

試験研究用原子炉の解体により発生する 廃棄物の放射能濃度評価方法の検討

Study on the Evaluation Method to Determine the Radioactivity Concentration
in Radioactive Waste Generated from the Dismantling of Research Reactors

村上 昌史 星野 譲 中谷 隆良 菅谷 敏克
福村 信男 三田 敏男 坂井 章浩

Masashi MURAKAMI, Yuzuru HOSHINO, Takayoshi NAKATANI, Toshikatsu SUGAYA
Nobuo FUKUMURA, Toshio SANDA and Akihiro SAKAI

核燃料・バックエンド研究開発部門
埋設事業センター

Radioactive Wastes Disposal Project Center
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development

June 2019

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<https://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Institutional Repository Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2019

試験研究用原子炉の解体により発生する廃棄物の放射能濃度評価方法の検討

日本原子力研究開発機構
核燃料・バックエンド研究開発部門 埋設事業センター

村上 昌史、星野 謙、中谷 隆良、菅谷 敏克、福村 信男*¹、三田 敏男*¹、坂井 章浩

(2019年3月22日 受理)

試験研究用原子炉施設の解体に伴って発生する廃棄物に対する共通的な放射能濃度評価方法の構築に向けて、立教大学の原子力研究所にある TRIGA-II 型炉を対象として、アルミニウム合金、炭素鋼、遮蔽コンクリート及び黒鉛構造材中の放射化生成核種の放射能を、放射能分析及び放射化計算により評価した。また、構造材組成の分析を放射化計算に使用するために実施した。構造材サンプルはコアボーリングにより採取し、放射化学分析及び構造材組成分析の両方に使用した。放射能分析により放射能を評価した核種はアルミニウム合金について ^3H 、 ^{60}Co 、 ^{63}Ni 、炭素鋼について ^3H 、 ^{60}Co 、 ^{63}Ni 、 ^{152}Eu 、遮蔽コンクリートについて ^3H 、 ^{60}Co 、 ^{152}Eu 、黒鉛について ^3H 、 ^{14}C 、 ^{60}Co 、 ^{63}Ni 、 ^{152}Eu であった。中性子束分布の計算は2次元離散座標計算コード DORT を使用し、構造材中の誘導放射能は ORIGEN-ARP コードを用いて計算した。これらの計算には2次元円柱座標モデルを用いた。アルミニウム合金、炭素鋼及び遮蔽コンクリートでは、構造材組成分析値を利用することにより、概ね保守的かつ良い精度で放射能濃度を評価できる見通しが得られた。一方で黒鉛では、構造材組成分析では全ての元素が定量下限値未満であったにも拘らず、全測定核種の放射能分析値は得られ、従って定量下限値を使用した放射化計算結果は概ね著しい過大評価となった。

本報告書は、公益財団法人原子力バックエンド推進センターが国立研究開発法人日本原子力研究開発機構との契約により実施した業務成果に基づくものである。

旧本部事務所：〒319-1112 茨城県那珂郡東海村村松 4-49

*¹ 公益財団法人原子力バックエンド推進センター

**Study on the Evaluation Method to Determine the Radioactivity Concentration
in Radioactive Waste Generated from the Dismantling of Research Reactors**

Masashi MURAKAMI, Yuzuru HOSHINO, Takayoshi NAKATANI, Toshikatsu SUGAYA,
Nobuo FUKUMURA*¹, Toshio SANDA*¹ and Akihiro SAKAI

Radioactive Wastes Disposal Project Center,
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development,
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received March 22, 2019)

Toward the establishment of a common approach to determine the radioactivity concentrations in dismantling wastes arising from research reactors, radionuclide concentrations in the reactor structure materials of aluminum, carbon steel, shield concrete, and graphite of TRIGA Mark II reactor at Rikkyo University, Japan, were evaluated with both radioactivity analysis and theoretical calculation. The material composition analysis were also performed to use their results for the theoretical activation calculation. The materials were collected by use of a core drilling technique and the samples were used for both radioactivity analysis and material composition analysis. The measured nuclides by the radioactivity analysis were ^3H , ^{60}Co , and ^{63}Ni in aluminum, ^3H , ^{60}Co , ^{63}Ni , and ^{152}Eu in carbon steel, ^3H , ^{60}Co , and ^{152}Eu in shield concrete, and ^3H , ^{14}C , ^{60}Co , ^{63}Ni , and ^{152}Eu in graphite. Neutron-flux distributions were computed with two-dimensional discrete ordinate code DORT, while neutron-induced activities in the materials were deduced with ORIGEN-ARP code. The simplified two-dimensional models depicted in cylindrical geometry were used in the calculation. Using the results of material composition analysis, radioactivity concentrations were conservatively predicted with good accuracy for the most of nuclides in aluminum, carbon steel, and shield concrete. As for graphite, radioactivity concentrations were experimentally determined for all the measured nuclides, though none of their origin elements were observed in the material composition analysis.

Keywords: Radiological Characterization, Research Reactor, Dismantling Waste, TRIGA Mark II Reactor, Material Composition Analysis, Radioactivity Analysis, Activation Calculation

This report is based on the study performed by Radwaste and Decommissioning Center under contract with Japan Atomic Energy Agency.

*¹ Radwaste and Decommissioning Center

目 次

1. はじめに	1
1.1 背景と目的.....	1
1.2 検討手順及び本報告書の構成	2
2. 原子炉構造材のサンプリングの検討と実施.....	3
2.1 評価対象とする構造材の検討	3
2.2 検討対象とする研究炉の選定と構造	3
2.3 構造材サンプリング位置の選定とサンプルの採取.....	4
2.3.1 予備的な放射化計算による構造材サンプリング位置の検討	4
2.3.2 構造材サンプリングの実施	5
3. 構造材サンプルの構造材組成分析	8
3.1 分析用サンプルの調製と密度測定	8
3.2 構造材組成分析手順.....	8
3.2.1 アルミニウム合金の構造材組成分析手順.....	9
3.2.2 炭素鋼の構造材組成分析手順	10
3.2.3 遮蔽コンクリートの構造材組成分析手順.....	10
3.2.4 黒鉛の構造材組成分析手順	11
3.3 構造材組成分析結果.....	12
3.3.1 アルミニウム合金の構造材組成分析結果.....	12
3.3.2 炭素鋼の構造材組成分析結果	13
3.3.3 遮蔽コンクリートの構造材組成分析結果.....	13
3.3.4 黒鉛の構造材組成分析結果	14
3.4 構造材組成分析のまとめ	15
4. 構造材サンプルの放射能分析	22
4.1 放射能分析手順.....	22
4.1.1 ^3H の分析手順.....	22
4.1.2 ^{14}C の分析手順	23
4.1.3 ^{60}Co 、 ^{152}Eu の分析手順	23
4.1.4 ^{63}Ni の分析手順	24
4.2 放射能分析結果.....	25
4.3 放射能分析のまとめ	25
5. 放射化計算	28
5.1 計算手順	28
5.1.1 立教大学炉のモデル化	28
5.1.2 巨視的実効断面積データの作成	28
5.1.3 中性子束の計算.....	29
5.1.4 放射能濃度の計算.....	29

5.2 計算結果	30
5.2.1 中性子束の計算結果	30
5.2.2 放射能濃度の計算結果	31
5.3 放射化計算のまとめ	32
6. まとめ	46
謝辞	47
参考文献	48

Contents

1. Introduction	1
1.1 Background and Purpose.....	1
1.2 Evaluation Procedure of This Work and Structure of This Report	2
2. Discussion and Implementation of Material Sampling from Research Reactor	3
2.1 Selection of Material Types.....	3
2.2 Selection of Research Reactor and Structure of Selected Reactor.....	3
2.3 Selection of Sampling Position and Sampling Campaign	4
2.3.1 Selection of Sampling Position with Preliminary Activation Calculation	4
2.3.2 Sampling Campaign	5
3. Material Composition Analysis of Sampled Materials	8
3.1 Preparation of Samples for Analysis and Measurement of Density	8
3.2 Procedure of Material Composition Analysis.....	8
3.2.1 Analytical Procedure for Aluminum.....	9
3.2.2 Analytical Procedure for Carbon Steel.....	10
3.2.3 Analytical Procedure for Shield Concrete	10
3.2.4 Analytical Procedure for Graphite.....	11
3.3 Results of Material Composition Analysis	12
3.3.1 Analytical Results on Aluminum.....	12
3.3.2 Analytical Results on Carbon Steel.....	13
3.3.3 Analytical Results on Shield Concrete	13
3.3.4 Analytical Results on Graphite.....	14
3.4 Short Summary on Material Composition Analysis	15
4. Radioactivity Analysis of Sampled Materials	22
4.1 Procedure of Radioactivity Analysis	22
4.1.1 Analytical Procedure for ^3H	22
4.1.2 Analytical Procedure for ^{14}C	23
4.1.3 Analytical Procedure for ^{60}Co and ^{152}Eu	23
4.1.4 Analytical Procedure for ^{63}Ni	24
4.2 Results of Radioactivity Analysis	25
4.3 Short Summary on Radioactivity Analysis.....	25
5. Activation Calculation	28
5.1 Procedure of Activation Calculation	28
5.1.1 Modeling of the Rikkyo University Reactor.....	28
5.1.2 Preparation of Macroscopic Effective Cross-section Data	28
5.1.3 Calculation of Neutron Flux.....	29
5.1.4 Calculation of Radioactivity Concentrations.....	29

5.2	Results of Activation Calculation.....	30
5.2.1	Calculated Results of Neutron Flux	30
5.1.2	Calculated Results of Radioactivity Concentrations.....	31
5.3	Short Summary on Activation Calculation.....	32
6.	Summary.....	46
	Acknowledgements.....	47
	References	48

表リスト

表 2.1 採取した構造材サンプルの形状6
 表 3.1 構造材組成分析結果と用いた測定手法.....16
 表 4.1 各サンプル構造材の放射能濃度測定結果と計算結果26
 表 5.1 中性子束分布の計算に用いた構造材組成.....34
 表 5.2 放射能濃度評価対象とした領域の微量元素を含む元素組成37

図リスト

図 2.1 立教大学炉の概略図7
 図 3.1 アルミニウム合金及び炭素鋼の構造材組成分析手順17
 図 3.2 遮蔽コンクリート及び黒鉛の構造材組成分析手順18
 図 3.3 構造材組成分析結果の比較20
 図 4.1 ^{63}Ni の放射能分析手順27
 図 5.1 立教大学炉の 2 次元 r - z モデルの概略図.....38
 図 5.2 立教大学炉の運転履歴39
 図 5.3 2 次元 r - z モデルにおける熱中性子束の等高線図40
 図 5.4 炉心中心面における半径方向の中性子束分布42
 図 5.5 炉心中心軸における円柱軸方向の中性子束分布44

List of Tables

Table 2.1 Shape of Sampled Materials6
 Table 3.1 Results of Material Composition Analysis and Analytical Techniques 16
 Table 4.1 Results of Radioactivity Analysis and Activation Calculation for Each Sample26
 Table 5.1 Material Composition Data used for Calculation of Neutron-flux Distribution.....34
 Table 5.2 Impurity Data for Each Calculated Zone37

List of Figures

Fig. 2.1 Schematic View of the Rikkyo University Reactor.....7
 Fig. 3.1 Procedures of Material Composition Analysis for Aluminum and Carbon Steel Materials.....17
 Fig. 3.2 Procedures of Material Composition Analysis for Shield Concrete and Graphite.....18
 Fig. 3.3 Comparison of Obtained Analytical Data with Previously Reported Data.....20
 Fig. 4.1 Procedures of Radioactivity Analysis for ⁶³Ni27
 Fig. 5.1 Schematic of Two-dimensional *r-z* Model of the Rikkyo University Reactor38
 Fig. 5.2 Operating History of the Rikkyo University Reactor.....39
 Fig. 5.3 Contour Map of Neutron Flux on Two-dimensional *r-z* Model40
 Fig. 5.4 Radial Neutron-flux Distribution at the Core Midplane.....42
 Fig. 5.5 Axial Neutron-flux Distribution at the Central Axis44

1. はじめに

1.1 背景と目的

日本原子力研究開発機構（以下、原子力機構という）が進めている研究施設等廃棄物の埋設事業において対象とする廃棄物は、試験研究用原子炉（以下、研究炉という）施設、照射後試験施設、放射性同位元素使用施設等、様々な施設から発生するものである。これらの施設は原子力機構内の多様な施設のみならず、国内の様々な研究機関、大学、医療機関、民間企業等のものを含み、施設を所有する事業者の規模は様々である。従って、研究施設等廃棄物に含まれる放射性核種の種類やその放射能も多様である。埋設事業者として、埋設の対象とする廃棄物の放射能に関する情報は、埋設処分場の設計及び事業許可申請の際に埋設対象物の放射能インベントリを設定することに加えて、処分場に埋設しようとする個々の廃棄物を受け取る際に、受け入れ可能な最大放射能濃度を超えないことの確認をするために必要となる。このため、申請及び確認の手続きの円滑化を図るために、多様な廃棄物の発生施設の種類毎にそれらの特徴を考慮して、共通的に適用可能な放射能濃度評価方法を構築しておくことが合理的である。

これまでに原子力機構においては、研究炉施設や照射後試験施設から発生する研究施設等廃棄物について、放射能濃度評価法の検討が進められてきている¹⁻⁵⁾。このうち、研究炉施設から発生する廃棄物については、動力試験炉（JPDR）、JRR-2 及び JRR-3 の過去の解体に伴って発生し、現在保管されている廃棄物のうち、金属廃棄物を対象とした検討がなされている^{1,2,5)}。これらの検討においては、現在埋設処分が実施されている原子力発電所から発生する廃棄物（以下、発電所廃棄物という）の放射能濃度評価法⁶⁾を参考にして、放射能濃度分析データを利用したスケーリングファクタ法や平均放射能濃度法のような統計的手法の適用性に関する検討がなされている。これらの検討は現在保管されており、発生からある程度の時間が経過している廃棄物に対するものであるが、一般的に、廃棄物の性状把握は廃棄物発生後の早期に行うことが容易であり、全体の廃棄物管理に割かれる人的資源及びコストは減少するとされている⁷⁾。また、廃棄物が容器等に収納した状態になると、容器内における収納物の位置及び遮蔽状態等の保守的な仮定により、放射能濃度が保守的な評価となることが考えられる⁶⁾。従って、今後の研究炉の廃止措置により発生する解体廃棄物については、研究炉を解体する前段階での合理的な放射能濃度評価方法を考慮すべきである。

永久運転停止後の原子炉に残存する放射性物質は、原子炉内及び近傍の機器や構造物が中性子照射を受けて生成する放射化物と、燃料棒から漏出した一部の核分裂生成物や一次冷却系内に生成した放射性腐食生成物が付着することにより生じる汚染物の2種類に分けられる。放射化に起因する廃棄物は、主に炉心周辺の機器及び構造物の解体に伴い発生することとなる。発電所廃棄物の放射能濃度決定手順⁶⁾においては、放射化物の放射能濃度を決定する場合には、基本的に理論的方法を適用するとされている。研究炉は通常その目的に応じた設計がなされており、熱出力及び型式は様々である^{*1)}が、原子力発電所の解体に伴い発生する廃棄物と同様に、研究炉の解体に伴い発生する廃棄物の放射能濃度は、設定した原子炉構造物の適切な元素成分

*1 研究炉の熱出力は、1 W の UTR-KINKI（近畿大学）から 140 MW の常陽（原子力機構）まで幅広い⁸⁾。

条件、中性子条件及び照射条件等に基づく、中性子束分布計算及び放射化計算により評価できると期待される。

上述した理論的計算は、様々な情報を入力とした複数の計算コードによる計算を実施することとなる。原子力機構においては、廃止措置を計画している原子炉施設内の残存放射能インベントリを評価するシステムである RADO コードシステム⁹⁾が整備されている。RADO コードシステムは炉心から離れた遮蔽体等までの大きな体系の計算が良い精度で実施できるように、巨視的実効断面積の計算、中性子束の計算及び放射化放射能インベントリ計算に必要なプログラム等を統合したシステムである⁹⁾。

今回、研究炉の解体により発生する廃棄物について、RADO コードシステムと同様な計算手順により、埋設処分する際に重要になると考えられる核種の放射能濃度を評価することを検討した。理論的計算により放射能濃度を精度良く評価するためには、中性子照射を受ける構造材について、微量成分を含めた組成をできる限り正確に把握しておくことが重要である。従って、モデルとして選定した研究炉において、研究炉で多く用いられる構造材のサンプルを採取し、構造材組成の分析を実施するとともに、この分析結果を使用した理論的計算を実施し、放射化により生成する放射能を評価した。また、この理論的計算の精度を評価するために、構造材サンプルの放射能分析についても実施し、計算結果と比較した。

1.2 検討手順及び本報告書の構成

本検討における検討手順及び本報告書の構成は以下の通りである。まず、評価の対象とする構造材及びモデルとする研究炉を選定した。また、有意な放射能分析値が得られるよう、予備的な放射化計算によりサンプリング位置を選定し、選定した位置において構造材をサンプリングした。これらの内容は2章に記載する。

次に、放射化計算の条件として用いるために、採取したサンプルの構造材組成分析を実施した。3章に構造材組成分析の手順及びその結果を示し、本検討で得られたデータを文献等のデータと比較する。また、後に放射化計算結果との比較により計算精度を確認するために、採取したサンプルの放射能分析も実施した。4章に放射能分析手順及びその結果を示す。

分析により得られた構造材組成を用いて、各サンプリング位置における放射化計算を実施した。計算結果は採取した各サンプルの放射能分析結果と比較した。5章に放射化計算の手順及び計算結果並びに計算結果と分析結果を比較した結果について示す。最後に、本検討を通して得られた知見及び今後の課題を6章にまとめる。

2. 原子炉構造材のサンプリングの検討と実施

研究炉構造材の放射能分析結果と放射化計算結果の比較に基づく放射能濃度評価法の検討のため、研究炉に主要な構造材の種類を検討した上で、これらの構造材を含む研究炉を選定し、構造材のサンプリングを実施した。

2.1 評価対象とする構造材の検討

1章で述べた通り、発電所廃棄物の放射能濃度決定手順においては、放射化物の場合には基本的に理論的方法を適用するとされており、理論計算条件の設定にあたっては、ピット処分及びトレンチ処分対象の放射化物となる代表的な材質としてステンレス鋼、炭素鋼及びコンクリートに着目する必要があると説明されている。研究炉においては、これらの構造材の他にアルミニウム合金や黒鉛が良く用いられている^{10,11)}。そこで本検討では、鋼材及びコンクリートに加えて、アルミニウム合金及び黒鉛を対象とし、構造材組成分析及び放射能分析を実施することとした。

2.2 検討対象とする研究炉の選定と構造

本検討で対象とする研究炉は、2.1節で述べた主要な構造材を有しており、かつ放射能分析値と放射化計算の比較を行うために、分析するサンプルの位置が明確になるよう、放射化した構造物がまだ解体されていないことが望ましい。また、放射能分析結果を放射化計算と比較するため、積算熱出力が比較的大きく放射化による生成放射能が高い研究炉が望ましい。これらを踏まえ、本検討では生体遮蔽等の構造物がまだ解体されていない研究炉であり、アルミニウム合金、炭素鋼、コンクリート及び黒鉛の構造材を有する立教大学原子力研究所の TRIGA-II 型炉*2（以下、立教大学炉という）を対象とすることとした¹²⁾。

立教大学炉の概略図を図 2.1 に示す¹²⁾。タンクは内径約 1.91 m のアルミニウム合金製タンクが内径約 2.08 m の炭素鋼製タンクに挿入されているという二重構造になっている。側部のタンク壁の厚さはアルミニウム合金が 6.4 mm、炭素鋼が 6.0 mm であり、底部についてはアルミニウム合金が 12.7 mm、炭素鋼が 9.0 mm である。炉心中心面からタンク底部表面までの距離は 914 mm である。また、タンク底部はモルタル（108 mm 厚）で互いに固定されている。炭素鋼タンク内部表面は約 52 mm 厚のモルタルで覆われており、アルミニウム合金とモルタル間の約 30 mm の隙間は炉心中心面から 2.3 m の高さまで玉石が充填されている。タンクはコンクリート製の生体遮蔽（>1 m 厚）に囲われている。図 2.1(a)に示す通り、遮蔽体の上部は普通コンクリート製、下部は砂の代わりに砂鉄を配合したコンクリート（以下、遮蔽コンクリートという）である。さらに、炉心中心面の高さを中心に黒鉛製のサーマライジングカラム（炉心からプールの方）及びサーマルカラム（炉心からプールと反対の方）を有しており、サーマルカラムは 25 mm 厚のアルミニウムに覆われている。

*2 TRIGA は Training, Research, Isotope production, General Atomics の略語。

2.3 構造材サンプリング位置の選定とサンプルの採取

研究炉は発電用原子炉と比較して熱出力が小さい^{*3}ことから、原子炉構造材の放射化の程度も小さい。このため、放射化領域の構造材について中性子放射化による構造材組成の変化が小さいことが予想される。文献データ及び記録類に基づく構造材組成を用いた予備的な放射化計算により、長期間の中性子放射化による構造材組成変化を確認した後、有意な放射能分析値が得られると考えられ、かつなるべく広い位置からのサンプリングを実施した。また、少ないサンプルからなるべく多くの構造材組成及び放射能分析データを得るため、立教大学炉におけるサンプリング位置を検討するに際し、構造材組成分析及び放射能分析を同一の構造材サンプルを用いて行うこととした。

2.3.1 予備的な放射化計算による構造材サンプリング位置の検討

構造材組成分析及び放射能分析において同一のサンプルを用いて実施することの妥当性を論じるために、5章に示す計算手法を用いた予備的な放射化計算により、中性子束が比較的高いと考えられる位置での構造材組成の感度解析¹³⁾を実施した。この感度解析は、アルミニウム合金、炭素鋼及び遮蔽コンクリートについては炉心高さ(図5.1(a)の位置S1)、黒鉛については側部の反射体の炉心高さにおいて炉心から遠い部分(図5.1(a)参照)において実施した。起源元素としては、放射性元素を除く全ての元素(但し、Bi、Th、Uを含む)を考慮した。また、生成核種としては研究施設等廃棄物浅地中処分施設の概念設計¹⁴⁾における被ばく評価対象核種(50核種)及び試験研究の用に供する原子炉等に係る放射能濃度についての確認等に関する規則¹⁵⁾において定められている、研究炉施設において用いた資材等(金属くず、コンクリート破片又はガラスくず)のクリアランスのための放射能濃度評価対象核種(33核種)の和集合となる64核種を考慮した。感度解析による最大の元素重量の変化は、アルミニウム合金ではLiの $5 \times 10^{-6}\%$ の減少、炭素鋼ではLiの $1 \times 10^{-6}\%$ の減少、遮蔽コンクリートではThの $2 \times 10^{-6}\%$ の減少、黒鉛ではLiの0.01%の減少であった。長期間の中性子照射による構造材組成の変化は十分に小さいことから、構造材組成分析及び放射能分析について、同一のサンプルを用いての実施が妥当であると結論付けた。

上述した予備的な放射化計算における各構造材の元素組成は、各元素について過大評価となるよう設定しており、概要は以下の通りである。炭素鋼及び遮蔽コンクリートについては米国の原子力規制委員会(United States Nuclear Regulatory Commission)より公開され放射化評価のために利用されている分析データ(以下、NUREG値という;容器鋼材及び生体遮蔽コンクリート)^{16,17)}又は川太ら¹⁸⁾による新型転換炉「ふげん」から採取したサンプルの分析データ(コンクリート)を主に参照し、分析データの平均値に標準偏差の2倍を加えた値を比較して大きいほうの値を計算に使用した。一部の元素については、NUREG値や川太らの値より大きい場合には、助川ら¹⁹⁾により報告されているJPDRの構造材の分析値、岸本ら²⁰⁾によりJRR-2原子炉の放射化計算に用いられているデータ及びその他の研究炉の構造材成分の公称値を参照した。また、一部の標準偏差が記載されていない元素については、化学的性質が類似していると考え

^{*3} 軽水型発電炉の熱出力は1500 MW-4100 MWの範囲であるため、熱出力の高い常陽でも軽水炉の1/10未満である⁸⁾。

られる元素のものを参照した。アルミニウム合金については、岸本らにより報告されている JRR-2 のアルミニウム材 (A6061) の分析値及び日本工業規格²¹⁾による A6061 の元素成分幅の中央値と標準偏差を参照した。黒鉛については、英国の Magnox 炉及び改良型ガス炉 (AGR) に用いられている黒鉛構造材の不純物量²²⁾及び東海発電所の黒鉛構造材の元素組成²³⁾を参照し、主にこれらのデータの平均値に標準偏差の 2 倍を加えた値を用いた。一部の元素については、炭素鋼及び遮蔽コンクリートと同様に、含有量がより大きい場合には文献等のデータを参照した。

本検討ではできるだけ広範囲にわたり放射化計算結果と放射能分析値との比較を実施したいことから、広い範囲の複数箇所の構造材をサンプリングすることとした。アルミニウム合金、炭素鋼及び遮蔽コンクリートについて、まず、最も放射能が高いと考えられる炉心中心面上の点 (図 2.1 の位置 S1) 及び高さ方向の放射能濃度分布の計算精度を把握することを目的として位置 S1 から 1,100 mm 高さの点について、予備的な放射化計算を実施した。但し、分析による定量可能性の検討を目的とするため、この計算における各構造材の元素組成は、各元素について過小評価となるように設定した*4。この予備的な放射化計算の結果、1,100 mm 高さの点ではほぼ全ての核種について想定される放射能濃度の定量下限値を下回ることとなった。次に、放射能分析により有意な分析値が得られる点を探索するため、S1 及び 1,100 mm 高さの点の放射能濃度計算値を用いて、これらの間の点について指数関数で内挿することにより放射能濃度を求めた。これにより、位置 S1 からなるべく離れており、かつ有意な放射能濃度分析値が得られることが十分に期待される点として、位置 S1 から 300 mm 高さの位置 S2 を選定した。計算による S1 と S2 の熱中性子束 ϕ_h の比 $\phi_h(S1)/\phi_h(S2)$ は、構造材により若干異なるものの、1.5–1.7 の範囲であった。炉心から S2 と同程度の距離であるタンク底部中心位置 (図 2.1 の位置 S3) についても同様に熱中性子束の計算値を比較したところ、 $\phi_h(S1)/\phi_h(S3)$ は 2.5–3.6 の範囲となり $\phi_h(S3)$ は $\phi_h(S2)$ の半分程度であった。従って、S3 においても有意な放射能分析値が得られる可能性があるため、サンプリング位置として選定した。一方で、黒鉛については最も放射能が高く、サンプリングが比較的容易であると考えられるサーマルカラムの炉心側中心位置 (図 2.1 の位置 S4) からサンプリングすることとした。

2.3.2 構造材サンプリングの実施

2.3.1 項で選定した位置におけるサンプリングの方法として、サンプリング位置 S1–S3 において複数の構造材を一度に採取可能なコアボーリング法を、S4 も含めて用いることとした。サンプリング作業は 2 回に分けて実施した。コアボーリング装置 (シブヤ、TS-252) を用いて、1 回目のサンプリング作業では S1 及び S2 の位置、2 回目のサンプリングにおいては S3 及び S4 の位置からサンプルを採取した。2 回目のサンプリング作業は、S1 及び S2 のサンプルの分析終了後に実施した。ダイヤモンドコアビットの冷却及び粉塵の飛散防止のため、コアボーリングは水を供給しながら実施した。

2 回のサンプリングにより採取した構造材サンプルを表 2.1 に示す。S1–S3 からは直径 120

*4 過大評価となる元素組成設定の際とは逆に、文献データの平均値から標準偏差の 2 倍を引いた値を使用し、これが正の値とはならない元素については平均値の 1/10 を計算に使用した。

mm のサンプル、S4 からは直径 60 mm のサンプルを採取した。1 回目のコアボーリング作業時は装置の固定が困難であったため、S1 の中心の高さは炉心中心面の高さから上に 10 mm、S2 の中心は S1 の位置からプール側に 22 mm ずれた位置となった。2 回目のコアボーリング作業では S3 から採取した遮蔽コンクリートはサンプリング中に破砕したが、約 120 mm 長さ相当分を採取した。

表 2.1 採取した構造材サンプルの形状

構造材	サンプリング		サンプル形状と寸法		密度 (g cm ⁻³)
	位置	形状	寸法		
アルミニウム 合金	S1	円盤	120 mmφ × 6 mm		2.73
	S2	円盤	120 mmφ × 6 mm		2.71
	S3	円盤	120 mmφ × 12.7 mm		2.71
炭素鋼	S1	円盤	120 mmφ × 6 mm		7.87
	S2	円盤	120 mmφ × 6 mm		7.87
	S3	円盤	120 mmφ × 9 mm		7.87
遮蔽 コンクリート	S1	円柱	120 mmφ × 約 200 mm ^b		2.70
	S2	円柱	120 mmφ × 約 200 mm ^b		2.69
	S3	円柱 + 破片 ^a	120 mmφ × 約 120 mm		— ^d
黒鉛	S4	円柱	60 mmφ × 約 130 mm ^c		1.72

^a サンプル採取中に一部破砕した。

^b 炉心側から 120 mm を切断した円柱部を分析に使用し、残りは密度測定に用いた。

^c 炉心側から 50 mm を切断した円柱部を分析に使用し、残りは密度測定に用いた。

^d 破砕した部分を含めて全量を分析に使用したため、密度の測定は実施していない。

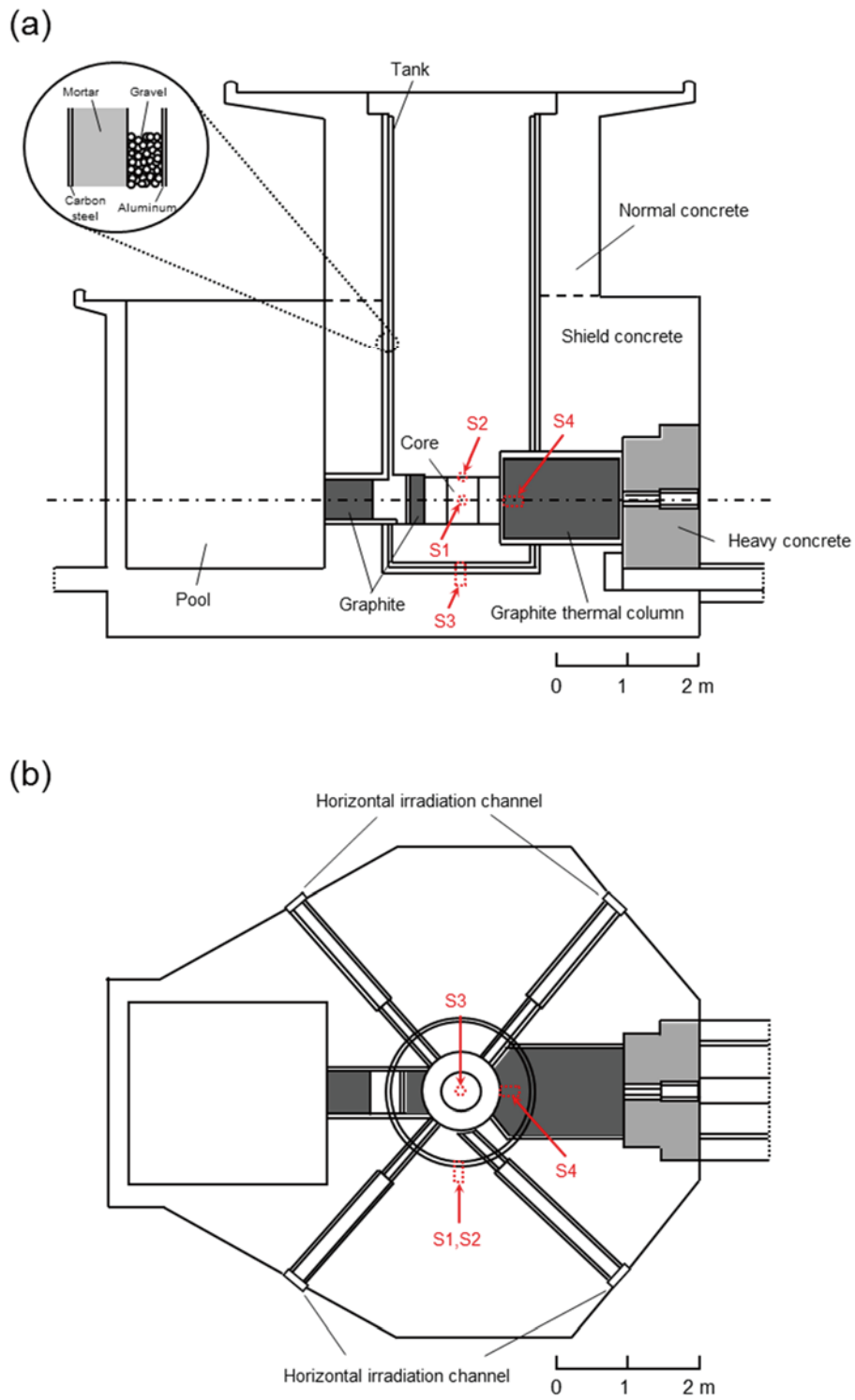


図 2.1 立教大学炉の概略図

点線領域 S1-S4 はサンプリング位置を示す。(a) 側面図。破線は普通コンクリートと遮蔽コンクリートの境界面、一点鎖線は炉心中心面を示す。拡大図はタンクの構造を示す。(b) 上面図。

3. 構造材サンプルの構造材組成分析

2.3.2 項にてサンプリングした原子炉構造材サンプルは実験室に輸送後、構造材毎に溶解が容易になるよう切粉状又は粉末状のサンプル（以下、分析用サンプルという）に調製した。調製した分析用サンプルを用いて、放射化計算における元素成分条件設定に用いるための構造材組成分析を実施した。

3.1 分析用サンプルの調製と密度測定

アルミニウム合金及び炭素鋼は表面の付着物（塗膜、錆、汚れ等）をグラインダーにより剥離した後、表面を研磨した。サンプリング位置 S1 及び S2 から採取したアルミニウム合金は、炉壁側に溶接痕のような凸部が見られた。S2 から採取した炭素鋼は炉心側に L 字管が溶接されていたが、研磨前に切断して取り除いた。また、S3 から採取した炭素鋼は炉壁側に厚みの異なる円形の凸部が見られた。圧縮空気により表面の付着物を除去した後、ドリルで多数の穴を開けることにより一部を切断し、断片にドリルで穴を開けて発生した切粉を分析用サンプルとして採取した。この際、S1 及び S2 から採取したアルミニウム合金及び S3 から採取した炭素鋼については、材質に対するサンプルの代表性を考慮して、凸部を避けて切粉を採取した。

遮蔽コンクリートコアは S1 及び S2 から採取したサンプルについて、ダイヤモンドカッターを用いて炉心側より 120 mm の位置で切断し、120 mmφ×120 mm の円柱形とした。円柱形サンプルの重量は S1 のサンプルが約 3500 g、S2 のサンプルが約 3600 g であった。S3 から採取したサンプルは円柱部及び破砕部の全量（重量約 3500 g）を使用した^{*5}。これら 3 箇所のサンプルは圧縮空気により表面の付着物を除去し、ハンマー及びステンレス乳鉢を用いて全量粉砕した後、目開き 2 mm のふるいを通過させた。得られた粉末を混合後に縮分して分析用サンプルとした。

位置 S4 から採取した黒鉛コアの分析用サンプル調製についても、遮蔽コンクリートと同様の操作で行った。糸鋸を用いて黒鉛コアを炉心側より 50 mm の位置で切断し、60 mmφ×50 mm の円柱形とした。圧縮空気により表面の付着物を除去し、やすり等を用いて全量を粉末とした後、目開き 1 mm のふるいを通過させた。得られた粉末を混合後に縮分して分析用サンプルとした。

サンプリング中に一部が破砕した S3 の遮蔽コンクリートを除く全ての構造材サンプルについて、分析用サンプルの調製のために切断した際の残りの部分を用いて、液中ひょう量法²⁴⁾により密度を測定した。各構造材の密度の測定結果を表 2.1 に示す。アルミニウム合金、炭素鋼及び遮蔽コンクリートの密度はサンプリング位置によらずほぼ一定であった。

3.2 構造材組成分析手順

各構造材について分析対象とした元素を表 3.1 に示す。これらの元素は、基本的には 5 章に示す放射化計算手法による、各元素を起源として生成する放射能の予備的な計算値（2016 年 3

^{*5} 重量が S1 及び S2 の円柱形サンプルとほぼ同じであることから、5 章では S3 から採取したサンプルの分析結果についても 120 mmφ×120 mm の円柱形領域の計算結果と比較することとする。

月 31 日時点：原子炉停止後約 15 年) への寄与が大きいものを中心に選定した。ここで、2.3.1 項に記載した構造材組成の感度解析と同様に、アルミニウム合金、炭素鋼及び遮蔽コンクリートについてはサンプリング位置 S1、黒鉛については炉心部側部の反射体における計算結果を用いた。

本検討では予備的な放射化計算による生成放射能の寄与率以外の観点から、以下に示す元素についても分析対象に加えた。研究炉廃棄物の浅地中埋設処分の安全評価上重要な核種として ^{94}Nb 及び $^{108\text{m}}\text{Ag}$ が予備的に選定されている¹⁰⁾ことから、これらの起源元素である Nb 及び Ag をアルミニウム合金及び炭素鋼について分析対象とした。また、JRR-2 及び JRR-3 の金属廃棄物において、 ^{152}Eu の放射能濃度が測定されている⁵⁾ことから、起源元素の Eu をアルミニウム合金について追加した。さらに、将来的に核分裂生成物の生成に関する検討の参考とするため、現状では測定データ数が少ない U の分析をアルミニウム合金、炭素鋼及び黒鉛について実施した。1 回目のコアボーリング作業で採取した S1 及び S2 のサンプルの放射能分析と放射化計算結果との比較後に、Cu を起源とする ^{63}Ni 生成に関する詳細な検討の重要性が示唆されたため、2 回目のコアボーリング作業で採取したアルミニウム合金と炭素鋼の S3 のサンプル及び黒鉛について Cu を分析した。加えて、炉心からの距離が大きくなるにつれて分析値と計算値との差が大きくなることが明らかになったことから、熱中性子吸収による中性子束減衰の定量的評価の一助とするために、同じく 2 回目のコアボーリング作業で採取した遮蔽コンクリートの S3 サンプルについて Cd を追加した。

以下の各節に、各構造材における構造材組成の分析手順を示す。全ての分析操作について、分析用サンプルを用いない操作についても前処理から測定まで同様に実施してブランクとした。また、各サンプリング位置の分析用サンプルについて、前処理から測定までの操作は O 分析について 3 回、その他の元素について 2 回実施した。

3.2.1 アルミニウム合金の構造材組成分析手順

アルミニウム合金について分析対象とした元素は、Li、Fe、Co、Ni、Cu、Nb、Ag、Eu、U の 9 元素である。アルミニウム合金の構造材組成分析の手順を図 3.1 に示す。分析用サンプルの前処理として酸分解及び二硫酸カリウム融解を行った後、誘導結合プラズマ発光分光分析法（以下、ICP-AES という）又は誘導結合プラズマ質量分析法（以下、ICP-MS という）を用いて元素を定量した。

分析用サンプル 0.2 g に 3 M 塩酸/3 M 硝酸を 25 mL 加え、加熱してサンプルを分解した。ここで、Ag の分析においては難溶性の塩化銀の生成を避けるため、3 M 塩酸/3 M 硝酸の代わりに 7 M 硝酸を用いた。冷却後、ろ紙により溶液をろ過し、残渣を純水で洗浄後にろ液及び洗液を 50 mL に定容した（溶液 1a）。残渣はろ紙とともに白金るつぼに移し、乾燥及び炭化後、電気炉を用いて 550 °C で 60 分間加熱した。二硫酸カリウム 1.5 g を加え、強熱して残渣を融解した。融成物に少量の純水を加え、加熱しながら 6 M 塩酸 4 mL を徐々に加えて溶解した。ここで、Ag の分析においては、6 M 塩酸の代わりに 7 M 硝酸を用いた。溶液をろ過して残渣が見られないことを確認した後、ろ紙を純水で洗浄し、ろ液及び洗液を 50 mL に定容した（溶液 1b）。

分析対象元素のうち、Fe の定量には ICP-AES を、その他の元素の定量には ICP-MS を使用し

た。ICP-AES 及び ICP-MS による定量は内標準法により行った²⁵⁾。7 M 硝酸に測定対象元素の標準液を添加後、溶液 1a 又は 1b を一定量加えて純水で定容した。溶液 1a 及び 1b について ICP-AES (PerkinElmer、Optima 7300 DV) 又は ICP-MS (PerkinElmer、ELAN 6100 DRC) による測定を行い、検量線を用いて定量した。溶液 1a 及び 1b の定量値を合わせてサンプルの分析値とした。

3.2.2 炭素鋼の構造材組成分析手順

炭素鋼について分析対象とした元素は、Li、Fe、Co、Ni、Cu、Nb、Ag、Cs、Eu、U の 10 元素である。これらの分析手順はアルミニウム合金と同様である (図 3.1)。まず、分析用サンプルの前処理として酸分解及び二硫酸カリウム融解を行った²⁶⁾。その後、前処理操作により得られた溶液 1a 及び 1b について ICP-AES (PerkinElmer、Optima 7300 DV) 又は ICP-MS (PerkinElmer、ELAN 6100 DRC) による測定を行い、内標準法により各元素を定量した²⁶⁾。アルミニウム合金の分析と同様に、分析対象元素のうち、Fe の定量には ICP-AES を、その他の元素の定量には ICP-MS を使用し、溶液 1a 及び 1b の定量値を合わせてサンプルの分析値とした。

3.2.3 遮蔽コンクリートの構造材組成分析手順

遮蔽コンクリートについて分析対象とした元素は、Li、N、O、Cl、Ca、Fe、Co、Ni、Cd、Ba、Eu、Th、U の 13 元素である。遮蔽コンクリートの構造材組成分析の手順 (O の分析を除く) を図 3.2 に示す。分析対象元素のうち、N の分析については前処理としてケルダール分解及び蒸留分離を実施後、インドフェノール青吸光光度法により定量した²⁷⁾。O の分析については不活性ガス融解後、赤外線吸収法により定量した。Cl についてはサンプルの溶解後、チオシアン酸水銀(II)吸光光度法により定量した²⁸⁾。また、その他の元素については前処理として酸分解、フッ化水素酸処理及び二硫酸カリウム融解を実施した後、Ca、Fe、Ba の 3 元素は ICP-AES を、Li、Co、Ni、Cd、Eu、Th、U の 7 元素は ICP-MS を使用して定量した。以下に分析手順の詳細を示す。

3.2.3.1 N の分析

分析手順を図 3.2(a)に示す。分析用サンプル 2 g に硫酸 10 mL、硫酸カリウム 5 g 及び硫酸銅(II)五水和物 2 g を加え、加熱することによりサンプルを分解した。溶液及び不溶解物を遠沈管に移し、3000 rpm で 10 分間遠心分離を行った後、上澄みを蒸留フラスコに入れた。蒸留フラスコに 50%水酸化ナトリウム溶液 35 mL 及び純水約 100 mL を加えて加熱し、飽和ホウ酸溶液 20 mL を入れた受器に、約 70 mL の留出液を 5–7 mL min⁻¹ の流出速度で採取した。冷却器等を純水で洗浄後、留出液及び洗液を 100 mL に定容した。この溶液 15 mL を 0.2 M の水酸化ナトリウム水溶液により中和し、フェノール・ペンタシアノニトロシル鉄(III)酸ナトリウム溶液^{*6} 5 mL 及び次亜塩素酸ナトリウム溶液 (有効塩素 10 g L⁻¹) 2.5 mL を加え、純水で 30 mL に定容した後、室温で 30 分以上放置した。この溶液の一部を石英製セルに移し、紫外可視分光光度計

*6 フェノール 5 g 及びペンタシアノニトロシル鉄(III)酸ナトリウム二水和物 0.025 g を純水 500 mL に溶解した溶液。

(島津製作所、UV-1800) を用いて 630 nm の吸光度を測定した。この測定結果から、アンモニウムイオン標準液を用いて作成した検量線を用いて N を定量した。

3.2.3.2 O の分析

分析用サンプル 7 mg を Ni カプセルに採取した。窒素・酸素・水素分析装置 (LECO、TCH600) のインパルス炉により 2500 °C で 200 秒間加熱して脱ガスした黒鉛るつぼにカプセルを入れた。その後、インパルス炉を 2500 °C で 60 秒間加熱してサンプルを融解した。融解により発生した CO 又は CO₂ ガスは He キャリアガス (純度 99.99995%) により装置内の非分散型赤外線検出器に導き検出した。この際、吸収波長が異なる CO と CO₂ をそれぞれ別の光学フィルターを用いた検出器により検出した。標準物質として酸化タングステンを用いて作成した検量線を用いて O を定量した。

3.2.3.3 Cl の分析

分析手順を図 3.2(b)に示す。分析用サンプル 2 g を純水 10 mL に懸濁させ、4 M 硝酸 14 mL を加えた後、加熱して可溶分を溶解した。30%過酸化水素水を 2 mL 加え、数秒間煮沸した。放冷後、炭酸カルシウム 1.5 g を加えて 1 分間煮沸した。ろ紙により溶液をろ過し、残渣を純水で洗浄後、ろ液及び洗液を 100 mL に定容した。この溶液 10 mL に 100 g L⁻¹ 硫酸アンモニウム鉄(III)硝酸溶液 5 mL 及び 3 g L⁻¹ チオシアン酸水銀(II)エタノール溶液 3 mL を加え、純水で 50 mL に定容した。この溶液の一部を石英製セルに移し、紫外可視分光光度計 (島津製作所、UV-1800) を用いて 460 nm の吸光度を測定した。この測定結果から、塩化物イオン標準液を用いて作成した検量線を用いて Cl を定量した。

3.2.3.4 その他の元素の分析 (Li, Ca, Fe, Co, Ni, Cd, Ba, Eu, Th, U)

分析手順を図 3.2(c)に示す。分析用サンプル 0.2 g に 3 M 塩酸/3 M 硝酸を 25 mL 加え、加熱してサンプルを分解した。冷却後、ろ紙により溶液をろ過し、残渣を純水で洗浄後にろ液及び洗液を 50 mL に定容した (溶液 2a)。残渣はろ紙とともに白金るつぼに移し、加熱による乾燥及び炭化後、電気炉を用いて 550 °C で 60 分間加熱した。白金るつぼに濃フッ化水素酸 5 mL 及び 9 M 硫酸数滴を加え、ヒーターで加熱した。この操作を 2 回繰り返した後、蒸発乾固した。二硫酸カリウム 1.5 g を加え、強熱して残渣を融解した。融成物に少量の純水を加え、加熱しながら 6 M 塩酸 4 mL を徐々に加えて溶解した。溶液をろ過して残渣が見られないことを確認した後、ろ紙を純水で洗浄し、ろ液及び洗液を 50 mL に定容した (溶液 2b)。アルミニウム合金の分析と同様、溶液 2a 及び 2b について ICP-AES (PerkinElmer、Optima 7300 DV) 又は ICP-MS (PerkinElmer、ELAN 6100 DRC) による測定を行い、内標準法により各元素を定量した。溶液 2a 及び 2b の定量値を合わせてサンプルの分析値とした。

3.2.4 黒鉛の構造材組成分析手順

黒鉛では不純物元素が不均質に存在すると推測できること及び黒鉛の製造に使用する原料によって不純物組成が異なるといった問題がある²⁹⁻³¹⁾。また黒鉛は多孔質であるために、特に N

の分析については、窒素が黒鉛に吸着した状態にあり、また空隙に充満して存在している³²⁾という困難な要因がある。Takahashi ら³³⁾は原子炉級黒鉛材料（空隙率約 23%）における N 含有量を黒鉛の熔融により分析したところ、N 含有量は使用した黒鉛サンプルの比表面積に依存して増加するという傾向が見られたことを報告しており、この結果は N₂ 分子の黒鉛表面への安定な吸着を示唆していると解釈されている。このように、空气中 N₂ 分子のサンプル表面への吸着の影響がある場合には、分析により N 含有量を過大評価する可能性が生じる。しかし、放射化計算により ¹⁴C の放射能濃度を保守的に評価することを基本とするならば、N 含有量についての多少の過大評価は許容できると考えられる。従って、3.1 節で調製した分析用サンプルをさらにメノウ乳鉢を用いて微粉碎した粉末を構造材組成分析に用いることとした。

黒鉛構造材について分析対象とした元素は、Li、N、Cl、Fe、Co、Ni、Cu、Cd、Eu、U の 10 元素である。これらの元素のうち、N 及び Cl は遮蔽コンクリートと同様の手順を用いて分析した（図 3.2(a)及び(b)）。即ち、N は前処理としてケルダール分解及び蒸留分離を実施後、インドフェノール青吸光光度法により定量し²⁷⁾、Cl はサンプルの溶解後、チオシアン酸水銀(II)吸光光度法により定量した²⁸⁾。

N 及び Cl を除く 8 元素（Li、Fe、Co、Ni、Cu、Cd、Eu、U）の分析手順を図 3.2(d)に示す。日本原子力研究所においてまとめられた分析方法及びその定量下限値²⁹⁾を参考にし、分析用サンプルの前処理として灰化处理及び酸分解を行った後、Fe は ICP-AES、その他の元素は ICP-MS により定量した。分析用サンプル 2 g を 200 mL の石英ビーカーに入れ、低温灰化装置（ジェイ・サイエンス・ラボ、JPA300）を用いて 200 W の出力で 11 時間加熱した。3 M 塩酸/3 M 硝酸を 25 mL 加え、加熱してサンプルを分解した。冷却後ろ紙により溶液をろ過し、残渣を純水で洗浄後、ろ液及び洗液を 50 mL に定容した。この溶液についてアルミニウム合金の分析と同様、ICP-AES（PerkinElmer、Optima 7300 DV）又は ICP-MS（PerkinElmer、ELAN 6100 DRC）による測定を行い、内標準法により各元素を定量した。

3.3 構造材組成分析結果

各サンプリング位置における各構造材の構造材組成分析結果を表 3.1 に示す。表 3.1 において、分析値の不確かさは個々の操作及び濃度等の不確かさ^{*7}から求めた合成標準不確かさに基づく包含係数 $k=2$ の拡張不確かさを示している。各元素の分析結果について、複数のサンプリング位置の分析結果があるものはその平均値をとり、図 3.3 に図示した。なお、図 3.3 において、S1-S3 のサンプルの分析結果があるものは標本標準偏差をエラーバーとして示しているが、一部のデータを除き記号の大きさ以内である。本検討の分析結果は後述する文献データと比べてばらつきが小さいが、これは本検討では小規模な単一施設内においてサンプルを採取しており、ほぼ同じ原料及び製造過程のものを分析したためであると考えられる。

3.3.1 アルミニウム合金の構造材組成分析結果

アルミニウム合金では Fe、Co、Ni、Cu、U の 5 元素の分析値が得られ、Li、Nb、Ag、Eu の

*7 採取したサンプルの重量、定容操作、分取操作、希釈操作及び溶液濃度の不確かさを考慮した。

4 元素については定量下限値未満であった。分析値が得られた 5 元素のうち、S1-S3 のサンプルを分析した Fe、Co、Ni、U についてはサンプリング位置による分析値の差異は小さく、相対標準偏差は Ni で最大の 12%であった。

図 3.3(a)において、比較のために川太らによるふげんの非管理区域から採取したアルミニウムサンプル 4 点の分析結果について、平均値と標本標準偏差を計算してプロットした。本検討の結果は Co、Ni、U については川太らの分析結果と不確かさの範囲内で一致している一方で、Fe 及び Cu の濃度は若干高い。本検討で分析対象とした元素の含有量はどちらも大きい順に $Fe > Cu > Ni > Co > U$ であり、傾向は一致した。Nb については本検討では $< 0.5 \mu\text{g g}^{-1}$ であったが、川太らの結果は $0.16 \pm 0.05 \mu\text{g g}^{-1}$ であることから、同程度の含有量を想定すると、分析値を得るためには定量下限値が約 1/5 以下となる分析法を適用する必要があると考えられる。Li、Ag、Eu については川太らも定量下限値のみの報告となっているが、Li 及び Eu について、川太らは 2 桁程度低い定量下限値を報告している。特に Li は本検討で分析対象とした ^3H の中性子照射による生成の起源元素であるため、得られた定量下限値を放射化計算に用いる場合には、この 2 桁程度の差はそのまま ^3H 生成量の過大評価分となり得る。従って、この場合における ^3H の放射能の過剰な過大評価を避けるために、主成分元素を除去することによりマトリックス濃度を下げるか、川太らと同様にグロー放電質量分析法を用いることにより固体試料の測定を実施する等により、定量下限値を改善することが望ましいと考えられる。

3.3.2 炭素鋼の構造材組成分析結果

炭素鋼については Fe、Co、Ni、Cu、Ag の 5 元素の分析値が得られ、Li、Nb、Cs、Eu、U の 5 元素は定量下限値未満であった。S1-S3 のサンプルを分析し、分析値が得られた Fe、Co、Ni、Ag のうち、Fe 及び Ag はサンプリング位置による分析値の変動は小さく、相対標準偏差はそれぞれ 0.4%及び 4%であった。一方で、Co 及び Ni では相対標準偏差はそれぞれ 40%及び 20%であり、ばらつきが比較的大きい。これは S1 及び S2 に比べて、S3 のサンプルの分析値が Co は 1.9 倍、Ni は 1.4 倍大きくなっているためである。詳細は不明だが、炭素鋼製タンクを製作する際に、タンクの側部と底部で製造過程の異なる材料を用いて製作した可能性が考えられる。

比較のため、図 3.3(b)に NUREG 値（鉄筋の組成）及び川太らによるふげんの非管理区域から採取したサンプルの分析結果を示す。本検討の結果は Ni、Cu、Ag の含有量について若干 NUREG 値より低かったが、Co は NUREG 値と良い一致を示した。また、川太らの結果とは全体的に不確かさの範囲で一致した。比較的含有量の大きい元素の含有量については、本検討の結果と文献値はいずれも大きい順に $Fe > Cu > Ni > Co$ であった。

3.3.3 遮蔽コンクリートの構造材組成分析結果

遮蔽コンクリートについては Li、N、O、Cl、Ca、Fe、Co、Ni、Ba、Th の 10 元素の分析値が得られ、Cd、Eu、U の 3 元素は定量下限値未満であった。分析値が得られた元素のうち、比較的相対標準偏差が大きい Cl (67%)、Ca (20%)、Fe (22%)、Co (25%) については、炭素鋼と同様に S3 のサンプルの分析値が S1 及び S2 に比べて 1.4-2.9 倍大きかった。このため、詳細は不明だが、生体遮蔽製造の側部と底部について原料又は製造プロセスに若干の違いがあった可

能性がある。

図 3.3(c)に本検討の結果を NUREG 値（コンクリート）及び川太らによるふげんの非管理区域から採取したサンプルの分析結果と比較する。ここで NUREG 値については、Evans ら（NUREG/CR-0474）¹⁷⁾による分析値が記載されていない O の含有量の比較のために、Oak ら（NUREG/CR-0672）¹⁶⁾が BWR の放射能インベントリ計算に用いた鉄筋コンクリートの元素組成についても示しているが、このデータは不確かさが記載されていない。このため、以下では O 以外の元素については NUREG 値として Evans らのデータ¹⁷⁾との比較を議論する。

最も含有量が多かった元素は O であり、文献データと同程度であった。本検討の結果では次に含有量が多かった元素は Fe であり、文献データよりも約 5 倍以上高かったが、これは 2.2 節で述べた通り、立教大学炉の遮蔽コンクリートは原料として砂鉄を配合しているためである。Co 及び Ni の含有量が比較的高い理由も同様であると考えられる。比較的含有量が多い Ca は NUREG 値よりは低かったが、川太らのデータとは不確かさの範囲で一致した。Li、N、Ba、Th の分析値は文献データよりも低い結果となった。同様に Eu 及び U の含有量についても、定量下限値しか得られなかったが、この値は文献データよりも低い結果となった。Cl は分析値及び文献データの不確かさが大きいものの、この範囲で一致した。Cd は文献データよりも一桁大きい定量下限値しか得られなかった。

3.3.4 黒鉛の構造材組成分析結果

表 3.1 に示す通り、黒鉛構造材では分析した元素全てにおいて定量下限値未満であった。これは 3.2.4 項で述べたように、本検討では文献²⁹⁾を参考にして定量下限値を想定していたが、これよりも本検討で用いた黒鉛構造材の元素含有量が概ね低かったということである。黒鉛の不純物の組成は、黒鉛の製造に使用する原料及び製造プロセスに依存して変化することがよく知られている²⁹⁻³¹⁾。図 3.3(d)は本検討の結果と、我が国における黒鉛構造材分析結果の例として、Miyatani らによる高純度黒鉛（東洋炭素、IG-110）³⁴⁾、日本原子力研究所における黒鉛標準候補材料 JAERI-G5（日立化成、PD-11 の微粉末をハロゲンガスにより高純度化処理したもの）及び JAERI-G6（日立化成、PD-11 の微粉末）²⁹⁾、そして Takahashi らによる日本原子力発電の核グレード黒鉛（Pechiney SA）³³⁾の分析結果とを比較したものである。図 3.3(d)から、元素含有量は黒鉛毎に様々であることが分かる。報告されている JAERI-G5 の分析値のうち Fe と Ni は定量下限値未満であるが、これらの値は JAERI-G6 の分析結果に比べて 1/3 から一桁以上低く、分析値がある Li については 2 桁以上低い。この JAERI-G5 の Li の分析値は、同じく高純度化処理が施された黒鉛を分析した Miyatani らの分析値に近い。一方で、JAERI-G6 の分析結果は、Fe については Takahashi らの分析結果に近く、差異が一桁以内に収まっているのに対し、Takahashi らの Ni の分析値は JAERI-G6 と比べて一桁以上大きい。本検討の分析値をこれらの分析結果と比較すると、Fe や Ni の含有量（定量下限値未満）が JAERI-G6 や Takahashi らの分析結果よりも低いことから、詳細については不明だが、高純度化処理が施されている可能性が考えられる。このように、黒鉛が高純度であり、有意な分析値を得ることが困難であると想定される場合には、放射能分析により直接放射能を決定する方が容易な可能性がある。

3.4 構造材組成分析のまとめ

立教大学炉からサンプリングしたアルミニウム合金、炭素鋼、遮蔽コンクリート及び黒鉛の構造材サンプルの構造材組成分析を実施した。分析対象元素は、基本的には放射化により生成する放射能への寄与が大きいと考えられるものを選定し、アルミニウム合金では9元素、炭素鋼では10元素、遮蔽コンクリートでは13元素、黒鉛では10元素であった。有意な分析値が得られた元素のうち、一部については不均一性が見られた。得られた分析結果は文献データと比較した。アルミニウム合金については、少ないデータとの比較ではあるが、元素含有量の傾向は一致した。炭素鋼では分析結果が文献データと概ね一致した。遮蔽コンクリートでは原料に基づく文献データとの差異が見られた。黒鉛では分析対象とした全ての元素が定量下限値未満であり、高純度であると考えられた。今回得られた分析結果を適切に反映することにより、精度の良い放射化計算が実施できることが期待される。

表 3.1 構造材組成分析結果と用いた測定手法

元素	サンプリング 位置	濃度 ($\mu\text{g g}^{-1}$) ^a				測定手法
		アルミニウム 合金	炭素鋼	遮蔽 コンクリート	黒鉛 ^b	
Li	S1	< 2.0	< 2.0	11.0 ± 0.2	< 0.20	ICP-MS
	S2	< 2.0	< 2.0	10.5 ± 0.2		
	S3	< 2.0	< 2.0	8.8 ± 0.2		
N	S1	–	–	20 ± 3	< 10	吸光光度法
	S2	–	–	26 ± 2		
	S3	–	–	19 ± 1		
O	S1	–	–	426000 ± 5000	–	赤外線 吸収法
	S2	–	–	425000 ± 4000		
	S3	–	–	404000 ± 3000		
Cl	S1	–	–	106 ± 6	< 20	吸光光度法
	S2	–	–	107 ± 6		
	S3	–	–	309 ± 22		
Ca	S1	–	–	69600 ± 1100	–	ICP-AES
	S2	–	–	60300 ± 1000		
	S3	–	–	89600 ± 1300		
Fe	S1	4350 ± 90	990000 ± 15000	174000 ± 2000	< 5.0	ICP-AES
	S2	4260 ± 90	992000 ± 15000	167000 ± 2000		
	S3	4400 ± 60	985000 ± 14800	243000 ± 3000		
Co	S1	1.26 ± 0.05	87.8 ± 1.5	47.4 ± 0.8	< 0.050	ICP-MS
	S2	1.16 ± 0.05	86.6 ± 1.5	45.1 ± 0.7		
	S3	1.29 ± 0.04	165 ± 3	70.1 ± 1.2		
Ni	S1	20.2 ± 0.4	386 ± 7	43.3 ± 0.7	< 0.20	ICP-MS
	S2	20.0 ± 0.4	383 ± 7	47.7 ± 0.8		
	S3	24.4 ± 1.2	535 ± 10	50.4 ± 1.3		
Cu	S3	2620 ± 40	1730 ± 30	–	< 0.20	ICP-MS
Nb	S1	< 0.50	< 0.50	–	–	ICP-MS
	S2	< 0.50	< 0.50	–		
	S3	< 0.50	< 0.50	–		
Ag	S1	< 0.50	1.19 ± 0.03	–	–	ICP-MS
	S2	< 0.50	1.15 ± 0.03	–		
	S3	< 0.50	1.09 ± 0.07	–		
Cd	S3	–	–	< 2.0	< 0.20	ICP-MS
Cs	S1	–	< 0.50	–	–	ICP-MS
	S2	–	< 0.50	–		
	S3	–	< 0.50	–		
Ba	S1	–	–	171 ± 2	–	ICP-AES
	S2	–	–	156 ± 2		
	S3	–	–	180 ± 2		
Eu	S1	< 0.50	< 0.50	< 0.50	< 0.050	ICP-MS
	S2	< 0.50	< 0.50	< 0.50		
	S3	< 0.50	< 0.50	< 0.50		
Th	S1	–	–	2.18 ± 0.24	–	ICP-MS
	S2	–	–	1.82 ± 0.20		
	S3	–	–	2.64 ± 0.28		
U	S1	0.89 ± 0.07	< 0.50	< 0.50	< 0.050	ICP-MS
	S2	0.91 ± 0.07	< 0.50	< 0.50		
	S3	0.94 ± 0.10	< 0.50	< 0.50		

^a “–”は分析を実施していないこと、“<”は分析値が定量下限値未満であることを示す。

^b 黒鉛のサンプリング位置は S4 である。

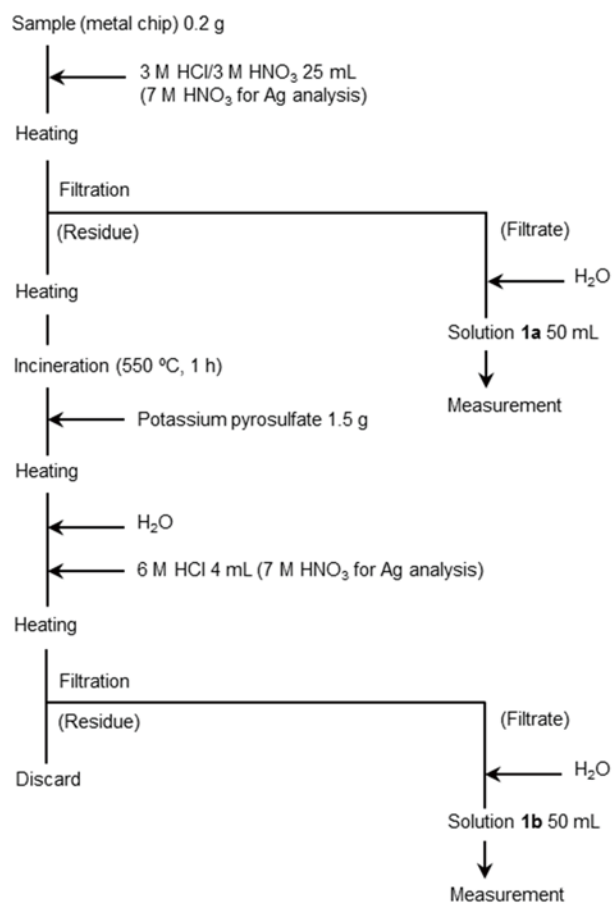
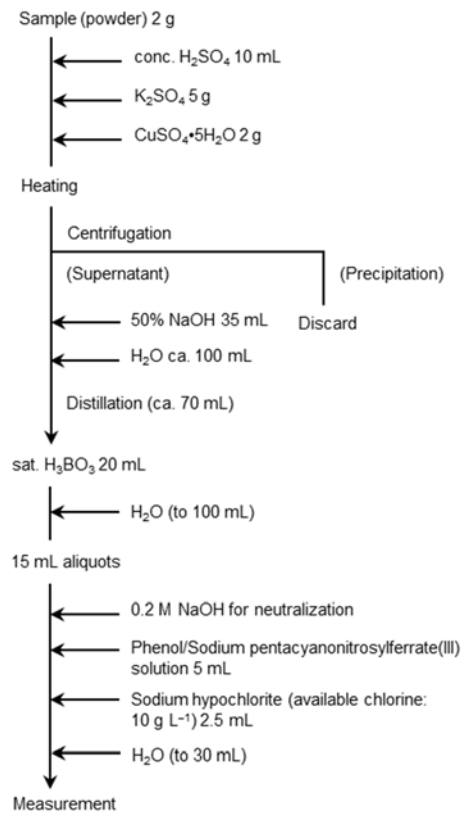


図 3.1 アルミニウム合金及び炭素鋼の構造材組成分析手順

(a) Nitrogen



(b) Chlorine

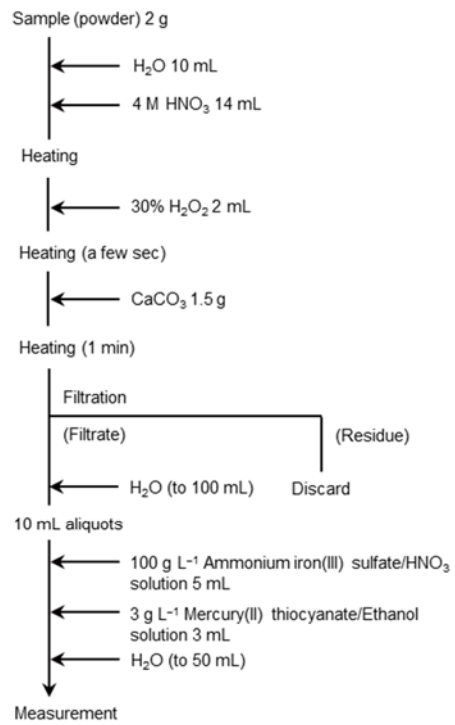
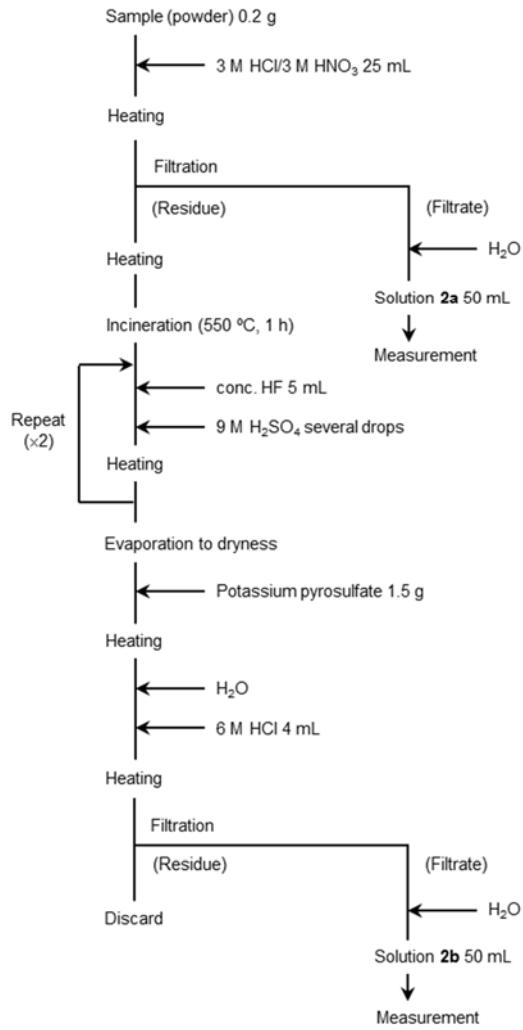


図 3.2 遮蔽コンクリート及び黒鉛の構造材組成分析手順

(a) N 分析の手順。(b) Cl 分析についての手順。(c) 遮蔽コンクリートの ICP-AES 及び ICP-MS 測定対象元素の分析手順。(d) 黒鉛の ICP-AES 及び ICP-MS 測定対象元素の分析手順。

(c) Metal elements in shield concrete



(d) Metal elements in graphite

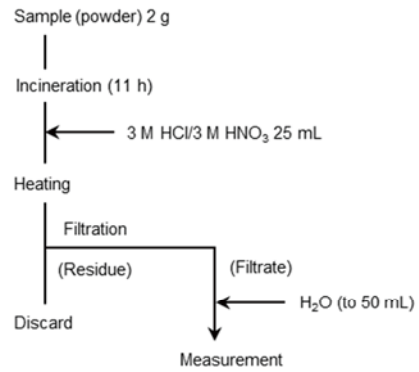
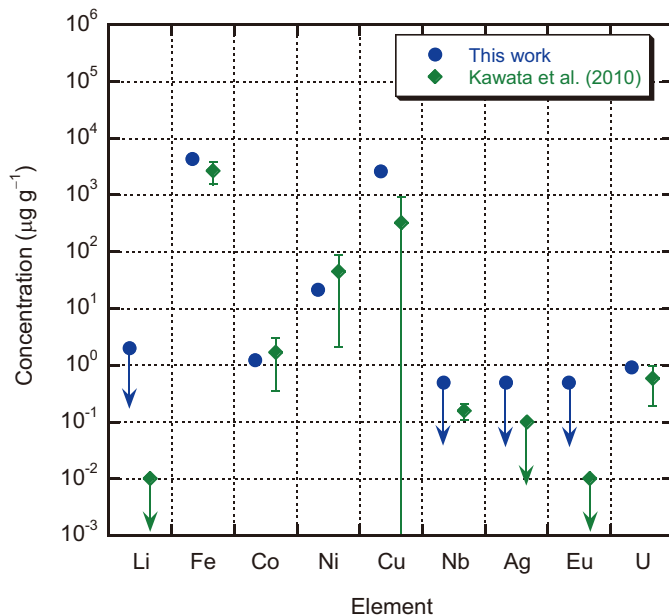


図 3.2 遮蔽コンクリート及び黒鉛の構造材組成分析手順（続き）

(a) N 分析の手順。(b) Cl 分析についての手順。(c) 遮蔽コンクリートの ICP-AES 及び ICP-MS 測定対象元素の分析手順。(d) 黒鉛の ICP-AES 及び ICP-MS 測定対象元素の分析手順。

(a) Aluminum



(b) Carbon steel

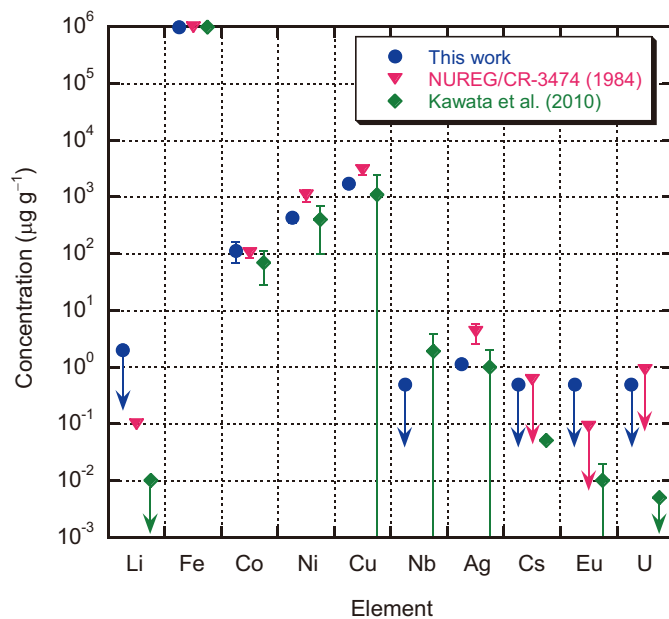
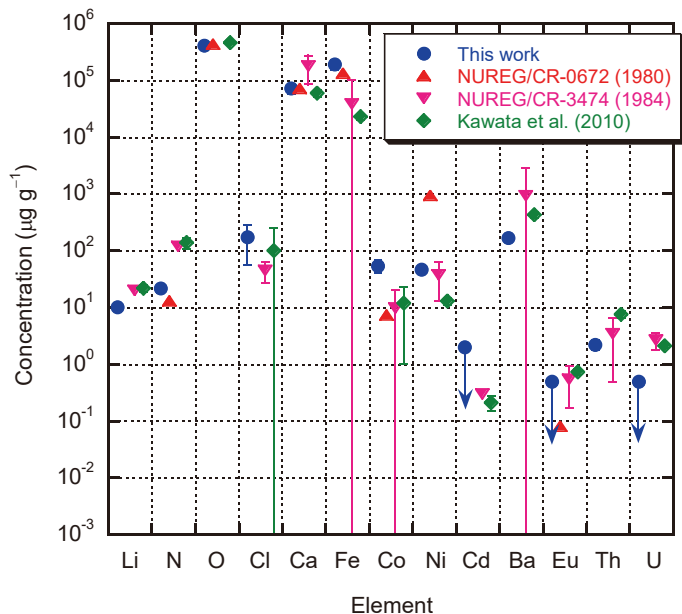


図 3.3 構造材組成分析結果の比較

矢印は定量下限値未満であることを示す。複数の測定値があるものは標本標準偏差をエラーバーとして示しているが、殆どのデータについて記号の大きさ以内である。比較のため文献データ^{16-18,29,33,34)}をプロットした。一部の文献データについては標本標準偏差の大きさが平均値以上であるため、エラーバーがグラフの下方まで伸びている。(a) アルミニウム合金の分析結果。(b) 炭素鋼の分析結果。(c) 遮蔽コンクリートの分析結果。(d) 黒鉛の分析結果。

(c) Shield concrete



(d) Graphite

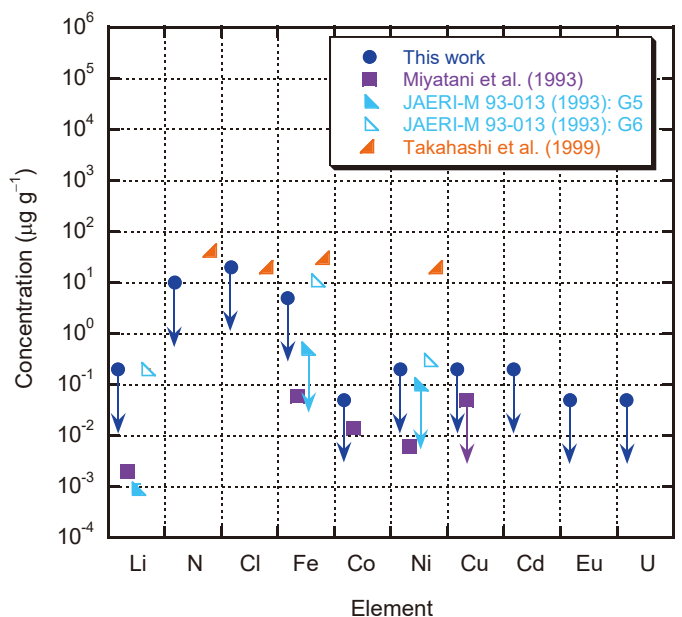


図 3.3 構造材組成分析結果の比較 (続き)

矢印は定量下限値未満であることを示す。複数の測定値があるものは標本標準偏差をエラーバーとして示しているが、殆どのデータについて記号の大きさ以内である。比較のため文献データ^{16-18,29,33,34)}をプロットした。一部の文献データについては標本標準偏差の大きさが平均値以上であるため、エラーバーがグラフの下方まで伸びている。(a) アルミニウム合金の分析結果。(b) 炭素鋼の分析結果。(c) 遮蔽コンクリートの分析結果。(d) 黒鉛の分析結果。

4. 構造材サンプルの放射能分析

3.1 節にて調製した各構造材の分析用サンプルを用いて、放射化計算と比較するデータを取得するために、選択した核種の放射能分析を実施した。

4.1 放射能分析手順

各構造材について、3.2 節で説明した予備的な放射化計算結果に基づき、全体の放射能に対する寄与の割合が大きい数核種を分析対象として選択した。分析対象とした核種は表 4.1 に示す通り、アルミニウム合金では ^3H 、 ^{60}Co 及び ^{63}Ni 、炭素鋼では ^3H 、 ^{60}Co 、 ^{63}Ni 、 ^{152}Eu 、遮蔽コンクリートでは ^3H 、 ^{60}Co 、 ^{152}Eu 、黒鉛では ^3H 、 ^{14}C 、 ^{60}Co 、 ^{63}Ni 、 ^{152}Eu である。但し、これらの構造材において ^{55}Fe についても比較的放射能が大きいと予想されたが、半減期が 2.74 y と短く、電子捕獲壊変に伴う低エネルギーの特性 X 線しか放出しないために、今後の埋設処分を想定した際に線量評価への影響が十分に小さくなると考えられることから、対象から除いた。炭素鋼の ^3H 及び ^{152}Eu は、研究炉廃棄物の浅地中埋設処分の安全評価上重要な核種として選定されているものである¹⁰⁾が、1 回目のコアボーリング作業で採取したサンプルの分析において、これらの起源元素である Li 及び Eu の有意な分析値が得られなかったことから、これらの核種の放射能分析により元素含有量を推定できる可能性を考慮し、2 回目のコアボーリング作業で採取した S3 のサンプルについてのみ分析を実施した。分析対象とした全 5 核種のうち、 γ 線放出核種である ^{60}Co 及び ^{152}Eu については γ 線スペクトロメトリーにより定量し、 β 線放出核種である ^3H 、 ^{14}C 、 ^{63}Ni については単離後に β 線測定を実施した。各構造材について、各核種の分析は 1 回ずつ実施した。

4.1.1 ^3H の分析手順

^3H の分析は全ての構造材（炭素鋼は S3 のサンプルのみ）について実施した。分析に用いた装置及び分析手順は亀尾ら³⁵⁾により報告されている ^3H 分析法と同様であり、加湿した酸素気流下での燃焼による ^3H の水への変換及び冷却捕集により回収した水を非沸騰蒸留後、液体シンチレーションカウンターにより ^3H の β 線を測定した。

まず、酸素ポンプ、純水を入れたバブラー管、2 台の管状電気炉を通る内径 36 mmφ の石英管及び 0°C に冷却した 2 段の U 字管からなる ^3H トラップを接続し、燃焼装置³⁵⁾を構築した。酸素ガス（純度 99.999%）を 50 mL min^{-1} で流しながら下流の管状電気炉内の石英管に入れたホプカライト（酸化触媒）*8 を 500°C で乾燥した。その後、3.1 節で調製した分析用サンプル（アルミニウム合金、炭素鋼及び遮蔽コンクリートサンプルは 30 g、黒鉛サンプルは 5 g）を石英製ボートに採取し、上流の管状電気炉内の石英管に入れ、酸素ガスを 50 mL min^{-1} で通気しつつ、サンプルを 500°C で 60 分間加熱した。サンプルの乾燥後、サンプル側の管状電気炉を 900°C に昇温して 8 時間加熱した。 ^3H トラップ内の捕集液をナス型フラスコに移し、水の重量が 13 g となるように純水を加えた。ここまでの分析操作における ^3H の回収率は 100%を仮定した。捕

*8 一酸化炭素の二酸化炭素への酸化に用いており、サンプルから ^3H と同時に発生する ^{14}C の分離が可能である³⁵⁾。

集液を入れたナス型フラスコに沸騰石を入れ、過酸化ナトリウム約 20 mg を加えて冷却器と接続した。水が沸騰しないように加熱し、留出液が 10 mL を超えるまで蒸留した。ここで、 ^3H は水として存在することから、蒸留による ^3H の濃度は変化しないと仮定した。留出液のうち 0.5 mL に 1%硝酸銀水溶液を滴下し、塩化銀沈殿が生成しないことを確認した。留出液 10 mL にシンチレーションカクテル Ultima Gold™ LLT (PerkinElmer) を 10 mL 混合し、約 24 時間放置した後、液体シンチレーションカウンター (PerkinElmer、Tri-Carb 3110TR) により 500 分間測定した。サンプルを用いない一連の操作による測定結果をバックグラウンドとして補正した。

4.1.2 ^{14}C の分析手順

^{14}C の分析は黒鉛についてのみ実施した。加湿した酸素気流下での燃焼³⁵⁾及び酸性溶液への通気捕集³⁶⁾による ^3H の分離後、液体シンチレーションカウンターにより ^{14}C の β 線を測定した。

まず、酸素ポンペ、水を入れたバブラー管、2 台の管状電気炉を通る内径 36 mmφの石英管、0 °C に冷却した 2 段の U 字管からなる ^3H トラップ及び 2 段のバブラー管からなる ^{14}C トラップを接続し、燃焼装置³⁵⁾を構築した。2 段の ^{14}C トラップにはそれぞれ Carbo-Sorb® E (PerkinElmer) を 5 mL 入れた。酸素ガス (純度 99.999%) を 50 mL min⁻¹ で流しながら下流の管状電気炉内の石英管内に入れたホプカライト (酸化触媒) を 500 °C で乾燥した。その後、3.1 節で調製した分析用サンプル 500 mg を石英製ボートに採取し、上流の管状電気炉内の石英管に入れた。酸素ガスを 50 mL min⁻¹ で通気しつつ、サンプルを 500 °C で 60 分間加熱した。サンプルの乾燥後、サンプル側の管状電気炉を 900 °C に昇温して 3 時間加熱した。 ^{14}C トラップ内の Carbo-Sorb® E 溶液を三ツ口フラスコに移し、容器内の空気を窒素ガス (純度 99.9998%) で置換した後、この容器を濃硫酸 25 mL を入れたバブラー管及び Carbo-Sorb® E (PerkinElmer) を 5 mL ずつ入れた 2 段のバブラー管と連結した。窒素ガスを通気しながら濃硫酸 40 mL を徐々に滴下し、その後 4 時間通気して、発生した CO₂ を Carbo-Sorb® E に捕集した。ここまでの分析操作における ^{14}C の回収率は 100%を仮定した。捕集した溶液は Carbo-Sorb® E により 15 mL に定容した。定容した溶液 10 mL にシンチレーションカクテル Permafluor® E+ (PerkinElmer) を 10 mL 混合し、約 24 時間放置した後、液体シンチレーションカウンター (PerkinElmer、Tri-Carb 3110TR) により 200 分間測定した。また、サンプルを用いない一連の操作による測定結果をバックグラウンドとして補正した。

4.1.3 ^{60}Co 、 ^{152}Eu の分析手順

γ 線放出核種である ^{60}Co 及び ^{152}Eu は Ge 半導体検出器 (ORTEC、GEM-35 遮蔽体付) を用いた γ 線スペクトロメトリーにより定量した。 ^{60}Co の分析は、全ての構造材について、 ^{152}Eu の分析は、炭素鋼 (S3 のサンプルのみ)、遮蔽コンクリート及び黒鉛について実施した。アルミニウム合金及び炭素鋼については、3.1 節で調製した分析用サンプル 10 g に 3 M 塩酸/3 M 硝酸を加えて加熱分解及び濃縮後、ろ紙によりろ過し、純水で定容した。ろ過後に不溶解成分は見られなかった。この溶液を U8 容器に入れ重量を測定した後、 γ 線測定を行った。遮蔽コンクリート及び黒鉛については、3.1 節で調製した分析用サンプルを U8 容器に 100 cm³ 充填して γ 線測定

を行った。 ^{60}Co については1332.5 keV、 ^{152}Eu については344.3 keVの光電ピークを解析に用いた。また、ガンマスタジオソフトウェア（SEIKO EG&G）を用いてサム効果補正及び自己吸収補正を実施した。

4.1.4 ^{63}Ni の分析手順

^{63}Ni の分析は、アルミニウム合金、炭素鋼及び黒鉛について実施した。図4.1に示す通り、構造材毎に一部異なる分析手順を用いてNiを単離した。アルミニウム合金サンプルについてはまず水酸化ニッケル(II)の沈殿によりNiとAlを分離した後、陰イオン交換カラムによりFeやCoを分離し、その後ジメチルグリオキシムによりNiを沈殿分離³⁷⁾した。炭素鋼サンプルの分析についてはアルミニウム合金サンプルの陰イオン交換分離以降の手順と同様である。黒鉛サンプルについては灰化及び溶解後、アルミニウム合金サンプルの陰イオン交換分離以降とほぼ同様な手順を用いて分離した。

アルミニウム合金サンプルの分析の詳細は以下の通りである。4.1.3項で調製した γ 線測定用の溶液100 mLにNiキャリア2 mgを添加し、蒸発乾固した。残渣を6 M HCl及び純水で溶解した後、10 M水酸化ナトリウム水溶液を加えて沈殿を生成した。加熱して沈殿を熟成し、ろ紙により吸引ろ過した(3a)。残渣3aを8 M塩酸50 mLで溶解した。この溶液を強塩基性陰イオン交換樹脂Dowex 1x8 (100–200 mesh) 100 mLを充填したカラムに通した後、8 M塩酸200 mLでカラムを洗浄した。溶液の流速は2 mL min⁻¹であった。回収した溶液に50%クエン酸溶液50 mL及び1%ジメチルグリオキシム溶液5 mLを添加し、アンモニア水を加えてpHを9程度として沈殿を生成した。加熱により熟成後、沈殿をろ紙によりろ過し、沈殿を濃塩酸1 mL及び純水で溶解した。50%クエン酸溶液50 mL及び1%ジメチルグリオキシム溶液を加えてから沈殿の溶解までの操作をさらに2回繰り返した後、沈殿を濃塩酸1 mL及び純水で溶解し、20 mLに定容した。ここまでの単離操作におけるNiの回収率をICP-AESにより測定したところ70%であった。定容した溶液7 mLにシンチレーションカクテルUltima Gold™ AB (PerkinElmer)を13 mL加えて混合した。約24時間放置した後、液体シンチレーションカウンター(PerkinElmer、Tri-Carb 3110TR)により500分間測定した。0.6 M塩酸とUltima Gold™ AB 13 mLを混合した溶液について測定した結果をバックグラウンドとして補正した。

炭素鋼サンプルの分析の詳細は以下の通りである。4.1.3項で調製した γ 線測定用の溶液50 mLにNiキャリア2 mgを添加し、蒸発乾固した(3b)。残渣3bは8 M塩酸50 mLで溶解した。その後の陰イオン交換分離から測定までの操作はアルミニウム合金サンプルの場合と同じである。なお、単離操作におけるNiの回収率は78%であった。

黒鉛サンプルの分析の詳細は以下の通りである。3.1節で調製した分析用サンプル5 gにNiキャリア2 mgを添加した後、加熱して乾燥した。その後電気炉を用いて800 °Cで5時間加熱し、3 M塩酸/3 M硝酸を100 mL加えた。加熱して灰分を分解し、蒸発乾固した(3c)。残渣3cを8 M塩酸50 mLで溶解し、Coキャリアを1 mg添加した。その後の陰イオン交換分離から測定までの操作はアルミニウム合金サンプルの場合と同じである。なお、単離操作におけるNiの回収率は64%であった。

4.2 放射能分析結果

各構造材サンプルの放射能分析結果を表 4.1 に示す。表 4.1 において、測定値は 2016 年 12 月 1 日時点（原子炉運転停止後約 15 年）の放射能濃度を表し、不確かさは統計的不確かさのみを示している。S3 の炭素鋼サンプルの ^3H 及び ^{152}Eu を除き、全てのサンプルについて分析対象とした核種の分析値が得られた。

複数箇所の放射能濃度を分析したアルミニウム合金、炭素鋼及び遮蔽コンクリートでは、分析値が得られた全ての核種について放射能濃度の大きさは $S1 > S2 > S3$ の順であった。S1 と S2 の放射能濃度測定値 M の比 $M(S1)/M(S2)$ は、アルミニウム合金の ^3H を除き 2.1–2.6 とほぼ一定であった。これは主に S1 と S2 の熱中性子束 ϕ_{th} の比 $\phi_{\text{th}}(S1)/\phi_{\text{th}}(S2)$ を反映していると考えられる。アルミニウム合金の ^3H の放射能濃度については、 $M(S1)/M(S2)$ は 4.7 と若干高い値になった。S1 と S3 の熱中性子束の比を反映すると考えられる S1 と S3 の放射能濃度比 $M(S1)/M(S3)$ は概ね 4.3–8.7 となり、 $M(S1)/M(S2)$ と比較して若干広い範囲であるが、アルミニウム合金の ^3H 及び遮蔽コンクリートの ^{152}Eu はそれぞれ 45 及び 12 と特に大きく、逆にアルミニウム合金の ^{60}Co については 3.7 と小さい。このように $M(S1)/M(S3)$ が広い範囲となることは、S3 の構造材組成の一部が S1 及び S2 と比べて異なっているという結果により、一部は説明できる（表 3.1 参照）。例えば、炭素鋼の ^{60}Co については $M(S1)/M(S3)$ は 4.3 と低めであるが、 ^{60}Co の起源元素である Co の S1/S3 の含有量比は 0.5 であるため、この比が放射能濃度比に影響していると考えられる。しかし、アルミニウム合金の ^{60}Co については S1/S3 の Co の比は 0.98 であり、含有量がほぼ等しいことから、構造材組成の違いでは説明がつかなかった。アルミニウム合金の ^3H 濃度比の逸脱については、起源元素である Li の含有量は定量下限値しか得られなかったために詳細はわからないが、1 つの可能性として、アルミニウムタンク内での Li の不均一性が大きいことが考えられる。遮蔽コンクリートの ^{152}Eu についても、起源元素である Eu について同様の可能性が考えられる。

黒鉛では、元素組成分析では分析した 10 元素全てが検出下限値未満であったにも拘らず、分析対象とした 5 核種全ての放射能濃度分析値が得られた。また、 ^{14}C の放射能濃度が特に大きく、分析した核種の放射能の 99% 以上であった。 ^{14}C は $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$ 反応、 $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ 反応及び $^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$ 反応により生成し、うち主な寄与は $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$ 反応及び $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ 反応によるものであるが、N 含有量の定量は現状容易ではない。従って、黒鉛の元素組成の設定が困難な場合には、放射能分析により放射能濃度分布を確認する方が放射化計算よりも簡潔であり、かつ結果もより信頼できる可能性がある。

4.3 放射能分析のまとめ

構造材組成分析に用いたものと同じのサンプルを用いて、放射能分析を実施した。分析対象核種は、基本的には放射化により生成する放射能が大きいものを選定し、アルミニウム合金では ^3H 、 ^{60}Co 、 ^{63}Ni 、炭素鋼では ^3H 、 ^{60}Co 、 ^{63}Ni 、 ^{152}Eu 、遮蔽コンクリートでは ^3H 、 ^{60}Co 、 ^{152}Eu 、黒鉛では ^3H 、 ^{14}C 、 ^{60}Co 、 ^{63}Ni 、 ^{152}Eu であった。炭素鋼の一部の核種を除いて、分析した全ての核種について分析値が得られた。特に黒鉛では、構造材組成分析では全ての元素が定量下限値未満であったにも拘らず放射能分析値が得られ、この 99% 以上が ^{14}C であった。複数箇所のサ

サンプルを分析したアルミニウム合金、炭素鋼及び遮蔽コンクリートでは、異なるサンプリング位置における核種の放射能比は概ね一定の範囲であり、これは主に熱中性子束の比を反映したものであると考察した。

表 4.1 各サンプル構造材の放射能濃度測定結果と計算結果

構造材	核種	サンプリング位置	放射能濃度 (Bq g ⁻¹)		C/M 比
			測定値 M ^a	計算値 C ^b	
アルミニウム合金	³ H	S1	0.105 ± 0.001	0.962	9.2
		S2	0.0225 ± 0.0007	0.726	32
		S3	0.00234 ± 0.00052	0.401	171
	⁶⁰ Co	S1	0.154 ± 0.006	0.315	2.0
		S2	0.0682 ± 0.0045	0.205	3.0
		S3	0.0417 ± 0.0050	0.148	3.6
	⁶³ Ni	S1	0.314 ± 0.009	0.190	0.60
		S2	0.119 ± 0.009	0.118	0.99
		S3	0.0588 ± 0.0050	0.117	2.0
炭素鋼	³ H	S3	< 0.0016	0.421	> 2.6 × 10 ²
	⁶⁰ Co	S1	3.38 ± 0.07	7.91	2.3
		S2	1.45 ± 0.03	4.88	3.8
		S3	0.785 ± 0.019	4.50	5.7
	⁶³ Ni	S1	0.588 ± 0.019	0.990	1.7
		S2	0.258 ± 0.016	0.625	2.4
		S3	0.0727 ± 0.0086	0.414	5.7
¹⁵² Eu	S3	< 0.077	0.082	> 1.1	
遮蔽コンクリート	³ H	S1	9.91 ± 0.01	23.0	2.3
		S2	4.79 ± 0.01	15.5	3.2
		S3	1.136 ± 0.003	6.05	5.3
	⁶⁰ Co	S1	1.13 ± 0.02	1.92	1.7
		S2	0.518 ± 0.006	1.26	2.4
		S3	0.180 ± 0.002	0.958	5.3
	¹⁵² Eu	S1	1.38 ± 0.02	1.97	1.4
		S2	0.536 ± 0.009	1.32	2.5
		S3	0.116 ± 0.002	0.647	5.6
黒鉛	³ H	S4	1.65 ± 0.01	7.21 × 10 ³	4.4 × 10 ³
	¹⁴ C	S4	323.4 ± 0.3	105	0.30
	⁶⁰ Co	S4	0.337 ± 0.003	33.0	98
	⁶³ Ni	S4	0.0788 ± 0.0055	3.81	48
	¹⁵² Eu	S4	0.0145 ± 0.0018	2.88 × 10 ³	2.0 × 10 ⁵

^a 2016年12月1日時点の放射能濃度であり、不確かさは統計的不確かさのみを表す。“<”は分析値が定量下限値未満であることを示す。

^b 構造材組成の分析結果を使用した計算結果である（5章を参照）。

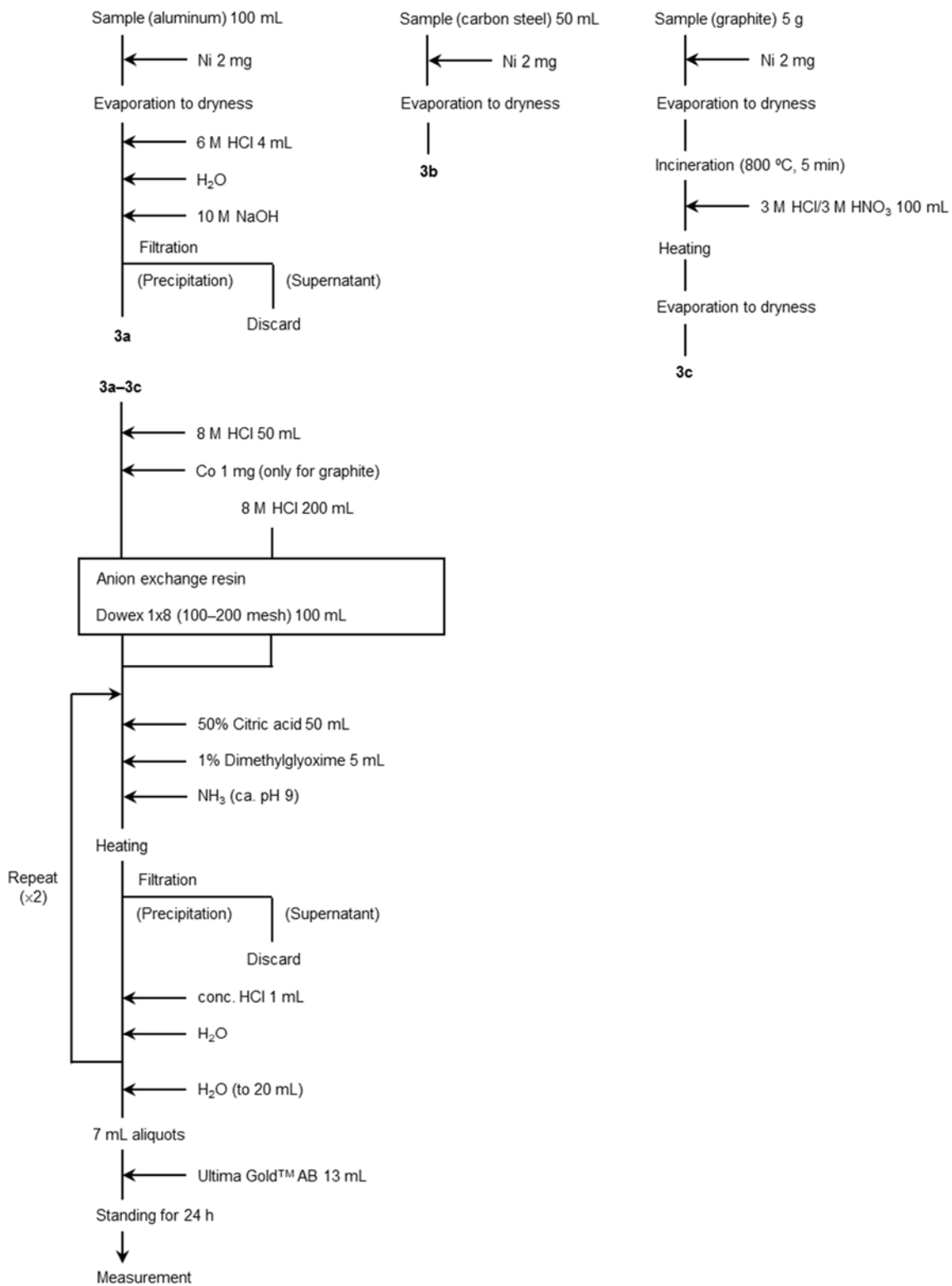


図 4.1 ^{63}Ni の放射能分析手順

5. 放射化計算

3章で分析した元素含有量を反映した構造材組成を用いて、各サンプリング位置における放射化計算を実施した。また、計算結果を4章で分析した放射能濃度と比較することにより、計算精度を確認した。

5.1 計算手順

RADOコードシステムを参考に、巨視的実効断面積の計算、中性子束の計算、生成放射能計算の手順で計算を実施した。中性子束及びエネルギースペクトルの計算には2次元離散座標輸送計算コードDORT³⁸⁾を用い、放射能濃度計算部分にはORIGEN-ARPコード³⁹⁾を使用した。以下に、放射化計算の概要を記載する。

5.1.1 立教大学炉のモデル化

図2.1に示した立教大学炉の構造を考慮し、炉心部から生体遮蔽体までの範囲について、主要な放射化領域の大部分のモデル化が可能であると考えられる2次元の r - z 座標系モデルを作成した。作成した2次元モデルの概略図を図5.1に示す。サンプリング位置S1及びS2はタンク壁及び遮蔽コンクリート、S4はサーマルカラムからサンプルを採取したので、これらの点の評価を可能とするために、2つのモデルを作成した。これらのうち、1つは炉心からタンク壁方向(S1及びS2方向)を反映したモデル(以下、基本モデルという)であり(図5.1(a))、もう1つは炉心からサーマルカラム方向(S4方向)を反映したモデル(以下、サーマルカラムモデルという)である(図5.1(b))。作成したモデルは、基本モデルについては19領域⁹⁾、サーマルカラムモデルについては25領域¹⁰⁾からなる。各領域の厚さはなるべく実際のものを反映した。

5.1.2 巨視的実効断面積データの作成

中性子束計算に利用する巨視的実効断面積データは以下の通り作成した。まず、中性子断面積ライブラリJSSTDJ-J32^{9,40)}及び領域毎の構造材組成を入力データとして、MACRO-JGプログラム^{9,40)}により各領域に対して領域依存巨視的実効断面積を作成した。ここで、JSSTDJ-J32は100群の群定数ライブラリであり、核データライブラリJENDL-3.2^{41),*11)}を元に作成されたものである⁹⁾。次に、MACRO-JGプログラムで作成した各領域の領域依存巨視的実効断面積ファイルを1つのファイルに結合し、ファイル形式を群独立形式^{9,42)}に変換することにより、中性子束計算の入力ファイルとした。

領域依存巨視的実効断面積の作成のためのMACRO-JGプログラムのインプットとして、表

⁹⁾ 構成物質のこと。炉心、上部反射壁、下部反射壁、炉心部黒鉛、炉心タンク(アルミ製)、側部反射体(黒鉛製)、回転照射棚受け(空気)、上部グリッド板(アルミ製)、下部グリッド板(アルミ製)、中央シンプル(アルミ製)、冷却水、アルミニウムタンク、玉石、モルタル、炭素鋼タンク、遮蔽コンクリート、普通コンクリート、基礎コンクリート及び空気の19領域。

¹⁰⁾ 基本モデルにアルミカバー、サーマルカラム、ボラル板、重コンクリートドア、ドアフレーム(鉄製)及び鉄製遮蔽体の6領域を加えた25領域。

¹¹⁾ 最新のライブラリではないが、RADOコードシステムや他の放射化計算における使用実績が多いため採用した。

5.1 の通り各領域の構造材について、主要元素の組成データ*12を作成した。構造材組成データにおいて参照したデータは 2.3.1 項で説明したものと同様であるが、分析データの平均値を使用した。炉心近傍の領域については、構造物等の体積比率で均質化した組成データを作成した。アルミニウムタンク、炭素鋼タンク、遮蔽コンクリート及びサーマルカラムについては構造材組成に 3 章の分析値を反映した。但し、定量下限値しか得られなかった元素のうち、文献データ等より定量下限値が高いものについては、文献データ等を使用した。

5.1.3 中性子束の計算

DORT コードを用いた中性子束計算には、5.1.1 項で説明した 2 次元モデルと 5.1.2 項で作成した 100 群の巨視的実効断面積データを使用した。炉心部全体の中性子源強度は、定格熱出力 100 kW での運転時における発生中性子数である $7.88 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$ とした。核分裂中性子のエネルギースペクトルは、Watt 型の近似式^{9,43)}で計算される ^{235}U の核分裂における即発中性子スペクトルとした。メッシュ数は、基本モデルでは半径方向 (r 軸方向) に 185、円柱軸方向 (z 軸) に 327 とし、サーマルカラムモデルでは半径方向に 196、円柱軸方向に 324 とした。メッシュの間隔は半径方向について 6.0 mm–12.0 mm、円柱軸方向について 6.3 mm–15.5 mm とした。散乱のルジャンドル展開次数は P_5 、角度分点は S_{48} (対称型 S_8) とした。境界条件は左の炉心側を反射条件とし、それ以外の境界を真空条件とした。

5.1.4 放射能濃度の計算

ORIGEN-ARP コードを用いた放射能濃度計算では、5.1.3 項で計算した 100 群中性子エネルギースペクトルを縮約した 3 群中性子束分布を作成し、計算の入力とした。3 群のエネルギー群構造は、熱中性子群として 0.001 eV–0.876 eV (4 群の中性子束を縮約)、熱外中性子群として 0.876 eV–1.0 MeV (69 群の中性子束を縮約)、高速中性子群として 1.0 MeV–14.9 MeV (27 群の中性子束を縮約) とした。

立教大学炉の運転履歴¹²⁾を図 5.2(a)に示す*13。図 5.2(a)は年度毎の積算熱出力量を示したものであるが、本検討ではこの積算出力量を合わせるように 1 日当たり 6 時間の連続運転を仮定した場合の年度毎の運転時間及び平均出力を算出し、各年度の初めは運転停止、その後年度末まで連続運転するという運転ヒストグラム (図 5.2(b)) を作成して計算に使用した。

評価対象とした各領域について、構造材組成分析の結果を用いて主要元素以外の不純物を含めた元素組成データを作成した。これらのデータを表 5.2 に示す。このデータの作成における考え方は 5.1.2 項で説明した中性子束計算のための構造材組成データの作成と同様である。実効放射化断面積データは ORIGEN-ARP コードにより作成されたものを使用した。各サンプリング位置を含む主要な領域における、2016 年 12 月 1 日時点の放射能を評価した。

*12 原子数密度が $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 以下の元素又は核種を除き、さらに各領域について元素又は核種の数に 15 以下とした。

*13 本検討では完全に運転停止する前にまとめられた 2000 年度までのデータ (積算出力約 116.4 MWd、総運転時間 33,374 h) を用いたため、原澤¹²⁾により報告されている 2001 年 12 月 15 日の運転停止までの積算出力と総運転時間 (約 117 MWd、33,570 h) よりも若干低い。しかし、積算出力の違いは 0.5%程度であるため、この違いによる計算結果への影響は十分に小さいと考えられる。

5.2 計算結果

5.1 節で説明した手順により計算した、原子炉体系における中性子束分布及び各サンプリング位置における放射能濃度について示す。

5.2.1 中性子束の計算結果

基本モデル及びサーマルカラムモデルについて計算した、定格熱出力（100 kW）での運転時における2次元の熱中性子束分布を図 5.3 に示す。基本モデルを用いた計算結果（図 5.3(a)）はサンプリング位置 S1-S3、サーマルカラムモデル用いた計算結果（図 5.3(b)）は S3 及び S4 の計算結果を含む。どちらのモデルでも、生体遮蔽の表面で熱中性子束が $1 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 以下となった。タンク間の玉石又は空気の領域においてわずかに上部方向へのストリーミングが見られたが、基本モデル（図 5.3(a)）では概ね炉心領域を中心とした同心円状の等高線となっており、S1-S3 の熱中性子束が一桁以内の範囲であった。これは放射能濃度の測定結果から推測される熱中性子束の比（4.2 節参照）に矛盾しない。一方、サーマルカラムモデル（図 5.3(b)）では、S4 の中性子束は他のサンプリング位置に比べて数桁高く、サーマルカラム領域内で熱中性子束の減衰が小さかった。このため、サーマルカラムに近接する遮蔽コンクリートは、これらの境界に中性子の反応断面積が大きい ^{10}B を多く含むボラル板が設置されてはいるものの、基本モデルによる計算結果に比べて熱中性子束が高くなった。

炉心中心面（ $z=0 \text{ cm}$ ）における半径方向の3群中性子束分布を図 5.4 に示す。サーマルカラムモデルを用いた熱中性子束の計算値（図 5.4(b)）を、サーマルカラムを通る断面内の熱中性子束測定値⁴⁴⁾と比較したところ、計算値は概ね測定値を再現した^{*14}。基本モデル（図 5.4(a)）では、実際には円柱軸方向に 10 mm のわずかなずれがあるが、サンプリング位置 S1 のアルミニウムタンク、炭素鋼タンク及び遮蔽コンクリートの位置にほぼ対応した位置の計算結果を含む。一方、サーマルカラムモデル（図 5.4(b)）では、S4 の黒鉛の位置における計算結果を含む。両モデルの計算結果を比較すると、構造が共通である炉心と側部反射体までの中性子束分布には3群ともに殆ど違いは見られなかった。そのさらに外側においては、基本モデルでは冷却水領域であり、中性子束が3群ともに著しく減衰した。一方、サーマルカラムモデルでは、サーマルカラム領域において熱外中性子束及び高速中性子束は大きく減衰したのに対し、熱中性子束の減衰は図 5.3(b)でも見られたように比較的小さかった。このため、熱中性子束の全中性子束に対する割合は、サーマルカラムの炉心側表面では約 82%であったが、炉心側から約 50 cm の位置で 99%に達した。これは黒鉛の巨視的吸収断面積が比較的小さいために、減速比が比較的大きい⁴⁵⁾ことによるものと理解できる。

炉心中心軸（ $r=0 \text{ cm}$ ）における円柱軸方向の3群中性子束分布を図 5.5 に示す。両方のモデルにおいて、サンプリング位置 S3 のアルミニウムタンク、炭素鋼タンク及び遮蔽コンクリートの位置における計算結果を含む。どちらのモデルにおいても、炉心から遠ざかるにつれて中性子が3群ともに減衰していくという傾向が見られた。また、両方のモデルを比較したところ、全範囲にわたって中性子束分布に殆ど違いは見られなかった。このため、どちらのモデルを用

*14 文献⁴⁴⁾では、測定の詳細については記載されていない。

いても S3 における放射能濃度評価結果に違いは生じないと考えられる。

5.2.2 放射能濃度の計算結果

各サンプリング位置における各サンプルの放射能濃度計算結果を表 4.1 に示す。ここで、各サンプルの放射能濃度の計算値は、サンプルの形状を考慮し、サンプル内でのメッシュ点における計算結果を体積平均することにより求めた。S3 のサンプルの計算結果は基本モデルによるものを示した。アルミニウム合金、炭素鋼及び遮蔽コンクリートについては、測定値が得られた全ての核種において、分析結果と同様に、S1 > S2 > S3 の順に減少する傾向が見られた。また、S1-S3 の放射能濃度は、測定結果及び熱中性子束の計算結果と同様に一桁以内の範囲であった。黒鉛については、放射能分析対象核種の起源元素の定量下限値を計算に使用したことを反映し、特に ^3H と ^{152}Eu については著しく高い計算値が得られた。

各サンプルの放射能濃度計算値 C と有意な値が得られた核種の測定値 M の比 C/M も表 4.1 に示す。炭素鋼及び遮蔽コンクリートについては、定量下限値しか得られなかった炭素鋼の ^3H 及び ^{152}Eu を除き、 C/M は 1.4-5.7 であり、計算値は一桁以内の保守的な評価（即ち、 $1 < C/M < 10$ ）となった。また、 C/M は一般的に S1 < S2 < S3 の順に増加する傾向が見られた。アルミニウム合金では、 ^{60}Co についてのみ同様な結果となった。これらの核種のうち遮蔽コンクリートの ^{152}Eu を除いては、生成起源元素の含有量は得られた分析値を反映したものである。例えば炭素鋼の ^{63}Ni については、起源元素である Ni 及び Cu の文献等による濃度は、それぞれ NUREG 値（容器鋼材）¹⁷⁾の $6,600 \mu\text{g g}^{-1}$ 及び $1,274 \mu\text{g g}^{-1}$ であったが、構造材組成分析によりそれぞれ $435 \mu\text{g g}^{-1}$ 及び $1,730 \mu\text{g g}^{-1}$ となり、特に Ni 濃度が大きく減少している。これにより、例えば S1 の炭素鋼では、 ^{63}Ni の放射能濃度計算値が文献等に基づいた 17.3 Bq g^{-1} ($C/M = 29$) から分析値に基づく 0.990 Bq g^{-1} ($C/M = 1.7$) に大きく改善している。このような改善は S1 のアルミニウム合金の ^{60}Co ($C/M = 2.1 \rightarrow 2.0$)、炭素鋼の ^{60}Co ($C/M = 3.3 \rightarrow 2.3$)、遮蔽コンクリートの ^3H ($C/M = 4.5 \rightarrow 2.3$) 及び ^{60}Co ($C/M = 0.38 \rightarrow 1.7$) でも同様であったことから、構造材組成分析の結果を反映することにより、精度の良い放射化計算が実現できたと言える。遮蔽コンクリートの ^{152}Eu の起源元素である Eu の含有量は、構造材組成分析では定量下限値が $0.50 \mu\text{g g}^{-1}$ であったが、この値を用いて良好な計算結果が得られたことから、この下限値は実際の含有量に近いものと推測できる。

アルミニウム合金の ^3H の計算値は S2 と S3 のサンプルで過度な過大評価となっており、逆に ^{63}Ni の計算値は S1 と S2 のサンプルで過小評価となった。アルミニウム合金の ^3H の放射能濃度については、起源元素である Li の定量下限値が比較的高かったため、その含有量は文献値²⁰⁾を使用した。これよりも実際の含有量がさらに低いために C/M が大きくなったと考えられる。アルミニウム合金の ^{63}Ni の放射能濃度については、Ni を起源とする $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ 反応による生成に加え、Cu を起源とする $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ 反応による生成の寄与が 30%程度あった。これらの反応のうち、 $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ 反応は熱中性子の寄与が支配的であるが、 $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ 反応は高速中性子により生じる⁴⁶⁾。二つの反応の寄与により生成する核種の計算は、それぞれの反応における放射化断面積の評価やエネルギー群の縮約によって計算精度に影響が生じる場合があると考えられることから、熱中性子領域で単一の反応により生成する核種と比較して放射能の

計算精度が悪くなる可能性がある。しかし、状況が同じである炭素鋼の ^{63}Ni の放射能濃度は放射化計算により良好な結果が得られているため、 C/M が大きくなったことは計算精度の問題とは考え難い。そこで分析の観点から考えると、 ^{63}Ni の放射能濃度の過小評価は、起源元素であるNi及びCuの含有量の構造材組成分析における過小評価か、もしくは放射能分析における ^{63}Ni の過大評価が原因となっている可能性がある。即ち、アルミニウム合金の分析手順において何らかの系統的な要因が存在することが推測される。

黒鉛では、 ^3H 、 ^{60}Co 、 ^{63}Ni 、 ^{152}Eu の計算結果は著しい過大評価となった。これは前述した通り、起源元素の含有量として定量下限値を使用しているためである。反対に、 ^{14}C の放射能濃度は過小評価となった。 ^{14}C はCを起源とする $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$ 反応による生成の寄与があるが、Nを起源とする $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ 反応の寄与も大きい。これらの起源元素のうち、Cは黒鉛構造材がほぼ純粋な炭素であることから、計算では含有量を100%としている。一方、Nの構造材組成分析では定量下限値しか得られなかったため、この値を計算に用いている。即ち、寄与が大きいNについては含有量を過大評価しているにも拘らず、 ^{14}C の放射能濃度計算結果は過小評価するという矛盾した結果となっている。これは黒鉛中のNの分析手法が原因であると考えられる。

3.2.4項で述べた通り、 N_2 分子の表面吸着の影響が過大に評価されることが期待できることから、本検討では微粉碎した黒鉛粉末を分析に使用している。一方で、黒鉛は多孔性の物質であり、空隙内の空気中 N_2 分子の放射化も重要な ^{14}C の生成機構となる^{32,47)}。黒鉛を微粉碎することにより、空隙内の空気は一部散逸することとなる。即ち、本検討では黒鉛構造材の空隙率を測定していないために程度は推定できないが、試料の微粉碎によって表面吸着の影響が大きくなるために定量値が過大評価となることよりも、空気の散逸の影響が大きいため、結果として定量値が過小評価となったと解釈できる^{*15}。従って、今後同様な分析を実施する場合には、ある程度まとまった大きさのサンプルを分析することが望ましいと考えられる。

放射能濃度の計算結果を用いて放射能インベントリを評価する場合、着目する領域を分割し、各分割領域における放射能濃度計算値に分割領域の重量を乗じた後、各分割点の計算結果を合計することにより評価できると考えられる。但し、立教大学炉の構造物全体を考えると、実際には2次元モデルでは考慮していない4つの実験孔を有する。Rätyら⁴⁸⁾によるTRIGA-II型炉の中性子束の3次元モンテカルロ計算では、実験孔を空洞とした場合には、実験孔周辺のコンクリートにおける中性子束が比較的高いことを示している。従って、実験孔周辺の構造材は放射能濃度が比較的大きくなる。また、本検討で計算した中性子束は、サーマルカラムに近接する遮蔽コンクリートにおいて高くなっている。放射能インベントリや、このような2次元モデルでは評価が難しい位置から発生する廃棄物の放射能濃度を理論的計算により精度良く評価したい場合には、これらの位置に別途3次元モデルを用いた計算手法による検討が必要になると考えられる。

5.3 放射化計算のまとめ

巨視的実効断面積の計算、中性子束の計算、生成放射能計算の手順で放射化計算を実施した。

*15 ^{14}C の放射能濃度分析値の C/M を5程度と想定すると、N含有量は $150\ \mu\text{g g}^{-1}$ 程度であると推定される。これは本検討におけるNの定量下限値である $10\ \mu\text{g g}^{-1}$ よりも大きい。

2次元の簡易的な r - z 座標系モデルを2種類使用して、DORT コードにより原子炉体系の中性子束を計算した。また、この結果を用いて各サンプリング位置における放射能濃度を ORIGEN-ARP コードにより計算した。サーマルカラムにおける熱中性子束分布の計算結果は実験結果を再現した。アルミニウム合金、炭素鋼及び遮蔽コンクリートでは、構造材組成分析値を反映した組成により計算した核種については良い精度でかつ概ね保守的な放射能濃度計算値が得られた。また、文献値等に基づく組成を用いた場合に比べて改善していることが確認できた。但し、アルミニウム合金では構造材組成分析値を反映したにも拘らず⁶³Niの計算値が過小評価となった。今後、異なる分析法の適用や更なる評価事例の蓄積により、原因が明確になると期待される。また、アルミニウム合金の³Hの計算値は著しい過大評価となったが、これは計算に使用した起源元素 Li の含有量の文献データ²⁰⁾よりも本検討で使用したサンプルにおける含有量がさらに低いためであると考えられる。黒鉛では、構造材組成分析の定量下限値を反映した組成により計算した殆どの核種の放射能濃度は著しい過大評価となった。一方で、黒鉛の¹⁴Cは定量下限値を用いた場合でも過小評価となったが、この原因は不適切な分析法によるものであると推測した。以上のことから、今後更なる検討が必要な核種が一部あるものの、研究炉の解体により発生するアルミニウム合金、炭素鋼及び遮蔽コンクリートの廃棄物の放射能濃度は、構造材組成を適切に評価することにより、良い精度で計算できると期待される。一方で黒鉛では、放射化計算により放射能濃度を精度良く評価するためには更なる検討を要する。

表 5.1 中性子束分布の計算に用いた構造材組成

領域	炉心	上部反射壁	下部反射壁	炉心部黒鉛	炉心タンク / 上部グリッド板 / 底部グリッド / 中央シングル / アルミカバー	側部反射体
密度 (g cm ⁻³)	4.212	1.676	1.421	1.452	2.720	1.650
元素又は核種	原子数密度 (10 ²⁴ cm ⁻³)					
H	4.505 × 10 ⁻²	2.280 × 10 ⁻²	3.470 × 10 ⁻²	2.400 × 10 ⁻²		
¹⁰ B						
¹¹ B						
C		3.532 × 10 ⁻²	3.144 × 10 ⁻²	3.532 × 10 ⁻²		8.273 × 10 ⁻²
N						
O	1.140 × 10 ⁻²	1.140 × 10 ⁻²	1.735 × 10 ⁻²	1.200 × 10 ⁻²		
Na						
Mg						
Al	3.278 × 10 ⁻³	1.408 × 10 ⁻²	6.131 × 10 ⁻³	8.682 × 10 ⁻³	6.071 × 10 ⁻²	
Si						
P						
S						
K						
Ca						
Ti						
V						
Cr						
Mn						
Fe						
Cu						
Zr	2.237 × 10 ⁻²					
²³⁵ U	1.527 × 10 ⁻⁴					
²³⁸ U	6.029 × 10 ⁻⁴					

表 5.1 中性子束分布の計算に用いた構造材組成 (続き)

領域	回転照射 棚受け / 空気	冷却水	アルミニウム タンク ^a	炭素鋼タンク ^a	遮蔽 コンクリート ^a	玉石
密度 (g cm ⁻³)	1.293	1.000	2.720	7.870	2.695	1.760
元素又は核種	原子数密度 (10 ²⁴ cm ⁻³)					
H		6.686 × 10 ⁻²			9.145 × 10 ⁻³	9.178 × 10 ⁻⁴
¹⁰ B						
¹¹ B						
C				4.907 × 10 ⁻⁵		
N	4.269 × 10 ⁻⁵			1.212 × 10 ⁻⁶		
O	1.129 × 10 ⁻⁵	3.343 × 10 ⁻²			4.225 × 10 ⁻²	3.250 × 10 ⁻²
Na					1.090 × 10 ⁻³	1.023 × 10 ⁻³
Mg			7.932 × 10 ⁻⁴		9.049 × 10 ⁻⁴	8.415 × 10 ⁻⁵
Al			5.872 × 10 ⁻²	1.283 × 10 ⁻⁶	3.452 × 10 ⁻³	2.796 × 10 ⁻³
Si					1.177 × 10 ⁻²	1.301 × 10 ⁻²
P				1.476 × 10 ⁻⁶	2.611 × 10 ⁻⁴	
S				1.377 × 10 ⁻⁶	6.557 × 10 ⁻⁵	
K					4.757 × 10 ⁻⁴	1.204 × 10 ⁻³
Ca					2.954 × 10 ⁻³	2.136 × 10 ⁻⁴
Ti			5.034 × 10 ⁻⁵		6.757 × 10 ⁻⁵	2.913 × 10 ⁻⁵
V					3.270 × 10 ⁻⁶	
Cr			1.081 × 10 ⁻⁴	1.780 × 10 ⁻⁶	3.390 × 10 ⁻⁶	
Mn			4.386 × 10 ⁻⁵	9.569 × 10 ⁻⁶	1.110 × 10 ⁻⁵	
Fe			1.249 × 10 ⁻⁴	8.979 × 10 ⁻⁴	5.638 × 10 ⁻³	2.810 × 10 ⁻⁴
Cu			6.624 × 10 ⁻⁵	1.213 × 10 ⁻⁶		
Zr						
²³⁵ U						
²³⁸ U						

^a 密度の測定結果及び構造材組成分析結果を使用した。

表 5.1 中性子束分布の計算に用いた構造材組成 (続き)

領域	モルタル	普通 コンクリート / 基礎 コンクリート	サーマル カラム ^b	ボラル板	重コンクリート ドア	ドアフレーム / 鉄遮蔽
密度 (g cm ⁻³)	2.100	2.340	1.720	2.501	3.800	7.840
元素又は核種	原子数密度 (10 ²⁴ cm ⁻³)					
H	1.178 × 10 ⁻²	9.256 × 10 ⁻³			8.061 × 10 ⁻³	
¹⁰ B				4.089 × 10 ⁻³		
¹¹ B				1.778 × 10 ⁻²		
C			8.623 × 10 ⁻²	5.390 × 10 ⁻³		
N						
O	3.912 × 10 ⁻²	4.253 × 10 ⁻²			3.168 × 10 ⁻²	
Na	6.969 × 10 ⁻²	1.187 × 10 ⁻³			5.894 × 10 ⁻⁴	
Mg	5.739 × 10 ⁻⁴	8.830 × 10 ⁻⁴			5.550 × 10 ⁻⁴	
Al	2.249 × 10 ⁻³	3.385 × 10 ⁻³		4.464 × 10 ⁻²	2.107 × 10 ⁻³	
Si	1.201 × 10 ⁻²	1.315 × 10 ⁻²	1.180 × 10 ⁻⁶		7.565 × 10 ⁻³	
P						
S	7.258 × 10 ⁻⁵	4.959 × 10 ⁻⁵			6.255 × 10 ⁻⁵	
K	5.117 × 10 ⁻⁴	5.548 × 10 ⁻⁴			2.943 × 10 ⁻⁴	
Ca	3.739 × 10 ⁻³	3.211 × 10 ⁻³			2.747 × 10 ⁻³	
Ti	4.622 × 10 ⁻⁵	7.439 × 10 ⁻⁵			3.721 × 10 ⁻⁵	
V						
Cr						
Mn						
Fe	4.407 × 10 ⁻⁴	9.727 × 10 ⁻⁴			2.420 × 10 ⁻²	8.454 × 10 ⁻²
Cu						
Zr						
²³⁵ U						
²³⁸ U						

^b 密度の測定結果を使用した。

表 5.2 放射能濃度評価対象とした領域の微量元素を含む元素組成

領域	アルミニウムタンク	炭素鋼タンク	遮蔽コンクリート	サーマルカラム
元素	重量比 (wt%)			
H			0.57	
Li	0.0000066 ^a	0.00003 ^a	0.00101 ^b	0.00002 ^c
B			0.002	0.00005
C		0.25		100
N		0.0084	0.00217 ^b	0.001 ^c
O			41.8 ^b	
Na		0.0023	1.55	0.0001
Mg	1.2		1.36	0.000008
Al	98.61	0.033	5.76	0.00006
Si	0.8		20.44	0.0032
P		0.05	0.5	
S		0.05	0.13	
Cl		0.004	0.0174 ^b	0.002 ^c
K		0.0012	1.15	
Ca		0.0014	7.32 ^b	
Sc		0.000026	0.00065	
Ti	0.15	0.0002	0.2	
V		0.008	0.0103	0.0012
Cr	0.35	0.17	0.0109	0.000028
Mn	0.15	1.02	0.0377	0.000002
Fe	0.434 ^b	98.9 ^b	19.47 ^b	0.0005 ^c
Co	0.000124 ^b	0.0113 ^b	0.00542 ^b	0.000005 ^c
Ni	0.00215 ^b	0.0435 ^b	0.00471 ^b	0.00002 ^c
Cu	0.262 ^b	0.173 ^b	0.0025	0.00002 ^c
Zn	0.25	0.01	0.0075	
Ga		0.008	0.00088	
As		0.0532	0.00079	
Se		0.00007	0.000092	
Br		0.000085	0.00024	
Rb		0.0048	0.0035	
Sr		0.000015	0.0438	0.000039
Y		0.002	0.00182	
Zr		0.001	0.0071	
Nb	0.00005 ^c	0.00005 ^c	0.00043	
Mo		0.000056	0.00103	
Pd			0.0003	
Ag	0.00005 ^c	0.000114 ^b	0.00002	
Cd			0.00003 ^a	0.00002 ^c
In				0.0000047
Sn			0.0007	
Sb		0.0011	0.00018	
Cs		0.00002 ^a	0.00013	
Ba		0.0273	0.0169 ^b	
La		0.00001	0.0013	
Ce		0.0001	0.00243	
Sm		0.0000017	0.0002	
Eu	0.00005 ^c	0.0000031 ^a	0.00005 ^c	0.000005 ^c
Gd				0.0000005
Tb		0.000045	0.000041	
Dy			0.00023	
Ho		0.00008	0.00009	
Yb		0.0001	0.00014	
Lu		0.00002	0.000027	
Hf		0.000021	0.00022	
Ta		0.000013	0.000044	
W		0.00055	0.00014	
Pb		0.082	0.0061	0.000012
Th		0.000018	0.000221 ^b	
U	0.000091 ^b	0.00002 ^a	0.00005 ^c	0.000005 ^c

^a 分析により定量下限値のみ得られたが、文献等のデータに比べて高いため、文献等のデータを使用している。

^b 分析データを使用している。

^c 分析による定量下限値を使用している。

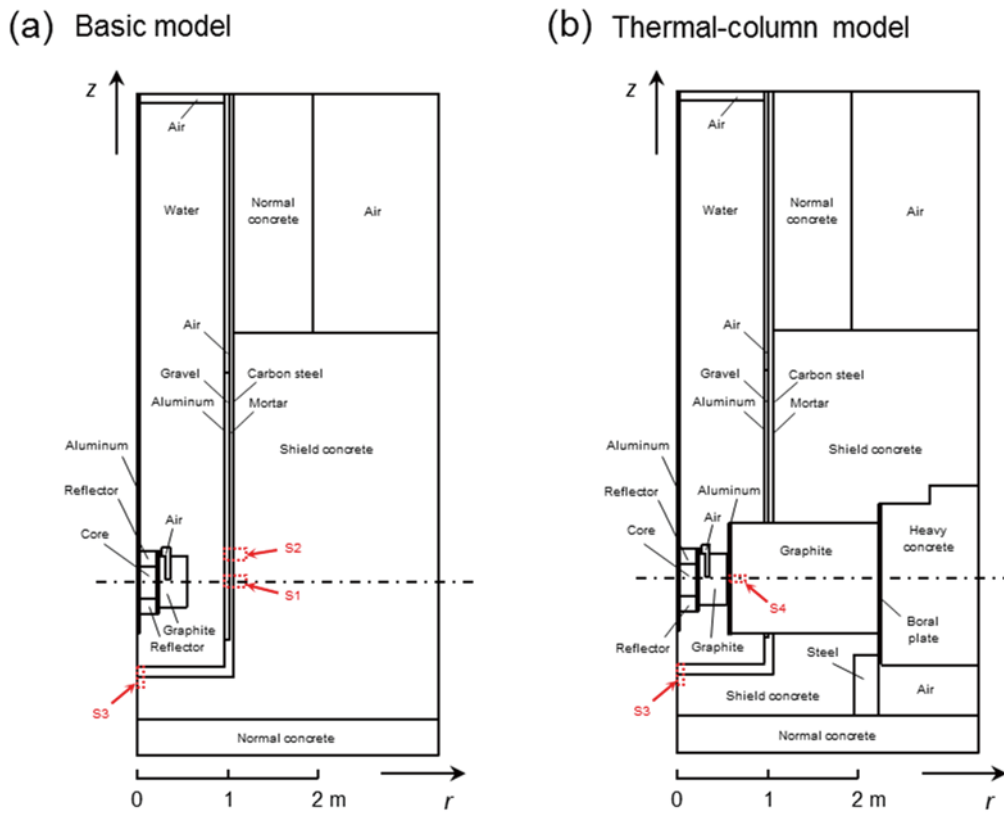
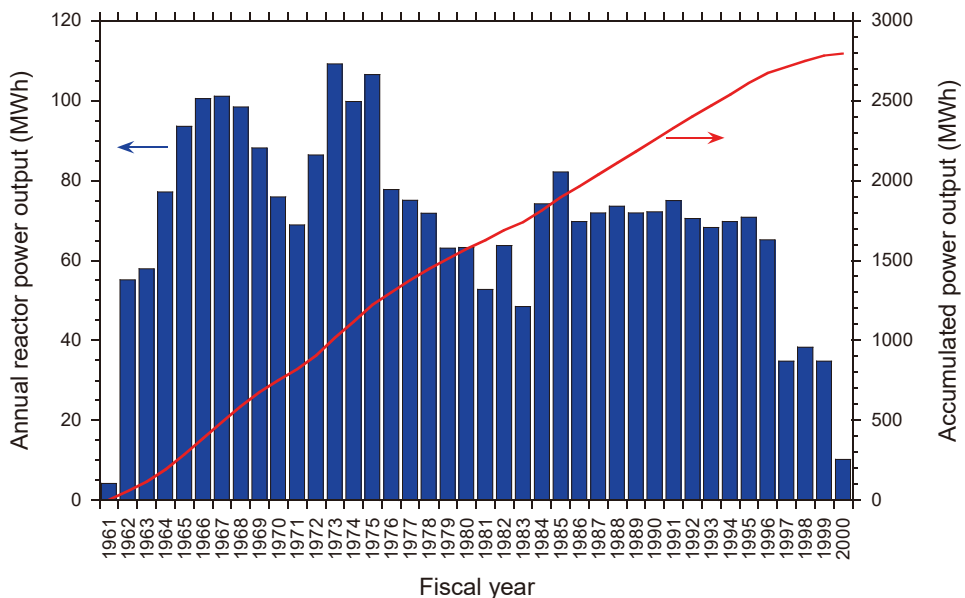


図 5.1 立教大学炉の 2 次元 r - z モデルの概略図

一点鎖線は炉心中心面、点線領域 S1-S4 はサンプリング位置を表す。(a) 基本モデル。炉心からタンク壁方向をモデル化した。(b) サーマルカラムモデル。炉心からサーマルカラム方向をモデル化した。

(a) History of operation



(b) Operating histogram used in calculation

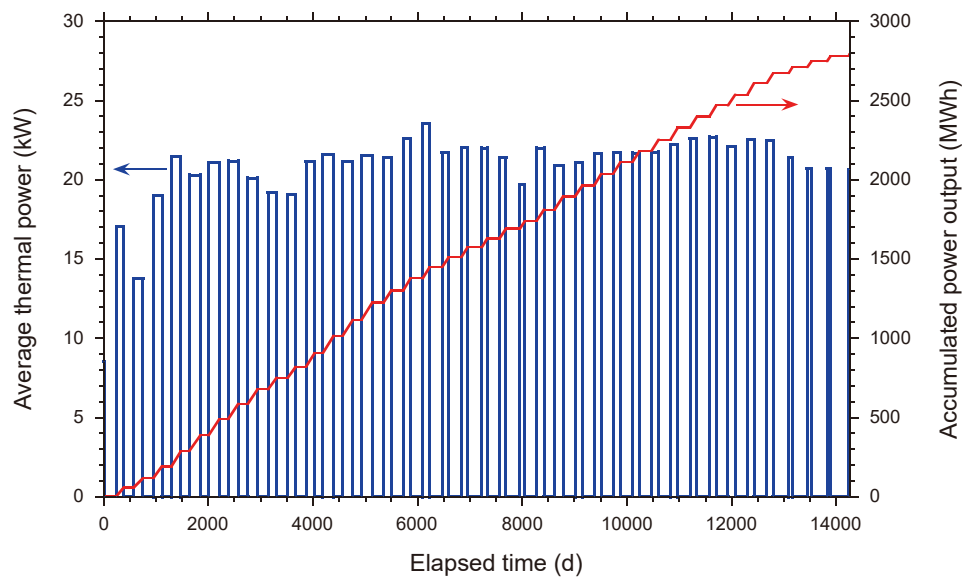


図 5.2 立教大学炉の運転履歴

(a) 年度毎及び運転停止までの積算熱出力量¹²⁾。(b) 計算に用いた運転ヒストグラム。

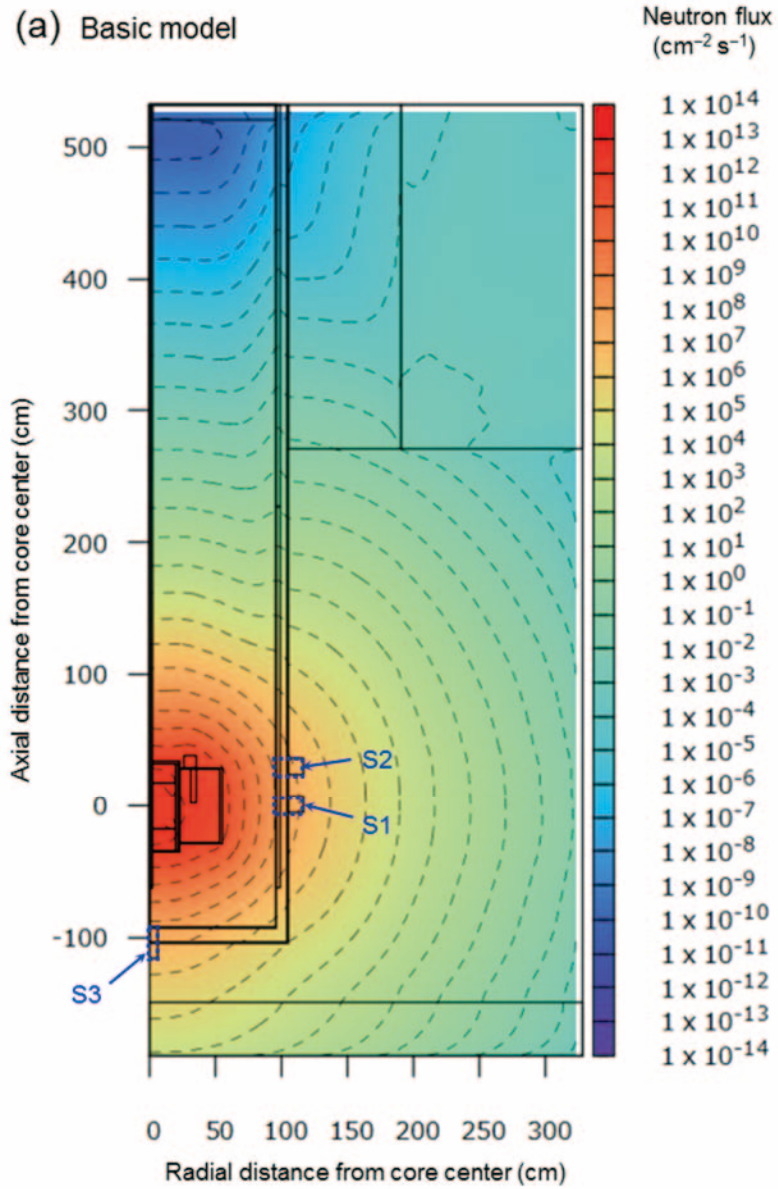


図 5.3 2次元 r - z モデルにおける熱中性子束の等高線図
点線領域 S1-S4 はサンプリング位置を表す。(a) 基本モデル。(b) サーマルカラムモデル。

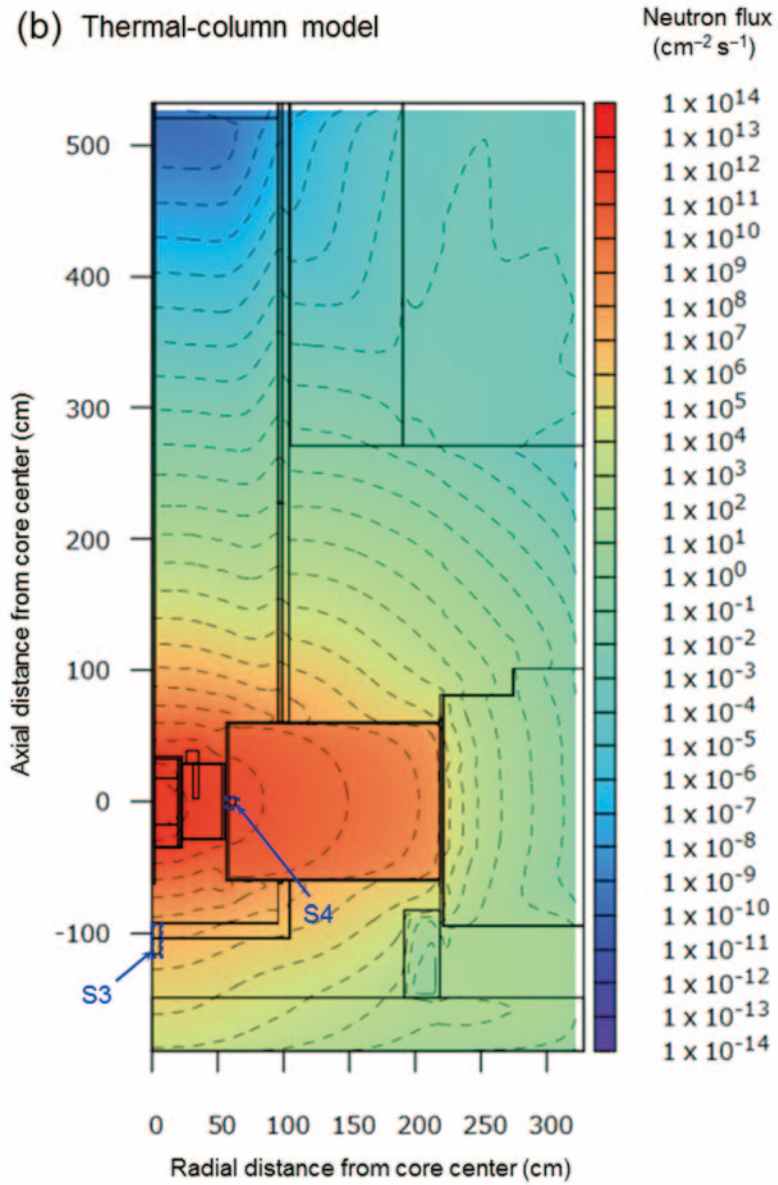


図 5.3 2次元 r - z モデルにおける熱中性子束の等高線図 (続き)
点線領域 S1-S4 はサンプリング位置を表す。(a) 基本モデル。(b) サーマルカラムモデル。

(a) Basic model

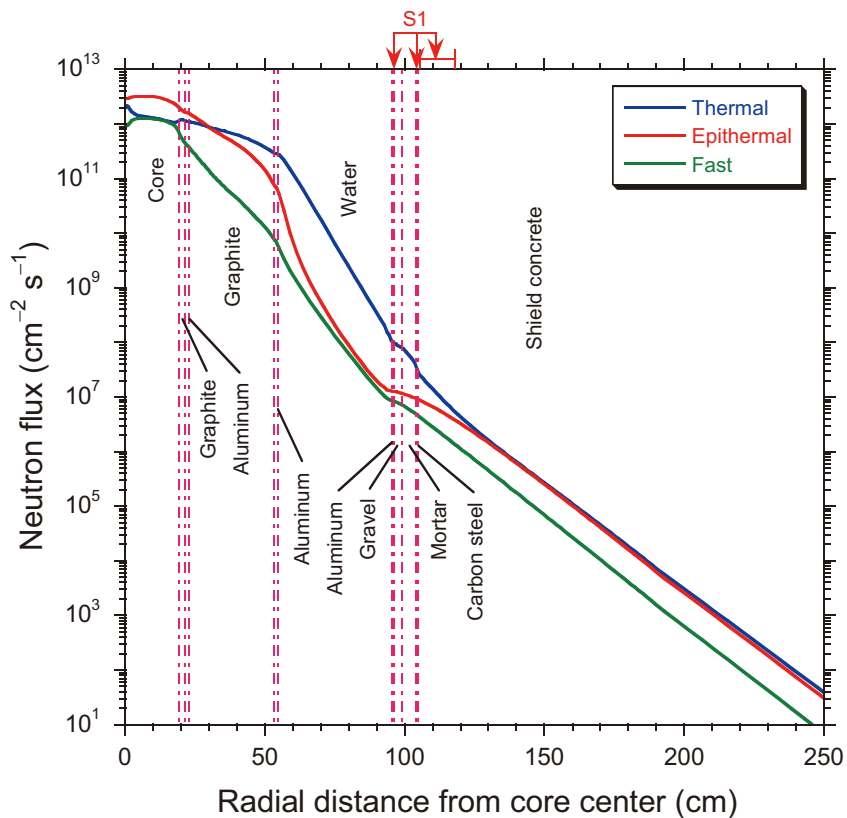


図 5.4 炉心中心面における半径方向の中性子束分布

実線は計算値（3群）であり、炉心から 250 cm までの計算結果を示す。一点鎖線は領域の境界を表す。

(a) 基本モデル。矢印は、実際には円柱軸方向に 10 mm のずれがあるが、サンプリング位置 S1 のアルミニウムタンク、炭素鋼タンク及び遮蔽コンクリートの位置にほぼ対応している。(b) サーマルカラムモデル。

矢印は S4 のサンプリング位置を表す。比較のため、実測値⁴⁴⁾を破線で示した。

(b) Thermal-column model

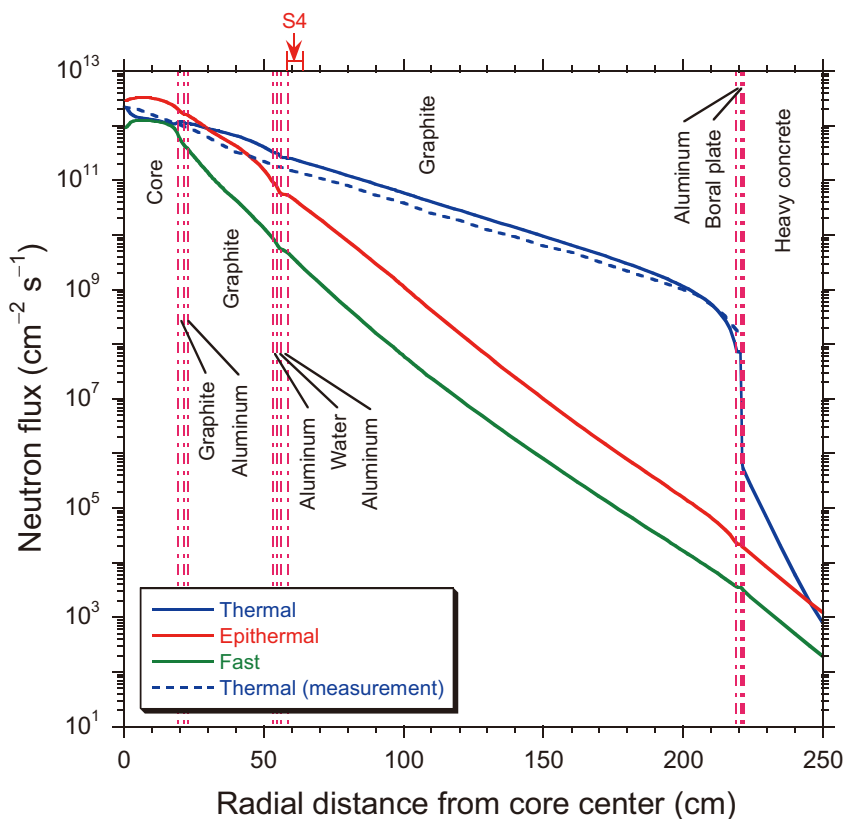


図 5.4 炉心中心面における半径方向の中性子束分布 (続き)

実線は計算値 (3 群) であり、炉心から 250 cm までの計算結果を示す。一点鎖線は領域の境界を表す。

(a) 基本モデル。矢印は、実際には円柱軸方向に 10 mm のずれがあるが、サンプリング位置 S1 のアルミニウムタンク、炭素鋼タンク及び遮蔽コンクリートの位置にほぼ対応している。(b) サーマルコラムモデル。

矢印は S4 のサンプリング位置を表す。比較のため、実測値⁴⁴⁾を破線で示した。

(a) Basic model

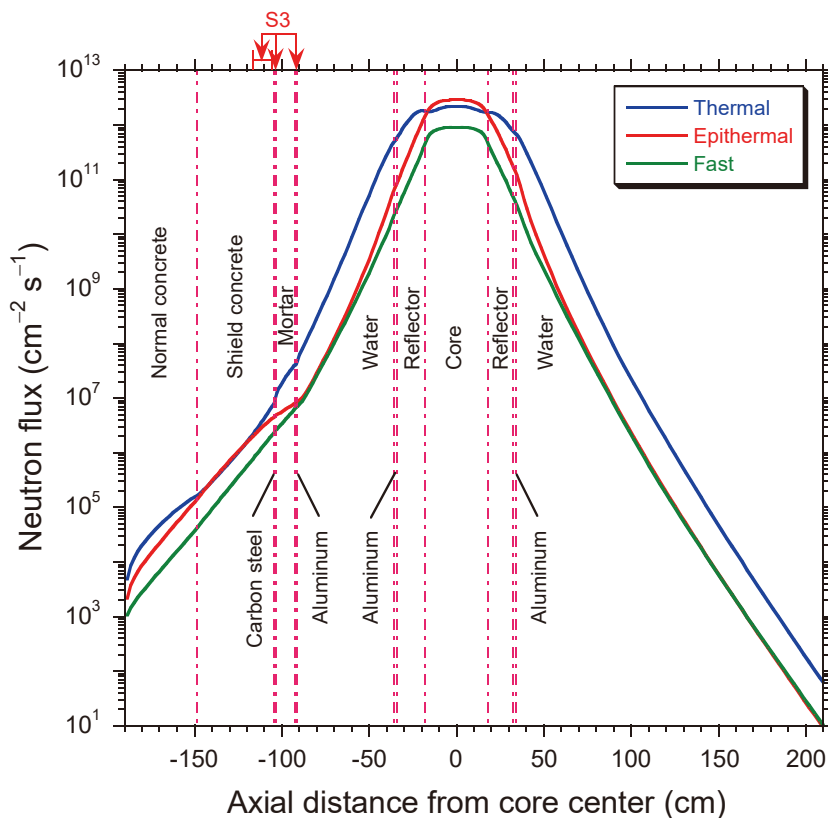


図 5.5 炉心中心軸における円柱軸方向の中性子束分布

実線は計算値（3群）であり、炉心の 190 cm 下部から 210 cm 上部までの計算結果を示す。一点鎖線は領域の境界を表す。図中に示した領域又は材質は、炉心の 54.9 cm 下より高い位置においては、厳密には直径 3.8 cm の中央シンプル領域（アルミ）のすぐ外側のものを表す。矢印は S3 のサンプリング位置を表す。

(a) 基本モデル。(b) サーマルカラムモデル。

(b) Thermal-column model

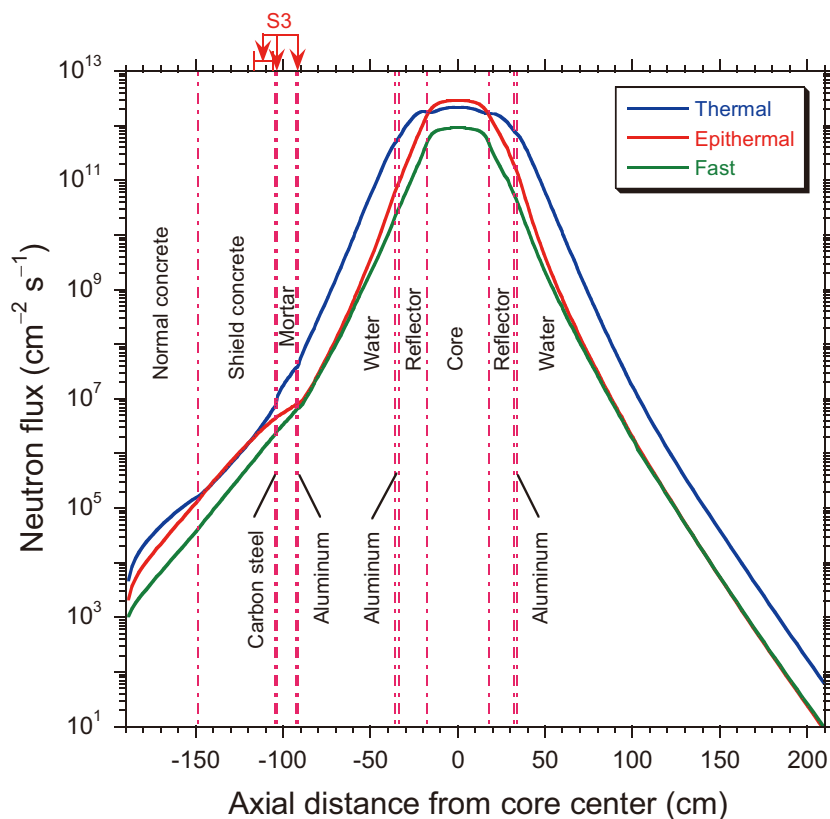


図 5.5 炉心中心軸における円柱軸方向の中性子束分布 (続き)

実線は計算値 (3 群) であり、炉心の 190 cm 下部から 210 cm 上部までの計算結果を示す。一点鎖線は領域の境界を表す。図中に示した領域又は材質は、炉心の 54.9 cm 下より高い位置においては、厳密には直径 3.8 cm の中央シンプル領域 (アルミ) のすぐ外側のものを表す。矢印は S3 のサンプリング位置を表す。

(a) 基本モデル。(b) サーマルカラムモデル。

6. まとめ

研究炉施設の解体廃棄物に対する共通的な放射能濃度評価方法の構築に向けて、立教大学の TRIGA-II 型炉を対象として理論計算法の適用性に関する検討を行った。立教大学炉からサンプリングしたアルミニウム合金、炭素鋼、遮蔽コンクリート及び黒鉛のサンプルに対し、構造材組成分析と放射能分析を実施した。これらの分析には同一のサンプルを使用した。分析対象元素及び核種は、文献データ等に基づく予備的な放射化計算により、放射能への寄与が大きい核種とその起源元素を中心に選定した。得られた構造材組成分析結果は放射化計算に反映した。放射化計算結果は精度を評価するために放射能分析結果と比較した。

構造材組成分析においては、アルミニウム合金では 9 元素、炭素鋼では 10 元素、遮蔽コンクリートでは 13 元素、黒鉛では 10 元素の分析を実施した。有意な分析値が得られた元素のうち、一部についてはタンク壁部と底部において濃度が大きく異なるという不均一性が見られた。得られた分析結果を文献データと比較したところ、アルミニウム合金では元素含有量の傾向が一致し、炭素鋼では分析結果が概ね一致した。遮蔽コンクリートでは原料に基づく文献データとの差異が見られ、黒鉛では分析対象とした全ての元素が定量下限値未満となった。

放射能濃度を測定した核種はアルミニウム合金について ^3H 、 ^{60}Co 、 ^{63}Ni 、炭素鋼について ^3H 、 ^{60}Co 、 ^{63}Ni 、 ^{152}Eu 、遮蔽コンクリートについて ^3H 、 ^{60}Co 、 ^{152}Eu 、黒鉛について ^3H 、 ^{14}C 、 ^{60}Co 、 ^{63}Ni 、 ^{152}Eu であった。炭素鋼の ^3H 及び ^{152}Eu を除いた全ての核種について分析値が得られた。特に黒鉛は、構造材組成分析では全ての元素が定量下限値未満であったにも拘らず、放射能分析値が得られ、この 99%以上が ^{14}C であった。複数箇所のサンプルを分析したアルミニウム合金、炭素鋼及び遮蔽コンクリートでは、異なるサンプリング位置の同じ構造材及び核種の放射能比は概ね一定の範囲であり、これは主に熱中性子束の比を反映していると考察した。

放射化計算は、巨視的実効断面積の計算、中性子束の計算、生成放射能計算の手順で実施した。中性子束の計算には DORT コード、放射能濃度計算には ORIGEN-ARP コードを使用した。計算体系として、2次元の簡易的な r - z 座標系モデルを 2 種類使用した。サーマルカラムにおける熱中性子束分布の計算結果は実験結果を再現した。アルミニウム合金、炭素鋼及び遮蔽コンクリートでは、構造材組成分析値を反映した組成により計算した核種については概ね保守的かつ精度の良い放射能濃度計算値が得られ、文献値等に基づく組成を用いた場合に比べて改善していることが確認できた。但し、アルミニウム合金では、構造材組成分析値を反映したにも拘らず ^{63}Ni の計算値が過小評価となったことから、この点に留意して計算による評価を行う必要がある。黒鉛では、構造材組成分析の定量下限値を反映した組成により計算した殆どの核種の放射能濃度は著しい過大評価となった。一方で、定量下限値を用いた場合でも黒鉛の ^{14}C は過小評価となったが、これは不適切な N の分析法によるものであると推測した。

以上により、今後更なる検討が必要な核種が一部あるものの、研究炉の解体により発生するアルミニウム合金、炭素鋼及び遮蔽コンクリートの廃棄物の放射能濃度は、それらの構造材組成を適切に評価することによって、理論計算法により良い精度でかつ保守的に評価できる見通しを得ることができた。但し黒鉛については、構造材組成分析では定量下限値未満であった元素を起源とする全ての測定対象核種の放射能分析値が得られたこと、最も放射能分析値が高か

った ^{14}C の起源元素である N の分析が特に困難であることから、放射化計算よりも黒鉛サンプルの放射能分析による評価の方が容易かつ信頼できる場合もあると考えられる。また、2次元モデルでは評価が難しい位置についての放射能濃度評価の際には、別途3次元的な計算手法による検討が必要になると考えられる。

謝 辞

本検討において原子炉構造材のサンプリングは立教大学原子力研究所の TRIGA-II 型炉の廃止措置計画の一部として実施されました。立教大学原子力研究所の丹沢富雄氏及び関係者の方々のご協力に感謝いたします。また、コアボーリングを実施して頂いた三洋工業株式会社及び千代田メンテナンス株式会社の作業の方々に感謝いたします。構造材サンプルは株式会社 化研において分析されました。分析作業を実施頂いた方々に感謝いたします。

本報告書をまとめるにあたり、有益なコメントを頂きました原子力機構安全研究センターの島田太郎氏及び埋設事業センターの佐々木紀樹氏に感謝いたします。

参考文献

- 1) 辻 智之 他: “JPDR 保管廃棄物に対する放射能濃度評価方法の検討 (1)”, JAEA-Technology 2012-045 (2013) 37p.
- 2) 辻 智之 他: “JPDR 保管廃棄物に対する放射能濃度評価方法の検討 (2)”, JAEA-Technology 2015-009 (2015) 46p.
- 3) 星野 譲 他: “照射後試験施設から発生する廃棄物の放射能評価方法の検討”, JAEA-Technology 2015-015 (2015) 96p.
- 4) 辻 智之 他: “照射後試験施設から発生する廃棄物の放射能評価方法の検討 (2)”, JAEA-Technology 2017-010 (2017) 75p.
- 5) 林 宏一 他: “JRR-2 及び JRR-3 保管廃棄物に対する放射能濃度評価方法の検討”, JAEA-Technology 2018-001 (2018) 66p.
- 6) 日本原子力学会: “日本原子力学会標準 ピット処分及びトレンチ処分対象廃棄物の放射能濃度決定に関する基本手順: 2011”, AESJ-SC-F022:2011 (2012) 193p.
- 7) International Atomic Energy Agency: “Strategy and methodology for radioactive waste characterization”, IAEA-TECDOC-1537 (2007) 169p.
- 8) 日本原子力学会 「原子力アゴラ」特別専門委員会 研究炉等の役割検討・提言分科会: “我が国における研究炉等の役割について 中間報告書”, (2016) 45p.
- 9) 助川 武則 他: “原子炉施設廃止措置のための残存放射能インベントリ評価コードシステム RADO”, JAEA-Data/Code 2008-009 (2008) 57p.
- 10) 坂井 章浩 他: “研究施設等廃棄物の埋設処分における安全評価上重要核種の選定 (その 3) -RI・研究所等廃棄物に係る主要放射性廃棄物発生施設毎の重要核種の予備評価-”, JAEA-Technology 2010-021 (2010) 152p.
- 11) International Atomic Energy Agency: “Data analysis and collection for costing of research reactor decommissioning”, IAEA-TECDOC-1832 (2017) 110p.
- 12) 原澤 進: “立教大学における研究炉廃止措置実績”, デコミッションング技報, no. 33, pp. 13-25 (2006).
- 13) 山本 健土 他: “炉内構造物の放射化核種の主要な生成経路 (共同研究)”, JAEA-Research 2013-038 (2014) 88p.
- 14) 天澤 弘也 他: “研究施設等廃棄物浅地中処分施設の概念設計”, JAEA-Technology 2012-031 (2012) 338p.
- 15) 平成十七年文部科学省令第四十九号: “試験研究の用に供する原子炉等に係る放射能濃度についての確認等に関する規則” (2005).
- 16) H. D. Oak et al.: “Technology, safety and costs of decommissioning a reference boiling water reactor power station (appendices)”, NUREG/CR-0672-vol. 2 (1980) 666p.
- 17) J. C. Evans et al.: “Long-lived activation products in reactor materials”, NUREG/CR-3474 (1984) 167p.
- 18) 川太 徳夫 他: “「ふげん」発電所の主要構造材元素組成分析”, 日本原子力学会和文論文誌,

- vol. 9, no. 4, pp. 405-418 (2010).
- 19) 助川 武則 他: “原子炉の廃止措置における残存放射能評価方法の検討 (受託研究)”, JAERI-Tech 2001-058 (2001) 81p.
 - 20) 岸本 克己 他: “中性子束分布計算に3次元体系を導入した JRR-2 原子炉本体放射化放射能評価”, JAERI-Tech 2005-016 (2005) 83p.
 - 21) 日本工業規格: “アルミニウム及びアルミニウム合金の板及び条”, JIS H 4000:2014 (2014).
 - 22) 今井 久: “廃止措置における原子炉用黒鉛の処理・処分”, デコミッションング技報, no. 10, pp. 13-22 (1994).
 - 23) 原子力環境整備センター: “原子力発電所の運転及び解体に伴い発生する廃棄物の物量、性状等に関する資料集” (1998) 40p.
 - 24) 日本工業規格: “固体の密度及び比重の測定方法”, JIS Z 8807:2012 (2012).
 - 25) 日本工業規格: “アルミニウム及びアルミニウム合金の誘導結合プラズマ発光分光分析方法”, JIS H 1307:1993 (1993).
 - 26) 日本工業規格: “鉄及び鋼-ICP 発光分光分析法- 第1部: 多元素定量方法-酸分解・二硫酸カリウム融解法”, JIS G 1258-1:2014 (2014).
 - 27) 環境省 水・大気環境局: “底質調査方法”, (2012) 417p.
 - 28) 日本工業規格: “セメントの化学分析方法”, JIS R 5202:2010 (2010).
 - 29) 核燃料・炉材料等分析研究委員会: “高純度黒鉛の分析 -標準試料の製作と分析方法の開発-”, JAERI-M 93-013 (1993) 111p.
 - 30) 橋谷 博 他: “原子炉用黒鉛中の不純物元素の分析化学的研究”, 分析化学, vol. 35, no. 11, pp. 920-925 (1986).
 - 31) T. D. Burchell: “Graphite: properties and characteristics”, Comprehensive nuclear materials, Edited by R. J. M. Konings, pp. 285-305 (2012).
 - 32) A. V. Bushuev et al.: “Radionuclide characterization of graphite stacks from plutonium production reactors of the Siberian groups of chemical enterprises”, Proceedings of the IAEA Technical Committee Meeting on Nuclear Graphite Waste Management, Manchester, United Kingdom, October 18-20, pp. 1-16 (1999).
 - 33) R. Takahashi et al.: “Investigation of morphology and impurity of nuclear grade graphite, and leaching mechanism of carbon-14”, Proceedings of the IAEA Technical Committee Meeting on Nuclear Graphite Waste Management, Manchester, United Kingdom, October 18-20, pp. 1-15 (1999).
 - 34) T. Miyatani et al.: “Quantitative analysis of trace amounts of impurities contaminating pure graphite with ICP-MS and metal atomizer FLAAS”, Proceedings of a Specialists Meeting, Tokai, Japan, September 9-12, IAEA-TECDOC-690, pp. 304-308 (1993).
 - 35) 亀尾 裕 他: “研究施設等廃棄物に含まれる放射性核種の簡易・迅速分析法 (分析指針)”, JAEA-Technology 2009-051 (2009) 81p.
 - 36) 文部科学省: “放射性炭素分析法”, 放射能測定法シリーズ 25 (1993) 83p.
 - 37) 日本工業規格: “鉄及び鋼-ニッケル定量方法”, JIS G 1216:1997 (1997).
 - 38) W. A. Rhoades and R. L. Childs: “The DORT two-dimensional discrete ordinates transport code”,

- Nucl. Sci. Eng. vol. 99, no. 1, pp. 88-89 (1988).
- 39) S. M. Bowman et al.: “ORIGEN-ARP: a new Windows PC package for ORIGEN users”, Proceedings of the Biennial RPSD Topical Meeting, Santa Fe, New Mexico, United States of America, April 14-18 (2002).
- 40) 長谷川 明: “JENDL-3.2 に基づく炉定数 中性子 300 群 γ 線 104 群 JSSTD L-300 ライブラリーについて (JSSTD L 98 version) ”, 核データニュース, no. 62, pp. 43-52 (1999).
- 41) T. Nakagawa et al.: “Japanese evaluated nuclear data library version 3 revision-2: JENDL-3.2”, J. Nucl. Sci. Technol. vol. 32, no. 12, pp. 1259-1271 (1995).
- 42) 黒澤 亮平 他: “研究施設等廃棄物の放射能インベントリ評価に用いる中性子束計算ツールの整備”, JAEA-Data/Code 2015-005 (2015) 82p.
- 43) B. E. Watt: “Energy spectrum of neutrons from thermal fission of U^{235} ”, Phys. Rev. vol. 87, no. 6, pp. 1037-1041 (1952).
- 44) 原子力施設デコミッションング研究協会: “平成 11 年度原子炉解体高度化技術開発 成果報告書 (その 2) -核燃料施設等解体技術総合調査-” (2000).
- 45) K. H. Beckurts and K. Wirtz: “Neutron physics”, Translated by L. Dresner, Springer-Verlag Berlin Heidelberg GmbH (1964) 444p.
- 46) K. Takamiya et al.: “Excitation function for $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ reaction in neutron energy range up to 15 MeV”, Appl. Radiat. Isot. vol. 66, no. 10, pp. 1321-1324 (2008).
- 47) A. Rätty et al.: “Preliminary waste characterization measurements in FiR 1 TRIGA research reactor decommissioning project”, Nucl. Technol. vol. 203, no. 2, pp. 205-220 (2018).
- 48) A. Rätty et al.: “FiR 1 TRIGA activity inventories for decommissioning planning”, Nucl. Technol. vol. 194, no. 1, pp. 28-38 (2016).

国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質량	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の)	1
比透磁率 ^(b)	(数字の)	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(e)	1 ^(b)	m ² /m ²
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m ² kg s ⁻²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ² kg ⁻¹ s ⁴ A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m ² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m ² kg s ⁻² A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg s ⁻² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光照射量	ルーメン	lm	cd sr ^(e)	cd
放射線量	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg	m ² s ⁻²
酸素活性化	カタール	kat		s ⁻¹ mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
 (b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。
 (c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
 (d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
 (e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
 (f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
 (g) 単位シーベルト (PV, 2002, 70, 205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ = s ⁻¹
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² = s ⁻²
熱流密度, 放射照度	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
熱容量, エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
電表面電荷	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	m ³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射線強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ = m ² kg s ⁻³
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)	m ² m ⁻² kg s ⁻³ = kg s ⁻³
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ³ s ⁻¹ mol

表5. SI 接頭語

乗数	名称	記号	乗数	名称	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ⁻¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI単位による値
分	min	1 min=60 s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10 800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648 000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852m
バイン	b	1 b=100fm ² =(10 ¹² cm ²) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的關係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	B	
デシベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フオト	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(a)	Oe	1 Oe _e =(10 ³ /4π)A m ⁻¹

(a) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「△」は対応關係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1 メートル系カラット=0.2 g=2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858J (「15°C」カロリ), 4.1868J (「IT」カロリ), 4.184J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1μm=10 ⁻⁶ m

