-20
図 1.1-12 Ni-63 の分析フロー	別紙-21
図 1.1-13 Sr-90 の分析フロー	別紙-22
図 1.1-14 Zr-93 の分析フロー	別紙-23
図 1.1-15 Tc-99 の分析フロー	別紙-24
図 1.1-16 I-129 の分析フロー	別紙-25

1.4 方法案 2

図 1.2-1 Co-60 の分析フロー	別紙-26
図 1.2-2 Nb-94 の分析フロー	別紙-27
図 1.2-3 Cs-137 の分析フロー	別紙-28
図 1.2-4 Sn-126 の分析フロー	別紙-29
図 1.2-5 Ho-166m の分析フロー	別紙-30
図 1.2-6 Ir-192m の分析フロー	別紙-31
図 1.2-7 Th-232 の分析フロー	別紙-32
図 1.2-8 Pu238/239/240/242 の分析フロー	別紙-33
図 1.2-9 Am-241/243 の分析フロー	別紙-34
図 1.2-10 C-14 の分析フロー	別紙-35
図 1.2-11 Cl-36 の分析フロー	別紙-36
図 1.2-12 Ni-63 の分析フロー	別紙-37
図 1.2-13 Sr-90 の分析フロー	別紙-38
図 1.2-14 Zr-93 の分析フロー	別紙-39
図 1.2-15 Tc-99 の分析フロー	別紙-40
図 1.2-16 I-129 の分析フロー	別紙-41

- 1. 核種毎の核種分析手法の概要
 - 1.1 方法案1
 - 1.1.1 Co-60 (分析フロー:図1.1-1)

Co-60 は炉内構造物不純物の放射化 Co-59(n, γ)反応で生成する半減期 5.27 年を持つ β 、 γ 放射体である。

Co-60の測定は通常のGe半導体検出器によるγ線測定法と同様である。同核種濃度は 比較的高いレベルにあり、そのγ線エネルギーが高いことも相まって容易に検出・定量さ れることから溶解試料を分取・希釈してγ線スペクトル測定し、放射能濃度を評価する手 法をとる。測定に際してはDead Time が5%を超えない程度に希釈して測定する。溶解 液を分取・希釈して測定するため化学回収率は100%とする。

1.1.2 Nb-94 (分析フロー:図1.1-2)

Nb-94 は炉内構造物不純物の放射化 Nb-93(n, γ)反応で生成する半減期 2.03×10⁴ 年を 持つβ、γ放射体である。

Nb は第二遷移金属系列金属に属し、Co、Ni 等とはその化学的性質は異なり非常に溶解 度が小さいことを利用し、加水分解により生成する沈殿を分離することにより主たるγ線 放出核種を分離、γ線測定を行うものである。

なお、分離の目安は 702.6 keV 及び 871.1 keV の 2 本のγ線ピークが見える事とし、さらに妨害γ核種の DF が必要な場合は 4-メチル-2-ペンタノン(メチルイソブチルケトン -MIBK-)にて溶媒抽出分離を行う。

1.1.3 Cs-137 (分析フロー:図1.1-3)

Cs-137 は炉内構造材に含まれる不純物 U の核分裂生成物として生成し半減期 30 年を 持つβ、γ 放射体である。

本分析方法では前処理・分離方法を他の核種とできるだけ共通にするため、Ni-63(除 イオン交換法: Co-60の除去)、TRU 核種(水酸化第二鉄沈殿法)等の分離を行うととも に、主たるy線放出核種を分離した溶液についてy線測定を行うものである。

また、さらに妨害γ核種の除去が必要な場合はリンモリブデン酸アンモニウム(AMP)を 用いた Cs の吸着分離による精製を行う。

1.1.4 Sn-126 (分析フロー:図1.1-4)

Sn-126 は炉内構造材に含まれる不純物 U の核分裂生成物により生成する半減期 1×10⁵ 年を有する β、 γ 放射体である。86.9 keV と 87.6 keV の γ 線を放出するが、 γ 線の直接 測定ではなく誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)測定法を適用する。

ICP-MSの測定では、まず同重体や共存核種を除くことを目的にふっ化水素酸及び塩化 水素酸を用いた陰イオン交換法を組合せて分離精製を行う。 1.1.5 Ho-166m (分析フロー:図 1.1-5)

Ho-166m は炉内構造物不純物の放射化 Ho-165(n, γ)反応で生成する半減期 1.2×10³ 年 を持つ β 、 γ 放射体である。Ho-166m は 184 keV や 810 keV 等の放出 γ 線を測定して定量する。

Ho 等一部の希土類元素は本分析方法では Am と同様の挙動をするため、前処理・分離 方法を他の核種とできるだけ共通にし、2種の陰イオン交換を組み合わせて Ni-63、Pu、 Th 等の分離・精製を行いつつ、主たるγ線放出核種を分離した溶液について Ge 半導体検 出器を用いてγ線測定を行う。

1.1.6 Ir-192m2 (分析フロー:図 1.1-6)

Ir-192m2 は炉内構造物不純物の放射化 Ir-191(n, γ)反応で生成する半減期 241 年を持 つγ放射体である。Ir-192m2 は 155.2 keV のγ線を放出するがその放出率は 0.097 %と 小さく Ir-192m2 を通常のγ線測定法と同様に実施することは難しいため

 $[\text{Ir-192m2}(\text{T}_{1/2}=241 \text{ y}) \rightarrow \text{Ir-192}(\text{T}_{1/2}=73.8 \text{ d})]$

により永続平衡として存在する Ir-192のγ線(308.5 keV,468 keV 等)を測定する。

Ir の前処理・分離方法は妨害核種を除くことを目的として陰イオン交換法を用いた。また、原子価による樹脂への配分係数の違いを用いて溶離して、主たる y 線放出核種を分離した溶液について Ge 半導体検出器を用いて y 線測定を行う。

1.1.7 Th-232 (分析フロー:図1.1-7)

Th-232は天然に存在し、炉内構造材に不純物として含まれ、半減期は1.40×10¹⁰ 年を 有し、α線・γ線・X線を放出する。

α線の測定により定量されるが、崩壊系列を成す核種を分離する必要がある。 溶解液を直接、誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)により測定することもできるが、 装置の汚染等を防ぐため陰イオン交換を組み合わせた手法により分離精製を行う。

α線の測定では子孫核種の影響が大きく、分離操作が必要となるため、ICP-MS による 測定を採用する。

1.1.8 Pu-238/239/240/242 (分析フロー:図1.1-8)

今回の分析対象となるのは

Pu-238(T_{1/2}=87.7 y), Pu-239(T_{1/2}= 2.41×10^4 y),

Pu-240($T_{1/2}=6.57 \times 10^{3}$ y),

Pu-242($T_{1/2}$ =3.75×10⁵y)である。

Puの分離には原子価による陰イオン交換樹脂への配分係数の違いによる方法を用い、 強塩酸系でPu(IV)の樹脂への吸着、還元剤によりPu(Ⅲ)にして脱離し精製する。

Puの測定にはフッ化サマリウム共沈法にてα線スペクトル測定用サンプルを作成する。

計測器は表面障壁型α線スペクトロメトリを用いるがそれぞれの核種の主なα線エネルギーは、Pu-238:5.5 MeV、Pu-239:5.16 MeV、Pu-240:5.17 MeV、Pu-242:4.90 MeV となっており、Pu-239 と Pu-240 はα線エネルギーが接近しているため両者を加えた放射 能で評価する。

1.1.9 Am-241/243 (分析フロー:図1.1-9)

Am は炉内構造材に含まれる不純物 U の中性子多重捕獲反応で生成する。今回の分析対象となるのは Am-241(T_{1/2}=432.2 y)、Am-243(T_{1/2}=7370 y)である。

Amの分離には陰イオン交換樹脂への配分係数の違いによる方法を用い、塩酸系及び硝酸系の陰イオン交換の組合わせにより分離・精製する。

Am の測定にはフッ化サマリウム共沈法にてα線スペクトル測定用サンプルを作成する。 計測器は表面障壁型α線スペクトロメトリを用いるがそれぞれの核種の主なα線エネルギ ーはAm-241:5.5 MeV、Am-243:5.28 MeV である。

1.1.10 C-14 (分析フロー:図 1.1-10)

化学的には炭酸イオン等として存在すると考えられることから酸による分解によって発 生する炭酸ガスを回収し精製する。

精製回収した炭素吸収剤はシンチレーターと混合し、液体シンチレーションカウンタ (LSC)にて放射能測定を行う。

1.1.11 Cl-36 (分析フロー:図 1.1-11)

Cl-36 は半減期 3.01×10⁵ 年を持つ β 放射体である。120 keV、708.6 keV、1142.1 keV の β 線を放出し、放出率が一番大きな 708.6 keV(98.1 %)の β 線を測定するが、主たる β 線源である Co-60(Sb-125)等に妨害され化学分離が必要となる。

Clの前処理・分離方法は上記妨害核種を除くことを目的として炭酸塩により粗分離を 行った後に塩化銀として回収しβ線を低バックグラウンド型β線スペクトロメータで測定 する。

ここで Co-60(Sb-125)等による妨害が見られる場合は塩化銀沈殿をアルカリ性でAgを還 元分離し、再度塩化銀沈殿としてβ線測定を行う。

1.1.12 Ni-63 (分析フロー:図 1.1-12)

Niの代表的な化学分離法として古くからジメチルグリオキシム(DMG)による沈殿分離法があり、本法においても採用する。

分析手順として前処理には塩化水素酸系の陰イオン交換樹脂による分離や水酸化第二 鉄共沈より Co-60 等の主たる放射性元素を取り除き、Ni-63 では液体シンチレーション計 測法を考慮して、Ni-DMG 錯体をキシレンにて溶媒抽出分離する方法を用いる。β線の測 定には液体シンチレーションカウンタ(LSC)を用いた効率トレーサ法にて放射能測定を 行う。

1.1.13 Sr-90 (分析フロー:図 1.1-13)

Sr-90 自身は最大エネルギー546 keV の β 線を放出するが β 壊変により半減期 64 時間の 最大エネルギーが 2.28 MeV の Y-90 が生成し永続平衡となる。

Sr-90 は純 β 放射体であることから β 線測定で定量を行うに当たり Sr 元素の単離が必要 となる。

本手法では2段階の陰イオン交換処理を行った溶液に対して発煙硝酸法による分離を行 い、その後、炭酸塩沈殿でSrを回収している。

測定に当たっては低バックグラウンド型β線スペクトロメータを用い夾雑物の有無を確認し、ミルキング手法により永続平衡で生成した子孫核種である Y-90 の分離を行い、そのβ線スペクトル測定結果より Sr-90 放射能濃度を評価する。

1.1.14 Zr-93 (分析フロー:図 1.1-14)

Zr-93は半減期 1.53×10⁶ 年を有する β 、 γ 放射体である。 γ 線は β ・崩壊により生成し、 **Zr-93** と永続平衡となる Nb-93m(T_{1/2}=16.1 y)の低エネルギーの γ 線(30.8 keV)であるが γ 線放出率が非常に小さく(0.0006 %)、低エネルギーであることから γ 線を直接測定して 定量することは非常に難しい。一方 β 線は最大エネルギー60.6 keV(97.5 %)及び 91.4 keV(2.5 %)を放出するが低エネルギーであるため、他の β 線放出核種との分離が重要 となる。

上記のようにβ線、γ線の直接測定することが難しいことから本法では誘導結合プラズ マ質量分析装置(ICP-MS)測定法を適用する。

ICP-MSの測定では、まず同重体である天然同位体元素のNb-93を除く必要があるためフッ化水素酸を用いた陰イオン交換法によりNbを除去するとともに共存する核種の多くを除去する。

1.1.15 Tc-99 (分析フロー:図 1.1-15)

Tc-99 は半減期 2.11×10⁵ 年を有する純 β 放射体であり、最大エネルギー294 keV の β 線を放出する。

Tc は第二遷移系列元素に属し、その化学的性質は Re に似ているが天然中には安定同位体が存在しない。

Tc-99 は揮発性を有する元素であるため分離精製では、蒸発乾固などの操作は極力避け、 第一段として陰イオン交換法による方法を、さらにリン酸 n-トリブチル(**TBP**)及び 2-ブ タノンの 2 段階溶媒抽出による分離法を用いている。 分離した試料はテトラフェニルア ルソニウムクロリド(**TPAC**)沈殿として低バックグラウンド型β線スペクトロメータにて β線を測定する。 1.1.16 I-129 (分析フロー:図 1.1-16)

I-129 は半減期 1.57×10⁷ 年を有する β 、 γ 放射体である。放出放射線は β 線、X 線、 γ 線があるが本法では最大エネルギー154 keV の β 線を低バックブラウンド β 線スペクト ロメータを用いて測定する。

I は溶液の電位により酸性で揮発しやすい元素である。炭酸塩沈殿法により妨害核種を 粗取りしたのち、キシレン抽出法によりヨウ素を分離、ヨウ化パラジウム沈殿として回収 し、β線を測定する。

1.2 方法案2

1.2.1 Co-60 (分析フロー:図1.2-1)

Co-60 は、半減期 5.27 年で崩壊し、1173 keV と 1332 keV の γ 線をそれぞれ 100 %の 放出率で放出する。同核種は L2 廃棄物の key 核種とされている核種であり、ゲルマニウ ム半導体検出器で容易に測定することが可能である。

ここでは、純β線放出核種の分析前処理に使用した残液のγ線スペクトル測定により、 Co-60のγ線を測定し、同液中のコバルト担体量を分析することにより、化学回収率で放 射能濃度を補正する。

1.2.2 Nb-94 (分析フロー:図1.2-2)

Nb-94 は、半減期 2.03×10⁴ 年で 702.6 keV 及び 871.1 keV の γ 線を放出するため、γ 線スペクトロメトリ上で Nb-94 の γ 線の計測上妨害となる高エネルギー γ 線を放出する 核種などを前処理で除去する。

本核種分析手法は試料にニオブ担体を加えた後、試料を硫酸で溶解し、アンモニア水で 五酸化ニオブの水和物沈殿として回収することでニオブを精製する。

沈殿として回収したニオブは、再度フッ化水素酸で溶解し、Nb-テトラフェニルアルソ ニウム塩として沈殿回収し、Ge 半導体検出器測定を行い Nb-94 を定量する。

1.2.3 Cs-137 (分析フロー:図1.2-3)

Cs-137 は半減期 30.1 年で崩壊し、662 keV のγ線を 85.1 %の放出率で放出する。同 核種は、ゲルマニウム半導体検出器で容易に測定することが可能であるため同検出器によ り測定する。

セシウムは、FP 核種を回収した残液から、鉄共沈法で Co-60 等の主要 y 線放出核種を 沈殿分離操作などにより除去した後に、さらにリンモリブデン酸沈殿法により Cs-137 を 精製して、ゲルマニウム半導体検出器を用いた y 線スペクトロメトリにより Cs-137 が放 出する y 線を測定する。 1.2.4 Sn-126 (分析フロー:図 1.2-4)

Sn-126は、半減期 1×10⁵年で崩壊し 86.9 keV と 87.6 keV の γ 線を放出し、この 2 本の γ 線はゲルマニウム半導体検出器の分解能では分別することが出来ない。

その為、Sn-126の定量には、2本のγ線の放出率の合計値である 45.9 %の放出率を用 いて評価する。

スズは、試料溶解液からよう化メチルスズとして、スズをベンゼン中に抽出することで 精製する。

Sn-126は、溶媒抽出により精製した後、低エネルギー用ゲルマニウム半導体検出器により Sn-126のγ線を測定する。

1.2.5 Ho-166m (分析フロー:図 1.2-5)

Ho-166m は半減期 1200 年で崩壊し、複数のエネルギーのγ線を放出する。特に放出率 が高いγ線エネルギーは、184 keV (放出率 72.6 %)、810 keV (放出率 58.1 %)、 711.7 keV (放出率 55.3 %) であり、何れもゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペク トロメトリで測定可能である。

希土類元素であるホルミウムは、溶解液から、一度、pH 調整により、金属元素と共に 沈殿として回収し、濃フッ化水素酸溶液中で、フッ化物沈殿として主要γ線放出核種を分 離除去した後に、ゲルマニウム半導体検出器を用いたγ線スペクトロメトリにより Ho-166m が放出するγ線を測定する。

1.2.6 Ir-192m2 (分析フロー:図1.2-6)

Ir-192m2 は、半減期 241 年で核異性体転移崩壊するが、崩壊の際に放出される 155 keV のγ線は、極めて放出率が低く 0.097 %である。その為、その娘核種である Ir-192 (半減期:73.8 日)が放出するγ線のうち、比較的放出率が高い 468.1 keV (放出率 47.8 %)、308.5 keV (放出率 30.0 %)、及び 296 keV (放出率 28.7 %)をゲルマニウム 半導体検出器によるγ線スペクトロメトリにより測定する。

白金族元素であるイリジウムは、溶解液から、リン酸塩として Zr を除去し(ジルカロ イ試料)、還元環境でイリジウムの価数を調整した後、鉄と共に回収し、TBP 抽出により 精製した。更に Co-60 等の主要γ線放出核種を硫化物として除去し、ゲルマニウム半導体 検出器を用いたγ線スペクトロメトリにより Ir-192 が放出するγ線を測定する。

1.2.7 Th-232 (分析フロー:図 1.2-7)

Th-232 は、半減期 1.4×10¹⁰ 年で崩壊し、トリウム壊変系列を形成する基点となる核種 である。

Th-232 は、約4 MeV のα線を放出するが、長半減期核種であり比放射能が極めて低い ことから、m/z=230 以上がバックグランドも低く、比較的高感度な測定が可能な誘導結合 プラズマ質量分析装置(ICP-MS)により測定した。アクチニド元素であるトリウムは、硝酸 とフッ化水素酸の混酸による溶解では揮発する事は無いことから、溶解液を適切に希釈し た後、ICP-MS で質量電荷比(m/z) 232 を測定する。

1.2.8 Pu-238/239/240/242(分析フロー:図1.2-8)

プルトニウム同位体のうち、Pu-238 は 5.4 MeV、Pu-239 は 5.1 MeV、Pu-242 は 4.9 MeV の α 線ピークを表面障壁型シリコン半導体検出器による α 線スペクトロメトリにより測定 する。 (Pu-240 は、5.1 MeV の α 線を放出し、表面障壁型シリコン半導体検出器では、 Pu-239 が放出する α 線とエネルギー弁別ができないことから、Pu-239 と Pu-240 は合計 放射能濃度として測定する。)

アクチニド元素であるプルトニウムは、硝酸とフッ化水素酸の混酸による溶解では揮発 する事は無いことから、溶解液のpH 調整により一度水酸化物沈殿として回収した後、硝 酸溶解し、抽出クロマトグラフィー用樹脂に通水することにより分離する。 (なお、ジル カロイ試料は、試料中のジルコニウムが高濃度であることを考慮し、抽出クロマトグラフ ィー用樹脂通水中にジルコニウムを除去する操作を追加しプルトニウムを精製する。)

抽出クロマトグラフィー用樹脂に通水することにより精製したプルトニウムを含むフ ラクションは、電着操作によりステンレス鋼板に電着し、α線スペクトロメトリにより各 プルトニウム同位体が放出するα線を測定する。

1.2.9 Am-241/243 (分析フロー:図1.2-9)

アメリシウム同位体のうち、Am-241 は 5.5 MeV、Am-243 は 5.3 MeV の α 線ピークを 表面障壁型シリコン半導体検出器による α 線スペクトロメトリにより測定する。

アクチニド元素であるアメリシウムは、硝酸とフッ化水素酸の混酸による溶解では揮発 する事は無いことから、溶解液のpH 調整により一度水酸化物沈殿として回収した後、硝 酸溶解し、抽出クロマトグラフィー用樹脂に通水することにより分離した。 (なお、ジル カロイ試料は、試料中のジルコニウムが高濃度であることを考慮し、抽出クロマトグラフ ィー用樹脂通水中にジルコニウムを除去する操作を追加しアメリシウムを精製する。) 抽出クロマトグラフィー用樹脂に通水することにより精製したアメリシウムを含むフラク ションは、電着操作によりステンレス鋼板に電着し、α線スペクトロメトリにより各アメ リシウム同位体が放出するα線を測定する。

1.2.10 C-14 (分析フロー:図 1.2-10)

C-14 は、半減期 5.73×10³ 年で 156 keV の、比較的エネルギーが低いβ線のみを放出 する核種であることから、その測定には液体シンチレーションカウンタを用いた外部標準 線源チャンネル比法により測定する。

試料は、溶解時に発生するガスをアルカリトラップに回収している。溶解操作において

発生する CO₂は、このアルカリトラップに回収されていると考えられることから、C-14 はアルカリトラップ液から湿式酸化法により回収する。また、溶解操作時の溶解液中 C-14 については乾式酸化法により回収する。

液体シンチレーションカウンタは、C-14 以外の β 線及び γ 線に対する応答性も持ち合わ せていることから、前処理操作により C-14 以外の放射性核種が除去されていることを確 認した上で C-14 の β 線を測定する。

1.2.11 Cl-36 (分析フロー:図 1.2-11)

Cl-36 は、半減期 3.01×10⁵ 年で崩壊し最大エネルギー709 keV の β線を 98.1 %の放 出率で放出する。Cl-36 が放出する β線のエネルギーは比較的高いことから、同分析では 発電所における放射線測定器の配備状況を勘案して液体シンチレーションカウンタにより Cl-36 の β線を測定する手法を採用する。

試料の Cl-36 は、溶解液とオフガスを回収したアルカリトラップをそれぞれ分析する。 溶解液中の Cl-36 は蒸留、又は沈殿分離法により Cl-36 を精製した後、回収した Cl-36 を 含む AgCl 沈殿をβ線スペクトロメータにより純β核種の除去状況を確認後,液体シンチレ ーションカウンタにより Cl-36 が放出するβ線を測定する。

1.2.12 Ni-63 (分析フロー:図 1.2-12)

Ni-63 は、半減期 100 年で崩壊し、最大 66.9 keV の β 線を放出する。 溶解した試料か ら、Ni-63 を含むニッケルを、ジメチルグリオキシムをキレート剤としてキシレンに溶媒 抽出することにより、試料マトリクスから抽出し、液体シンチレーションカウンタにより、 Ni-63 が放出する β 線を測定する。(ETM 法)

また、液体シンチレーションカウンタは、Ni-63 以外の核種が放出するβ線やγ線に対 しても応答性があることから、この前処理においてNi-63 が放出するβ線を測定する上で、 妨害となる因子が除去されていることを確認した後にNi-63 が放出するβ線を測定する。

1.2.13 Sr-90 (分析フロー:図 1.2-13)

Sr-90 は半減期 28.8 年で崩壊し、半減期 64.1 時間の Y-90 となる。両核種は放射平衡 関係にあり、Sr-90 が放出する β 線の最大エネルギーは 546 keV、Y-90 が放出する β 線の 最大エネルギーは 2.28 MeV であり、何れも純 β 核種である。

アルカリ土類金属であるストロンチウムは、本分析の様な溶解操作では揮発する事はない。したがって、同分析では揮散回収法で得られた前処理液から炭酸塩として沈殿分離操 作によりストロンチウムを精製し、Y-90 が放出するβ線を測定する上での妨害因子を排除 した後に、Sr-90 の娘核種である Y-90 との放射平衡成立を待ち、娘核種である Y-90 を分 離回収して、Y-90 が放出するβ線をβ線スペクトロメータ(ピコβ)で測定する。 1.2.14 Zr-93 (分析フロー:図 1.2-14)

Zr-93 は半減期 1.53×10⁶ 年で崩壊し、最大エネルギー91.4 keV の β 線を放出する。 **Zr**-93 は、核分裂及び ⁹²Zr(n, γ)⁹³Zr 反応で生成するが、原子力施設では、**Zr**-93 以外に もジルコニウムの放射性同位体が生成する。**Zr**-93 の崩壊に伴い放出される放射線は、最 大エネルギー91.4 keV の β 線以外に低エネルギーの γ 線(娘核種の **Zr**-93m による)のみ であり、複数のジルコニウム放射性同位体の中から **Zr**-93 が放出する放射線を測定するこ とは困難である。

チタン族に属する遷移金属元素であるジルコニウムは、硝フッ酸による溶解処理では揮発しない。なお、試料溶解液から Zr-93 の崩壊に伴い生成する Nb-93 (安定同位元素)が 測定上の妨害因子(同重体)となることから、イオン交換樹脂を通して精製し、誘導結合 プラズマ質量分析装置(ICP-MS)により質量電荷比(m/z)93を測定する。

1.2.15 Tc-99 (分析フロー:図 1.2-15)

Tc-99は、半減期 2.11×10⁵年で崩壊し、最大エネルギー294 keV の β 線を放出率 100 % で放出する。マンガン族に属する遷移金属元素であるテクネチウムは、硝フッ酸による溶 解処理では揮発しない。

安定同位体が存在しない Tc-99 は、レニウムを担体として用い、揮散回収法により蒸留 することでテクネチウムを回収し、沈殿分離などの精製プロセスを経て、Tc-99 が放出す る β 線計測上の妨害因子(主として共存 γ 線放出核種)との分離を実施した後、テトラフ ェニルアルソニウムクロリド(TPAC)による沈殿として回収し、Tc-99 が放出する β 線を β 線スペクトロメータ(ピコ β)で測定する。

1.2.16 I-129 (分析フロー:図 1.2-16)

I-129は、半減期 1.57×107 年で崩壊し 154 keV の β 線と 39.6 keV の γ 線を放出する。 ハロゲン族であるよう素は、硝フッ酸による溶解処理で揮発した場合、溶解プロセスの オフガスを通気しているアルカリトラップに捕集される。また、溶解時にオフガスとして 移行しないよう素の一部は、溶解液に残留する。その為、I-129 は試料溶解液とオフガス (アルカリトラップ) それぞれを分析対象とする。

I-129の分離精製では、試料中のI-129を含むよう素を、前述の揮散回収法の蒸留回収、 及びキシレンによる溶媒抽出操作で精製する。最終的によう化銀沈殿として回収し、I-129 の β 線測定上の妨害因子を排除した後、ガスフローカウンタによりI-129が放出する β 線 を測定する。



図 1.1-1 Co-60 の分析フロー (方法案 1)



図 1.1-2 Nb-94 の分析フロー(方法案 1)



図 1.1-3 Cs-137 の分析フロー(方法案 1)



図 1.1-4 Sn-126 の分析フロー(方法案 1)



図 1.1-5 Ho-166m の分析フロー(方法案 1)



図 1.1-6 Ir-192m2 の分析フロー(方法案 1)



図 1.1-7 Th-232 の分析フロー(方法案 1)



図 1.1-8 Pu-238/239/240/242 の分析フロー(方法案 1)



図 1.1-9 Am-241/243 の分析フロー(方法案 1)



図 1.1-10 C-14 の分析フロー(方法案 1)



図 1.1-11 Cl-36 の分析フロー (方法案 1)



図 1.1-12 Ni-63 の分析フロー(方法案 1)



図 1.1-13 Sr-90 の分析フロー(方法案 1)



図 1.1-14 Zr-93 の分析フロー(方法案 1)



図 1.1-15 Tc-99 の分析フロー(方法案 1)



図 1.1-16 I-129 の分析フロー(方法案 1)



図 1.2-1 Co-60 の分析フロー (方法案 2)

別紙-26



図 1.2-2 Nb-94 の分析フロー (方法案 2)



図 1.2-3 Cs-137 の分析フロー(方法案 2)



図 1.2-4 Sn-126 の分析フロー(方法案 2)



図 1.2-5 Ho-166m の分析フロー (方法案 2)



図 1.2-6 Ir-192m2 の分析フロー(方法案 2)



*1) UTEVA/TRU Resin: Eichrom Technologies社製 抽出クロマトグラフィー用レジン

 $*2)\ CMPO: octylphenyl-N, N-di-isobutylcarbamoylmethylphosphine oxide$

図 1.2-7 Th-232 の分析フロー(方法案 2)



*1) UTEVA/TRU Resin: Eichrom Technologies社製 抽出クロマトグラフィー用レジン

 $*2) \ CMPO: octylphenyl-N, N-di-isobutylcarbamoylmethylphosphine oxide$

図 1.2-8 Pu-238/239/240/242 の分析フロー(方法案 2)



*1) UTEVA/TRU Resin: Eichrom Technologies社製 抽出クロマトグラフィー用レジン

 $*2)\ CMPO: octylphenyl-N, N-di-isobutylcarbamoylmethylphosphine oxide$

図 1.2-9 Am-241/243 の分析フロー (方法案 2)

別紙-34



図 1.2-10 C-14 の分析フロー(方法案 2)



図 1.2-11 Cl-36 の分析フロー(方法案 2)



図 1.2-12 Ni-63 の分析フロー(方法案 2)



図 1.2-13 Sr-90 の分析フロー (方法案 2)



図 1.2-14 Zr-93 の分析フロー (方法案 2)



図 1.2-15 Tc-99 の分析フロー(方法案 2)



図 1.2-16 I-129 の分析フロー(方法案 2)