福島第一原子力発電所において採取された放射性試料の分析
(4) 硝酸溶液系における Ni-63 分析法の開発

Characterization of radioactive samples at Fukushima Daiichi NPS site

(4) Development of determination method for Ni-63 with nitric acid solution

*本山 李沙[1,2]，比内 浩[1,2]，駒 義和[1,2]，柴田 淳広[1,2]

[1] 日本原子力研究開発機構 (JAEA)，[2] 国際廃炉技術研究開発機構 (IRID)

東京電力福島第一原子力発電所（1F）にて発生した廃棄物の処理・処分に向けた性状把握のため、水処理二次廃棄物や汚染水の放射化学分析を行っている。β 線放出核種である ^{63}Ni について、硝酸溶液系における分析法を開発した。

キーワード：福島第一原子力発電所，放射化学分析，^{63}Ni

1. 緒言

1F にて発生した廃棄物の処理処分の安全評価において考慮すべき主要な核種の一つとして ^{63}Ni（$T_{1/2}$: 100.1 y, β^- : 66.9 keV (100%)）[1]が挙げられている[2]。β 核種分析では、測定に際し共存核種（妨害核種）の分離が必要である。従来法[3]では塩酸溶液での陰イオン交換で Ni と Co 等を分離し、Ni-resin で Ni を精製しているが、ステンレス材料設備での分析時にハロゲン系試薬の使用を避ける必要があり、硝酸溶液系での前処理フローが必要となる。硝酸溶液では錯形成能の違いから陰イオン交換での Ni と Co 等との分離ができない。1F 廃棄物に観察される ^{63}Ni の妨害核種として ^{90}Sr, ^{90}Y (^{90}Sr の子孫核種) , ^{137}Cs, ^{60}Co を想定し、硝酸溶液系で実施可能な化学分離操作に基づく ^{63}Ni 分析法を開発した。本分析法での ^{63}Ni 検出下限値は、従来法の 0.3 Bq を目標とした。

2. 実験

化学分離には米国 Eichrom Technologies 社製 Ni-resin、Sr-resin 及び TRU-resin を用いた。Co の Ni-resin への吸着を抑制するため過酸化水素により酸化した[4]。妨害核種（^{90}Sr/^{90}Y:10^2–10^5 Bq, ^{137}Cs:10^3–10^4 Bq, ^{60}Co:10^2 Bq）を含む複数の水溶液を用い、分離操作の手順や条件を変えて試験を行い、精製回収液について、ガスフロー式低バックグラウンド β 線測定装置（LBC）や Ge 半導体検出器により核種を測定した。

3. 結果・考察

Ni-resin 等のカラム処理を組み合わせたところ ^{90}Y の残留が確認された。このため、Y 除去に効果的な鉄共沈処理を追加するとともにフローの組み換えを行ったが、^{90}Y が微量に残留した。1F 試料では ^{90}Sr の濃度が高いため、Sr-resin による処理後も一部の ^{90}Sr が残留し、そこから ^{90}Y が生成するためと考えられる。また、Ni と同じ遷移金属である Co の除去も、酸化処理を追加したものの Ni-resin のみでは不十分であった。このため、複数のカラム分離間の液性の繋がりを考慮して全体を見直した。決定したフローを図 1 に示す。Ni-resin カラムで ^{63}Ni と他核種を粗分離し、Sr-resin 及び TRU-resin の混合カラム処理と鉄共沈処理後、最終段で再度 Ni-resin カラムで Ni を精製することで、^{90}Y 及び ^{60}Co の残留はなくなった。典型的な条件として、Ni 回収率 85%、分取率（精製回収液のうち液体シンチレーションカウンタ（LSC）測定に供する割合）20%、LSC 測定時間 600 分（BG、試料）、BG 計数率 4 cpm、計数効率 54%を想定すると、このフローによる ^{63}Ni 検出下限値は 0.064 Bq となり、従来法と同等の性能を有する分析法を確立した。当該手法の汚染水試料等への適用を開始した。

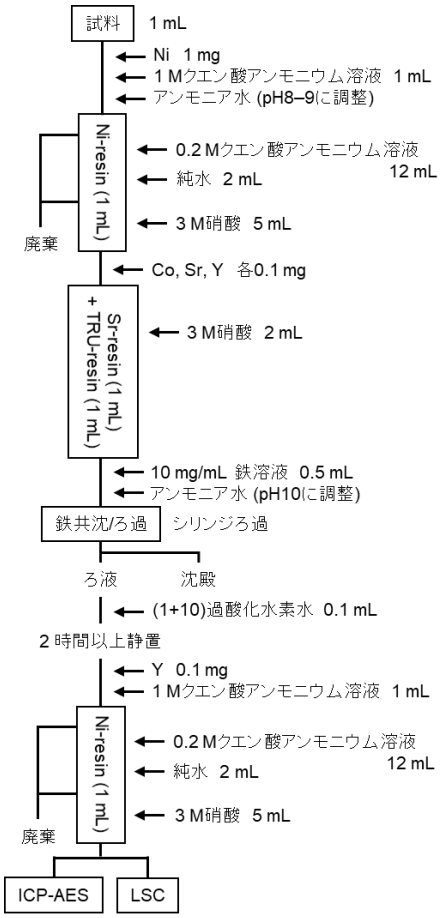

図 1　^{63}Ni 分析フロー

※この成果は、経済産業省/平成 30 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金（固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発）」で得られたものの一部である。

参考文献

[1] R. B. Firestone et al., Table of Isotopes Eighth Edition 1999 Update (1999). [2] 電気事業連合会, 核燃料サイクル開発機構, “TRU 廃棄物処分技術検討書,” JNC-TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02 (2005). [3] 亀尾他, “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). [4] JIS G 1216:2017 附属書 1

*Risa Motoyama[1,2], Hiroshi Hinai[1,2], Yoshikazu Koma[1,2] and Atsuhiro Shibata[1,2]

[1]Japan Atomic Energy Agency, [2]International Research Institute for Nuclear Decommissioning