

共同研究成果報告書

長半減期放射性核種等の特性評価方法に関する研究

原子力規制委員会原子力規制庁

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

国立大学法人東京大学

国立大学法人東京科学大学

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構

国立大学法人京都大学

令和7年7月

1. 研究目的

放射性核種分析方法の妥当性を確認するためには、多様な測定・分析方法を持つ不確かさの把握等の技術的知見を計画的かつ効率的に蓄積する必要がある。また、廃棄物等からの核種浸出挙動を把握し、環境中での核種移行現象を科学的に理解するためには、放射性核種の化学形態、溶解度等の定量評価に関する知見を蓄積する必要がある。

本研究では、性状が様々な試料に含まれる長半減期放射性核種等の分析について、複雑な多段階処理等を考慮しても、十分な信頼性が確保された結果であることを確認するための科学的・技術的知見を蓄積するとともに、最新分析技術を活用して放射性核種の化学形態等の定量評価に関する実験データを取得する。

2. 研究内容

放射性核種分析は、試料の採取・特性評価、試料からの対象核種の溶解等の前処理、濃縮、化学分離、測定等の要素技術から構成される。本研究は、これら要素技術に関する既往知見を基に、性状が様々な試料に含まれる長半減期放射性核種等（ α 核種、放射化核種等）の分析方法に関する実験的研究を実施し、各要素技術の信頼性確保に係る技術的留意点を抽出した。また、それぞれの要素技術の特徴を踏まえた上で、放射性核種分析方法に係る適用範囲や分析精度を整理するとともに、精度向上等のために必要な技術的課題を抽出した。分析においては、各元素（核種）の化学形態並びに化学平衡論及び速度論的現象を考慮し、これらに依存するメカニズムを理解することで、多様な試料に対する分析の信頼性の更なる向上を目指すとともに、放射性核種の化学形態等の定量評価に関するデータ取得方法を検討した。

3. 実施方法

3.1 試料の採取・前処理方法の検討

性状が様々な試料に含まれる長半減期放射性核種等の分析では、適切な試料の採取及び溶解等の前処理方法を検討する必要がある。当該核種を含む環境試料等を用いて、各試料及び測定対象元素の特性を踏まえ、適切な前処理の手順と条件を検討した。

3.2 濃縮・化学分離方法の検討

試料及び測定対象元素の特性を踏まえ、適切な前処理方法によって溶液化した試料を用いて、精密な測定を実施するためには、測定対象元素を化学的に分離し、濃度が薄い場合は濃縮する必要がある。長半減期放射性核種の ^{79}Se を分析するための濃縮・化学分離方法を検討した。

3.3 核種分析方法の検討

比放射能が低い長半減期核種の分析では、放射線計測を用いるよりも、信号強度が原子数

に比例する分析方法である蛍光 X 線分析及び誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) の方が有効である。このうち、ICP-MS は高感度で精密な分析方法として極めて有効であるが、初めから精密な分析ができるわけではなく、試料に含まれる元素を大まかに把握する必要がある。このような精密分析を実施するための試料選別や分析の戦略を検討するためのスクリーニング分析として蛍光 X 線分析が適している。また、同位体比を精密に分析するためには表面電離型質量分析法 (TIMS) 及び多重検出器型 ICP-MS (MC-ICP-MS) が適している。本研究では、長半減期核種である ^{135}Cs 、 ^{129}I 、U 等が含まれている環境試料等を用いて同位体比等を精密分析するための実験的検討を行った。

また、廃止措置の本格化に伴い、ケーブルも今後クリアランスの対象物になると予想され、ケーブルがクリアランス対象物となった際、放射能濃度評価で留意すべき核種に ^{63}Ni がある。 ^{63}Ni の放射能濃度は、実測の他にケーブルの使用履歴に基づく放射化計算によって求める場合がある。しかし、熱中性子領域の $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$ の反応断面積は、評価済核データライブラリ間で違いがみられる。本研究では、実験的に $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$ の反応断面積を求めるために、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JRR-3 炉を利用した中性子放射化分析を実施し、放射能濃度評価精度の検討を行った。

3.4 化学形態及び溶解度の定量方法の検討

瓦礫やスラッジ等の固体廃棄物の変質及び溶出により汚染水中で生成する微小なコロイド状物質は不安定であるため、コロイド状物質をその状態を維持したまま特性を評価するための直接分析方法として単一粒子 ICP-MS 技術の適用性を検討した。また、固体試料の化学形態定量方法については、レーザーアブレーション分子同位体分光法による検討を実施した。さらに、ゼオライト土のうの特性評価については、ゼオライトへの溶質吸着特性や分散凝集動態を理解するために重要な表面荷電特性測定実験を行い、また、ゼオライトの加熱処理における Cs 揮発開始温度の測定方法に係る実験的検討を行った。

4. 研究実施分担

項目	甲	乙	丙	丁	戊	己
(1) 試料の採取・前処理方法の検討	○	◎		○		
(2) 濃縮・化学分離方法の検討	◎	○		○		
(3) 核種分析方法の検討						
予備分析・U 等の実験	○				◎	
元素組成・同位体分析 (TIMS)	○			◎		
元素組成・同位体分析 (ICP-MS)	○	○	◎			
微小部分分析	○	◎				
(4) 化学形態及び溶解度の定量方法の検討	◎		○	○		◎

甲 原子力規制委員会原子力規制庁

- 乙 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
 丙 国立大学法人東京大学
 丁 国立大学法人東京科学大学
 戊 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構
 己 国立大学法人京都大学
 (◎：主担当、○：副担当)

5. 共同研究参加者

氏名	所属部局・職名	本研究における役割
高橋宏明	原子力規制委員会原子力規制庁 長官官房技術基盤グループ放射線・廃棄物研究部門 主任技術研究調査官	研究の統括
大塚楓	同 上席技術研究調査官	固体廃棄物からの核種浸出挙動
佐藤由子	同 主任技術研究調査官	固体廃棄物の変質挙動
古田美憲	同 技術研究調査官	処分対象物の放射能濃度評価精度の検討
深井 恵	同 副主任技術研究調査官	化学分離・核種分析方法の検討
山本康太	同 技術研究調査官	化学形態を考慮した同位体分析方法の検討
澁谷憲悟	同 上席技術研究調査官	クリアランス対象物の放射能濃度評価精度の検討
仲宗根峻也	同 技術研究調査官	クリアランス対象物の放射能濃度評価精度の検討
武田聖司	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 安全研究センター 研究主席	研究の統括
島田亜佐子	同 研究主幹	難測定核種の溶解方法等に係る留意点抽出、微量元素分析
本多真紀	同 研究員	長半減期核種等の分析精度向上に関する検討
大平早希	同 職員	溶解法等の検討

コリジョン・リアクションセル搭載 MC-ICP-MS (MS/MS MC-ICP-MS) による高感度 ^{129}I 測定法については、 ^{129}I と同質量数の ^{129}Xe が測定を妨害する度合いを低減することに成功するとともに、新たな課題を抽出した⁽⁸⁾。

クリアランス対象物の放射能濃度評価精度の検討については、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の JRR-3 HR-1 にて中性子照射試験を実施し、照射キャプセル内における熱中性子フルエンス率の分布を評価し、熱中性子フルエンス率がキャプセル上部から下部にかけて 6~8%減少している傾向を得た。また、熱中性子フルエンス率の算術平均値は、 6.79×10^{13} であり、JRR-3 HR-1 の熱中性子フルエンス率の最大値の公称値 (9.6×10^{13}) と比較して概ね同程度の値であった。今回得られた成果については、今後同設備を利用して実施予定のケーブルを対象とした放射能濃度評価精度に係る中性子放射化試験に活用する⁽⁹⁾。

7.4 化学形態及び溶解度の定量方法の検討

単一粒子 ICP-MS による Zr コロイドの定量方法については、単一の Zr コロイド粒子中の 3 種類の Zr 同位体を同時検出することに成功した。

固体試料のレーザーアブレーション分子同位体分光装置による化学形態定量方法については、3 種類の鉄化合物を用いて検討し、Fe-O 結合の発光の有無を確認した。このような発光現象を化学形態定量法に適用するためには、発光強度の濃度依存性等の課題を検討する必要がある。

ゼオライト土のうの特性評価については、東京電力福島第一原子力発電所での汚染水対策に用いられたゼオライトのゼータ電位及びセシウムイオン交換特性に係る実験的検討を行い、溶質吸着特性や分散凝集動態を理解するために必要なデータを取得した⁽¹⁰⁾。また、同じゼオライト試料を用いて、熱重量示差熱分析／誘導結合プラズマ質量分析法 (TG-DTA/ICP-MS) によるゼオライト中吸着 Cs の揮発過程の測定方法を独自に開発することで、加熱処理における Cs 揮発開始温度の取得に成功した⁽¹¹⁾。

8. 公表成果一覧

- 1 Shimada, A., Tsukahara, T., Nomura, M., Takeda, S., "Development of Cs separation methods from large amounts of soil samples to determine the $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ isotope ratio", J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 333, No.12, 6297, 2024.
doi:10.1007/s10967-024-09749-3
- 2 島田亜佐子、武田聖司、高橋宏明、「海底堆積物中の Pu 及び Am の分析に与える前処理の影響」、日本分析化学会第 85 回分析化学討論会、令和 7 年
- 3 Shimada, A., Tsukahara, T., Nomura, M., Shimada, T., Takeda, S., Takahashi, H., "Regional distribution and isotope ratios of radiocesium from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station and global fallout in Tokai-mura", submitted.
- 4 Shimada, A., Xu, J., Tsukahara, T., Nomura, M., Takada, S., Takahashi, H., "First

- Measurement of $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ isotope ratio in Japanese soil before the accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station", 6Th International Conference on Radioecology & Environmental Radioactivity Book of Abstracts, 2024.
- 5 Nomura, M., Park, K. C., Takahashi, H., Tsukahara, T., "Comparative evaluation of uranium isotope ratios by peak-jumping and static multi-collector measurements in thermal ionization mass spectrometry", International Journal of Mass Spectrometry, Vol. 503, 117277, 2024. doi:10.1016/j.ijms.2024.117277
 - 6 山本康太、大野剛、北村豪、高橋宏明、平田岳史、「多重検出器型 ICP 質量分析計を用いた東京湾堆積物中人為的ウランの同位体分析及び起源識別」、日本放射化学会第 67 回討論会講演、令和 5 年
 - 7 Yamamoto, K., Ohno, T., Kitamura, G., Takahashi, H., Hirata, T., "Deciphering the uranium isotopic signature of coastal water and sediments from Tokyo Bay using a multi-collector inductively coupled plasma mass spectrometer", Environmental Technology & Innovation, Vol 36, 103761, 2024. doi:10.1016/j.eti.2024.103761
 - 8 山本康太、阿瀬貴博、横山祐典、高橋宏明、「MS/MS MC-ICP-MS を用いた ^{129}I 分析の課題」、第 22 回同位体科学研究会講演、令和 7 年
 - 9 仲宗根峻也、吉居大樹、澁谷憲悟、柚木彰、酒井宏隆、島田太郎、真鍋征也、松本哲郎、「Cu-63(n, p)Ni-63 の生成断面積の測定 (1) 金の放射化を利用した照射キャプセル内における熱中性子照射量の空間分布測定」、第 61 回アイソトープ・放射線研究発表会、令和 6 年
 - 10 佐藤由子、高橋宏明、塚原剛彦「東京電力福島第一原子力発電所汚染水対策に用いられたゼオライトのゼータ電位及びセシウムイオン交換特性」、連合年会 2023 (第 36 回日本イオン交換研究発表会・第 42 回溶媒抽出討論会) 講演、令和 5 年
 - 11 山本康太、佐藤由子、平田岳史、高橋宏明、「TG-DTA/ICP-MS によるゼオライト中吸着 Cs の揮発過程のオペランド観測」、第 6 回放射性廃棄物固化体討論会講演、令和 6 年