

行政院所屬各機關因公出國人員出國報告書

(出國類別：研習)

研習放射性分析結果之不確定度評估及
ICP-MS在放射性核種分析之應用

服務機關：行政院原子能委員會輻射偵測中心

出國人職稱：技士

姓名：王志榮

出國地點：日本(日本分析中心)

出國期間：92年10月26日～92年11月2日

報告日期：93年1月12日

系統識別號:C09300213

公 務 出 國 報 告 提 要

頁數: 13 含附件: 否

報告名稱:

研習放射性分析結果之不確定度評估及ICP-MS在放射性核種分析之應用

主辦機關:

行政院原子能委員會輻射偵測中心

聯絡人/電話:

/

出國人員:

王志榮 行政院原子能委員會輻射偵測中心 技士

出國類別: 其他

出國地區: 日本

出國期間: 民國 92 年 10 月 26 日 -民國 92 年 11 月 02 日

報告日期: 民國 93 年 01 月 12 日

分類號/目: G12/能源 G12/能源

關鍵詞: 放射性分析,不確定度評估,感應偶合電漿質譜儀,環測輻射

內容摘要: 日本分析中心之工作性質與本中心相似，本中心為提昇國內環境試樣放射性分析水準，自1986年與日本分析中心簽訂技術合作協議。91年第十六屆比較實驗討論會中協議，由本中心派遣人員至日方習研ICP-MS在放射性核種分析的應用等分析技術。本次研習除了上述主題外，也學習日本分析中心在放射性分析結果之不確定度評估等相關資訊，本報告將記述研習內容及心得、建議。

本文電子檔已上傳至出國報告資訊網

三、研習內容:
(一)環測放射分析不確定度評估
量測結果呈現量測不確定度之想法與建議始於1963年，由任職美國國家標準與技術研究院(NIST)前身的美國國家標準局(NBS)的Eisenhart所提出，而量測不確定度(Uncertainty of Measurement)的定義，則是首見於1984年國際度量衡局(BIMP)等四個國際組織聯合編定的第一版「國際通用計量學基本術語」(International Vocabulary of Basic and General Terms in Metrology, VIM)一書中。目前國際標準化組織(ISO)為推廣與落實量測不確定度概念與作法，陸續修訂相關的標準，如ISO/IEC 17025 (1999)及ISO 9001 (2000)等，這些標準對於量測結果的不確定度均有明確的要求。此外，中華民國實驗室認證體系(CNLA)，要求量測實驗室對量測不確定度的評估與表示，需採用ISO的「量測不確定度表示方式指引」所述方式；同時也要求應將量測不確定度評估說明書面化，以能展現對量測不確定度評估的正確性。
不確定度評估方式依據ISO「量測不確定度表示方式指引」的定義，可區分為A類評估法與B類評估法等兩類：
(1)不確定度之A類評估法
以A類評估法得到的不確定度分量，簡稱為A類標準不確定度，是計算一系列重複觀測值變異數(variance)的正平方根，亦即根據從觀測到的頻率分佈(frequency distribution)導出的機率密度函數(probability density function)求得A類標準不確定度。
(2)不確定度之B類評估法
對於以B類評估法得到的不確定度分量，簡稱為B類標準不確定度，可用已有的資訊估計其標準差，這些資訊可能包括以往的量測數據、對材料性質及儀器性能的相關經

驗知識、製造說明書、校正與其他證明書的資料與參考手冊對引用資料所附的不確定
度等。
(3)組合標準不確定度
量測結果的總不確定度稱為組合標準不確定度，以符號 u_c 表示，是用不確定度
傳播定律計算出的標準差估計值，其等於總變異數(所有變異數和共變數分量的和)的
正平方根。
(4)擴充不確定度
為滿足工、商業以及健康和安領域之要求，用組合標準不確定度 u_c 乘以擴充
係數 k (通常在 2 至 3 範圍內)，得到擴充不確定度 U 。其用途是提供量測結果一個信
賴區間，使其對受測量的值有較高的涵蓋機率。
(5)不確定度評估之方法與程序
實驗室評估量測不確定度的方法與程序如下：
(a)定義受測量
(b)評估各因子A類與B類標準不確定度
◎組合標準不確定度之導出
(d)決定擴充不確定度 U
本次研習JCAC對銻-90，氙及加馬核種等分析的品質管制，和不確定度的評估做
整體的介紹。環境試樣放射性核種之分析過程中，通常需經稱重、量體積、純化、分
離、計測等步驟，才能求得試樣中放射性核種的含量，在這些過程中每一步驟都可能
引入一些不確定度。評估分析結果的總不確定度就是要針對各別的分項分別評估其不
確定度，然後再彙整成為組合不確定度，最後視信賴之水準的需求，再乘以擴充係數，

即可求得擴充不確定度。
(二)環境放射線資料庫之利用指引
JCAC資訊部在2003年得力於教育科學部等相關部會，及47都道府縣等單位的協助，建立日本環境放射線資料庫，將有關在日本環境放射活度水平之調查等結果收錄於資料庫中，於3月底共收錄約260萬件的數據，並於4月在JCAC的網際網路首頁”日本的環境放射活度與輻射量”公開;7月又在網際網路上追加資料庫搜索功能、及利用搜索結果去作統計表和統計圖的功能等，使這些數據能更有效的利用。
資訊部在10/27下午安排一場環境放射線資料庫之利用的演講，這場演講最主要
是向JCAC的同仁介紹這套系統的主要功能，此系統網址為
http://seach.kankyo-hoshano.go.jp/ 。如何進入這個系統去搜尋你需要的數據等資料，並
利用圖形的製作功能，或統計表的製作功能，去將所要的資料在此系統中完成。
(三)新鍶九十分析方法
鍶九十是環境放射性分析的對象中重要核種之一，在日本教育科學部的放射性活
度測量叢書2「放射性鍶分析方法」中，此分析方法共有發煙硝酸法、離子交換法、
草酸鹽法及有機溶劑萃取法等四種。一般目前常使用的是較危險，且對人體有危害的
發煙硝酸法，使用此方法的操作者之技術也需非常熟練，否則其化學回收率對測量的
結果影響很大;但是離子交換法的適用範圍較窄，只用於分析試料中含鈣量在1公克以
下。此新的方法是在重新檢討離子交換法的不足之處，經研發的結果，新的離子交換
樹脂法(1)可以適用於含有5公克鈣以下的試樣進行放射性鍶分析方法(如果在日本47
都道府縣所實施的環境放射活度水平調查的試樣量約1500中可含蓋97%)。(2)當遇到
含有多量的鈣(Ca)、鎂(Mg)，用其分析方法去分析較為困難，例如:以海水的試樣40

公升進行分析時，需先用一次離子交換的前處理濃縮後，再進新的離子交換樹脂法。
在第一項中鐳的化學回收率皆在90%以上，第二項的分析之回收率也在85%以上，如果離子脂法的操作方式改為自動化，分析的時程可縮短5個工作天。
(四)日本各單位放射性分析的確認調查
日本全國47都道府縣的分析機關和JCAC進行相互之間試樣的放射性分析，以確
認該分析機關在進行放射性分析、輻射線測量值之可信度，以維持分析機關的分析及
測量技術的維持與提昇。
主要實施的對象是設有核能發電廠等設施之周邊環境放射監測的當地道府縣，及
鄰邊縣市等分析機構。
實施計劃內容是依據放射性分析確認調查實施要領進行，從調查開始到評詁結果
的報告出來為止其信賴度確認的流程圖如圖一所示。其在相互比較實驗分析方法有
(1)放射性核種分析和元素分析。(2)累積劑量測定。(3)連續偵測之環境加馬劑量測定
等3項，其詳細內容如附件。
(五)ICP-MS(感應耦合電漿質譜儀)對長半化期核種之分析
(1) 傳統放射性分析方法之缺失
Ross歸納出下列四種情形已漸不適用放射性活度分析方法。第一、若二個核種
放射型態相同能量又太接近，儀器解析度無法克服二者能譜波峰的重疊，而又加以半
衰期太長或太接近，則不易以數學模式計算分辨，就無法分別定量。如 ²³⁹ Pu及 ²⁴⁰ Pu，
二者化學性質相同，其阿伐能譜之能量分辨為5.15MeV及5.16MeV，半衰期分別為2.41
×10 ⁴ 年及6.57×10 ³ 年，所以阿伐能譜無法分辨及定量此二個核種。而感應耦合電漿質
譜儀ICP-MS之測定原理是根據二者之不同原子量而測定，可輕易分別定量。第二，

核種的放射型態若是貝它衰變，由於貝它能譜是連續性且涵蓋很大的範圍，通常都有
嚴重重疊的現象。純貝它放射性核種如 ¹⁴⁷ Pm和 ¹⁵¹ Sm就需要經多次繁雜耗時的分離程序
以純化個別核種，避免其他核種之干擾。第三，核種的比活度(specific activity)太低，
也就是單位重量之放射活度太低。通常半衰期較長之核種，其比活度都較低，因此無
法使用傳統方法偵測。如 ¹²⁹ I，半衰期為 1.57×10^7 年，比活度僅 1.62×10^4 Ci/g，傳統放射
偵測方法必須經多次濃縮，才能偵測得到。表1所列舉了長半衰期、比活度低的核種，
即較適合以ICP-MS定量分析。第四；為了降低偵測極限值(minimum detection
activity ,MDA)而需要不合理的延長計測時間，或不合理的大量樣品。例如尿樣中 ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
之MDA要求若為 8.5×10^{-5} Bq則需 6×10^5 秒(約一週)的計測時間，或者是數公升尿樣作計
測，都不適用以放射法直接偵測。放射性強度和核種個數的關係如下式所示：
$N=A \times T_{1/2}/\ln 2$
式中N為原子數目，A為放射性活度， $T_{1/2}$ 為半衰期。因此，在相同的活度之下，若半
衰期愈長，則原子數目N就愈大，換言之，就愈容易以儀器分析方法偵檢測定。
(2) ICP-MS作長半衰期核種分析之優點
一般而言，半衰期超過 10^3 年，即適用以ICP-MS分析核種的化學濃度，而勝於以
放射性活度之偵測。尤其像環境樣品中之核種活度均較低，常常要3,000至80,000秒的
計測時間(約50—1,300分鐘)完成一件樣品測量，而使用ICP-MS則只要5分鐘時間即可
完成一件測定。使用放射性度量之分析方法，不同核種有各自的分離程序，不但樣品
消耗量較大，而且全都分析完成所耗費人工時就頗可觀了。至於ICP-MS只要樣品
前處理完成後，可以多元素一次完成分析檢測。因此使用ICP-MS分析技術，可大幅
提升樣品分析的速率和數量。以目前ICP-MS設備之靈敏度而言，備有電熱揮發設備

(electrothermal vaporization, ETV)對半衰期為 10^3 年之核種，可定量分析至 10^7 - 10^8 個原子。
若使用超音波霧化器(ultrasonic nebulizer)也可達到 10^8 - 10^9 個原子，甚至一般常用的氣壓霧化器(Pneumatic nebulizer)都可達到 10^9 - 10^{10} 個原子偵測能力。若以 ^{239}Pu 為例，半衰期為 2.41×10^4 年，在 2×10^7 個原子時，化學濃度約為 $8\text{fg}(\text{fg}=10^{-15}\text{g})$ ，可使用ETV-ICP-MS達到分析需求規格。但換算成放射性活度，則為 0.001dpm 需要數週的偵測時間才能達到分析規格，所以ICP-MS在長半衰期核種的偵測，優於放射性活度方法的度量。表2列舉了ICP-MS; α -spectrometry及NAA三種分析方法的偵測極限值及測量時間，顯然三者的偵測極限值相差不多，但ICP-MS比阿伐能譜分析儀更快捷方便。ICP-MS結合ETV及扇形磁鐵(magnetic sector)其偵測極限有大幅的提升，能譜分析儀雖有良好的偵測極限，但 ^{239}Pu 及 ^{240}Pu 卻無法分辨。而ICP-MS則是利用其原子量不同而輕易分別測定。此外，在放射性核種及低能量之其它放射核種都需要繁雜的化學分離純化程序，以避免干擾及樣品自吸收作用。而ICP-MS之分離僅需簡易程序，甚或不複雜的基質之下，更不需特殊的化學處理程序。而且ICP-MS在每一次的分析程序中可進行多核種同時一次測定，相對的在樣品處理量上就佔有很大的優勢。
本次研習是介紹JCAC利用ICP-MS在環境試樣中對長半化期核種之分析方法資料的講解如附件，然後進行鈾同位素鈾234的校正和試樣的測定之操作。

四、心得與建議
1. 國際標準化機構最初對實驗室的評鑑標準是以技術層面為考量，採用ISO/IEC Guide 25(1978)為主。在1990年ISO/IEC Guide 25第三版仍以技術層面為主，另加上品質管理之要求共13項。ISO在1994年過ISO 9001品質系統管理標準之要求共20項。於1999年ISO/IEC對測試與校正實驗室能力的評鑑標準內容，是結合ISO 9001的20項要求(品質系統運作過程)，與1990年ISO/IEC Guide 25第三版的13項要求(實驗室校正/測試技術能力)，成為ISO/IEC17025的管理要求(14項)及技術要求(10項)，並於1999.12.15獲ISO正式通過為國際標準，成為實驗室評鑑與認證之國際標準。JCAC於2000年取得日本JCQA機構之ISO 9001認證，其適用服務範圍:放射性分析、測定方法的開發，放射性分析定、測定，分析試樣調製及TLD標準照射。於2002年JCAC取得JAB機構ISO/IEC 17025的認可，對JCAC的實驗室品質進一步提昇;對於ISO/IEC 17025中不確度評估方法，台、日雙方皆一致，只是日方JAB對各認證實驗室的要求中沒有另建立一套評估的書面化，而是將不確度評估方法附在各類分析試樣之核種分析操作程序書中。而我國CNLA要求應將量測不確定度評估說明書面化，以能展現對量測不確定度評估的正確性。日方對核種皆要求有不確定評估，這與我國相同，唯一不同是，他們對總貝他不作不確定評估，其原因是總貝他的分析結所含蓋的核種太多，且因素太複雜，其評估結果沒甚麼意義;JCAC除了對聯合國IAEA及美國NIST的比較實驗報告中才提出量測不確定度評估及可信賴度值，或送測的客戶有特別的要求，否則對各種出版的報告(含送日本政府、國會及民間團體)皆不附對

量測不確定度評估及可信賴度值。
2 · JCAC資訊部所開發這套環境放射線數據資料庫之網路資訊系統，不僅可解決民眾對核能的疑慮，且也可提供學者專家利用此資訊，進行各方面的研究;資訊部現目前在收集亞洲及世界等有關環測部門的偵測數據，以做為這套系統將來要把亞洲至全世界各國環測輻射數據公開在日本的人民眼前，讓民眾了解目前全世界各地的輻射量狀況。這點是值得我們借鏡。
3 · 鋸九十分析則將原本可以擇一使用的發煙硝酸法或陽離子交換樹脂法合併使用，為了因應未來京都協議之二氧化氮的排放管制，及使用發煙硝酸法也較危險，且對人體也有危害，目前JCAC研發完成全面使用陽離子交換樹脂法可能性，且明年開始所有試樣皆用新開發的離子交換樹脂法分析，本中心與JCAC同樣皆是國家級分析機關，JCAC配合國家的政策，在各種分析方法上研發改進，此方法值得我方探討採用，本中心已請JCAC提供新的離子交換樹脂法分析相關資料，將在本中心建立及使用。
4 · JCAC擁有參部放化領域中最先進的電漿質譜儀，每部可以同時分析多種極微量元素，對於平時的研究助益如虎添翼，在緊急事故中更可快速分析許多目標核種，只是所費不貲；本中心限於預算，只能使用原子吸收光譜儀，但仍然投注於計測條件及分析方法的改良，所以去年度雙方技術交流，我方提出派員至JCAC學習「利用電漿質譜儀(ICP-MS)對長半衰期核種如:碘-129、鈾、鈾、鈾、鈾等同位素之分析」，目前國內核研所亦有新購一部ICP-MS(電漿質譜儀)，因本中心與中研院有一環測放射核種研究計劃，在鈾239+240分析上可以進一步利用核研所ICP-MS(電漿質譜儀)來分析，並平時建立起本中心在”緊急事故時快

平成 15 年 10 月 27 日

台湾行政院原子能委员会辐射侦测中心 (TRMC) からの技術者の受入れ対応スケジュール

時間	10月26日	10月27日	10月28日	10月29日	10月30日	10月31日	11月1日	11月2日
9:30～ 12:00		挨拶、予定説明 環境放射線モニタ リングの精度管理 及び分析確認調査 の概要 精度管理 Gr	不確かさについ て (概論) 新しい Sr-90 分 析方法について 精度管理 Gr	トリチウム分析 における品質管 理と Q&A 自然放射能 Gr	γ線測定におけ る品質管理、不確 かさ及び評価他 γ線・RnGr ISO-17025 認定 の準備 品質保証室	ICP-MS を用いた 長半減期核種 の分析方法 自然放射能 Gr		
12:00	12:55 成田							
13:00～ 15:00		環境放射線データ ベース利用 (説明 会)	β 放射能分析に おける不確かさ 及び評価 (見学含む) Sr・CsGr	研修事業におけ るコースの設定 及び参加状況他 精度管理 Gr	前処理における 品質管理 (見学含む) 試料調製 Gr	ICP-MS 測定上の 注意点 自然放射能 Gr		14:00 成田 出発
15:00～ 17:30	ホテルチェック イン	不確かさについて (概論) 精度管理 Gr	情報整理 Q&A 他 精度管理 Gr	年次報告書に関 する打合せ他 精度管理 Gr	運営会議のスケ ジュール調整 Q&A 他 精度管理 Gr	情報整理 Q&A 他 自然放射能 Gr		
備考	出迎え (上杉)	ホテル (金子) 上杉	上杉、金子	桐田、北村	大橋、宮野	磯貝、篠田		見送り (佐藤)

放射能分析確認調査の概要

1. 目的

全国 47 都道府県の分析機関と日本分析センターが相互に試料の放射能分析等を行い、当該分析機関が行う放射能分析・放射線測定値の信頼性を確認するとともに、分析機関の分析・測定技術の維持・向上に資する。

2. 実施機関

実施機関は、放射線監視交付金による原子力発電施設等周辺の環境放射線モニタリングを実施している原子力施設立地道府県及び隣接県等(環境放射能水準調査の実施都道府県)の分析機関(別紙-1)と日本分析センターである。

3. 実施内容

本事業は、放射能分析確認調査実施要領(参考資料 1 及び参考資料 2)に基づいて行われる。調査開始より、評価結果の報告までの信頼性確認の手順を図 1 に示す。

3.1 相互比較分析の方法

「放射性核種分析と元素分析」、「積算線量測定」及び「連続モニタによる環境ガンマ線量測定」の 3 項目について相互比較分析の結果を確認する。

① 放射性核種分析と元素分析(別紙-2、別紙-3)

「試料分割法」: 分析機関が採取した環境試料を 2 分割し、分析機関と日本分析センターが放射性核種分析・元素分析を行い、結果を比較検討する。

「標準試料法」: 日本分析センターが調製した分析比較試料(寒天、模擬土壌)を分析機関が放射性核種分析・元素分析を行い、結果を比較検討する。

② 積算線量測定(別紙-4)

「分割法」: 分析機関と日本分析センターが、積算線量計を分析機関のモニタリングポストに同時に設置して積算線量を測定し、結果を比較検討する。

「標準照射法」: 日本分析センターが標準照射した積算線量計を分析機関が測定し、結果を比較検討する。

「分析機関標準照射法」：分析機関が標準照射した積算線量計を、日本分析センターが測定し、結果を比較検討する。

③ 連続モニタによる環境ガンマ線量率測定（別紙－５）

「低線量率比較法」：日本分析センターの測定装置により分析機関の検出器周辺を測定し、分析機関の測定結果と比較する。

「高線量率比較法」：分析機関の測定器と日本分析センターの基準測定装置を γ 線源及び X 線発生装置を用いて照射し、測定結果を比較する。

3.2 調査結果の検討と評価

分析機関から送付された分析結果等に基づいて分析測定の異常等を確認し、それらが認められた場合には、試料採取、前処理、化学分離、測定、その他分析工程の各操作について検討する。

(1) 検討基準

両機関の分析値の差が下記の値を越えたとき、検討を開始する。

放射性核種・元素分析における試料分割法の場合

項目	基準
γ 線スペクトロメトリ	分析値の大きい方の10%+計数誤差のうち大きい方の3倍 (3σ)
H-3, Sr-90, Co-60, Pu, Ra, U	分析値の大きい方の10%+計数誤差のうち大きい方の3倍 (3σ)
C-14	分析値の大きい方の5%+計数誤差のうち大きい方の3倍 (3σ)
元素分析	日本分析センターの分析値の20%

(2) 検討基準から外れたときの対策

① 原因の調査

日本分析センターは、分析機関にデータの差異について問合せ、データの記載ミス等の単純ミスを整理した後、分析機関と技術的問題点について打合せる。また、必要に応じて再測定、再分析等により検討する。

② 技術支援

分析機関からの要請により、日本分析センターの職員を派遣し、試料採取、前処理、化学分離、測定、その他分析工程全般をとおして調査し、支援する。

(3) 精度管理検討委員会とワーキンググループ

精度管理検討委員会及び放射能分析確認調査ワーキンググループにおいて実施方法、結果の評価等について検討・審議を行う。

3.3 技術検討会の開催

47 都道府県の分析機関の担当者、精度管理検討委員会の委員及び日本分析センターの担当者が一堂に集まり、環境試料の放射能分析、積算線量測定等について、その年の調査結果、各分析機関が抱えている共通の技術的問題点の検討結果及び分析測定技術に関する情報の交換を行う。

3.4 報告書の作成

相互比較分析の分析結果、分析測定の内容、検討結果をまとめ、これに総合評価及び各県別所見を付して報告書を作成する。

4. 平成 15 年度の計画

年間スケジュールをの表 1 に示す。7 月現在、ほぼ計画どおりに進捗している。

5. 今後の課題

国の「放射能調査研究に係る評価検討報告書」の提言により、事業者を含めた精度管理について検討を開始する。

以上

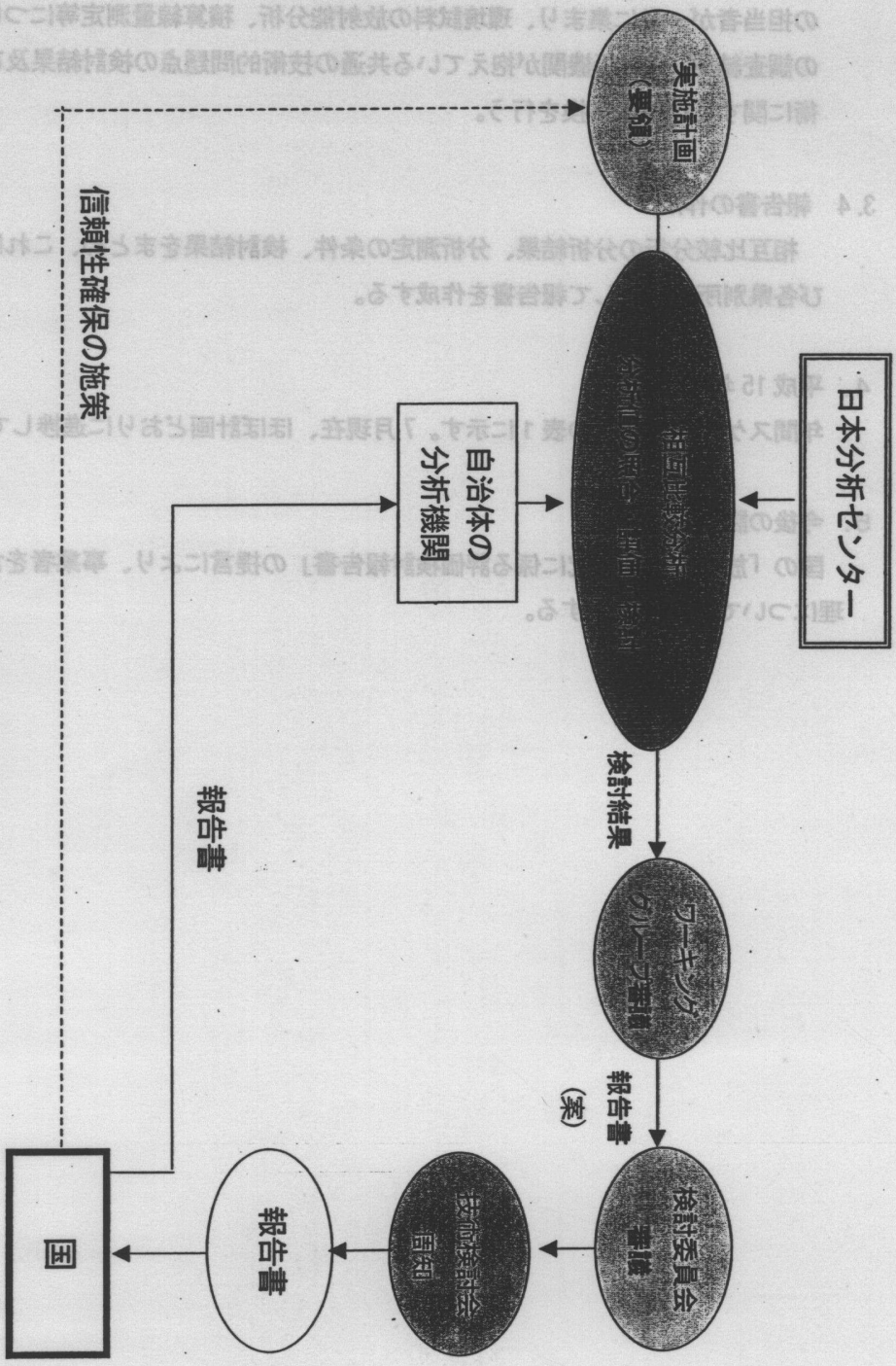


図1 信頼性確認の手順

表1 平成15年度放射能分析確認調査 年間スケジュール

		4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
分割試料 測定済試料	分析機関	試料採取→分析→測定→結果の通知→結果の送付											
	分析センター	受領後直ちに分析測定 結果受領											
標準試料	分析機関	受領後直ちに分析測定→結果を送付											
	分析センター	寒天・模擬試料等調製送付→分析測定開始 結果受領											
積算線量	分析機関	設置(第2・4半期)、素子発送、設置、回収											
	分析センター	素子発送 結果送付 素子・結果受領											
連続モニタ	分析センター	北海道、宮城県 新潟県、岡山県、佐賀県											
技術支援	分析センター	常時 受付											
データ打合せ	分析機関	-											
	分析センター	技術検討会3/16											
委員会	精度管理検討委員会	第1回委員会											
	ワーキンググループ	第1回 第2回 第2回委員会											
お願い事項		1. 測定済み試料と分析・測定結果の発送は、迅速に 2. 対象試料は、出来るだけ第1・2四半期で採取											

平成 15 年度分析確認調査参加分析機関

1. 原子力施設立地道府県：17 道府県（18 分析機関）

北海道原子力環境センター	静岡県環境放射線監視センター
青森県環境保健センター	京都府保健環境研究所
宮城県原子力センター	大阪府総務部防災室
福島県原子力センター	島根県保健環境科学研究所
福島県原子力センター福島支所	愛媛県立衛生環境研究所
茨城県公害技術センター	佐賀県環境センター
新潟県放射線監視センター	長崎県衛生公害研究所
石川県保健環境センター	鹿児島県環境保健センター
福井県原子力環境監視センター	岡山県環境保健センター

2. 隣接県等（環境放射能水準調査の調査都道府県）：33 都道府県（33 分析機関）

北海道立衛生研究所	岩手県環境保健研究センター
秋田県衛生科学研究所	山形県衛生研究所
栃木県保健環境センター	群馬県衛生環境研究所
埼玉県衛生研究所	千葉県環境研究センター
東京都立衛生研究所	神奈川県衛生研究所
富山県環境科学センター	山梨県衛生公害研究所
長野県衛生公害研究所	岐阜県保健環境研究所
愛知県環境調査センター	滋賀県立衛生環境センター
三重県科学技術振興センター	大阪府立公衆衛生研究所
兵庫県立健康環境科学研究所	奈良県保健環境研究センター
和歌山県衛生公害研究センター	鳥取県衛生環境研究所
岡山県環境保健センター	広島県保健環境センター
山口県環境保健研究センター	徳島県保健環境センター
香川県環境保健研究センター	高知県衛生研究所
福岡県保健環境研究所	宮崎県衛生環境研究所
熊本県保健環境科学研究所	大分県衛生環境研究センター
沖縄県衛生環境研究所	

放射性核種分析と元素分析（試料分割法）

1. γ 線スペクトロメトリー

前処理操作及び測定操作について確認する。

「前処理込み」：分析機関が採取し、分割した環境試料を分析機関と日本分析センターが別々に前処理及び分析を行い、分析結果を相互に比較する。（この結果と「測定のみ」の結果を比較して前処理操作の妥当性を確認する）

「測定のみ」：分析機関が採取し、前処理及び分析した試料を日本分析センターが放射能測定を行って分析結果を相互に比較する。

2. その他の分析項目

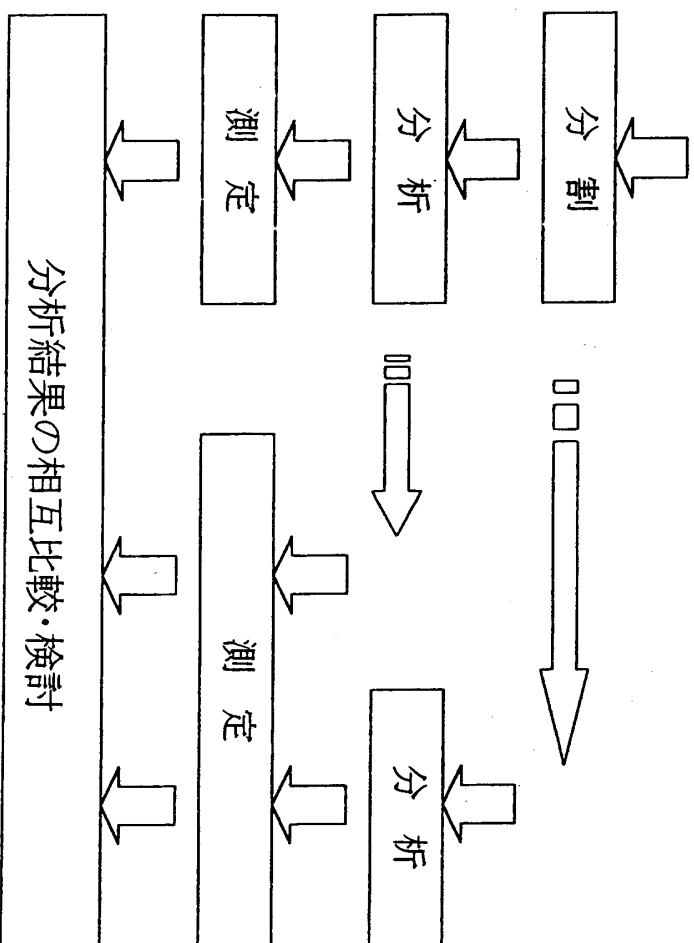
分析機関が採取し、分割した環境試料を分析機関と日本分析センターが別々に前処理及び分析を行って得られた分析結果を相互に比較する。

分析項目	調査方法		対象分析機関及び 試料数	
	対象試料	対象核種又は 元素		
γ 線スペクトロメトリー	各分析機関がモニタリングの対象としている大気、陸上及び海洋試料	^{40}K 及び人工放射性核種 (^{137}Cs 等)	各機関 9種類の試料から各1~4試料を対象 16分析機関 253試料	
トリチウム分析	陸水、海水及び海産生物	^3H	15分析機関 37試料	
放射化学分析	^{14}C 分析	農作物	^{14}C	1分析機関 1試料
	^{90}Sr 分析	土壌、海底土、農作物等	^{90}Sr	13分析機関 29試料
	^{129}I 分析		^{129}I	1分析機関 1試料
	Pu分析		$^{239+240}\text{Pu}$	5分析機関 9試料
	Am・Cm分析		^{241}Am (^{244}Cm)	1分析機関 1試料
元素分析	F分析	陸水、土壌、農畜水産物等	F	2分析機関 14試料
	Ra分析		Ra	1分析機関 10試料
	U分析		U	2分析機関 14試料

都道府県の
分析機関

日本分析センター

環境試料の採取



試料分割法

放射性核種分析と元素分析（標準試料法）

日本分析センターが調製し、既知量の放射性核種を添加又は定量した試料について、分析機関が放射能分析等を行い、それらの分析結果を相互に比較する。原子力施設立地県においては下表の項目を、隣接県等においては、下表のうちγ線スペクトロメトリーによる寒天、模擬土壤、模擬牛乳のみを対象とする。

分析項目	調査方法		調査目的	
	対象試料	対象核種又は元素		
γ線スペクトロメトリー	寒天 (高さ1~5 cm 5試料)	^{51}Cr 、 ^{54}Mn 、 ^{59}Fe 、 ^{57}Co 、 ^{60}Co 、 ^{88}Y 、 ^{109}Cd 、 ^{137}Cs 、 ^{139}Ce	測定効率等の確認	
	模擬土壤	数核種添加	測定操作全般の確認	
	海水	^{54}Mn 、 ^{59}Fe 、 ^{60}Co 、 ^{137}Cs 、 ^{144}Ce	捕集操作の確認	
	海産生物 (すり身)	^{54}Mn 、 ^{60}Co 、 ^{137}Cs 、 ^{144}Ce 、 ^{40}K	灰化处理操作の確認	
	模擬牛乳	^{131}I 、 ^{137}Cs 、 ^{40}K	マリネ容器効率の確認	
トリチウム分析	トリチウム水Ⅰ	^3H	分析操作全般の確認	
	トリチウム水Ⅱ		測定効率等の確認	
	トリチウム水Ⅲ (組織自由水)		分析操作全般の確認	
放射化学分析	^{14}C 分析	放射性炭素Ⅰ	^{14}C	分析操作全般の確認
		放射性炭素Ⅱ		測定効率等の確認
	^{60}Co 分析	海産生物 (すり身)	^{60}Co	分析操作全般の確認
	^{90}Sr 分析	農作物	^{90}Sr	測定効率等の確認
		陸水		測定効率等の確認
	^{129}I 分析	ヨウ素-129水	^{129}I	測定効率等の確認
$^{239+240}\text{Pu}$ 分析	土壤	$^{239+240}\text{Pu}$	分析操作全般の確認	
Am・Cm分析	土壤	^{241}Am		
元素分析	F分析	陸水、土壤	F	分析操作全般の確認 濃縮×線分析
	Ra分析	陸水、土壤	Ra	
	U分析	陸水、土壤、 海産生物	U	

都道府県の
分析機関

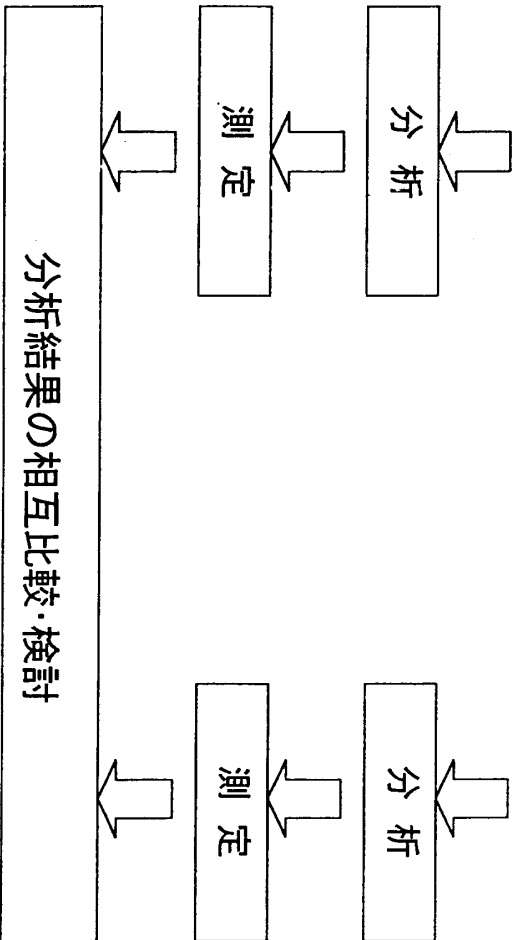
日本分析センター

日本アイソトープ協
会

分析比較試料の調製

均一性試験

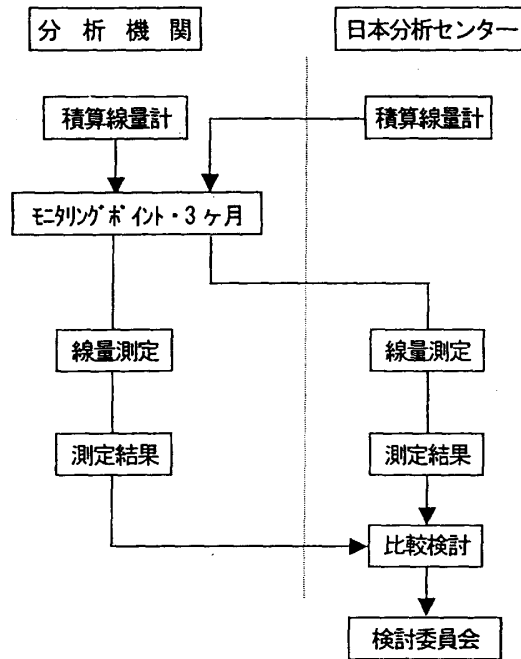
標準試料法



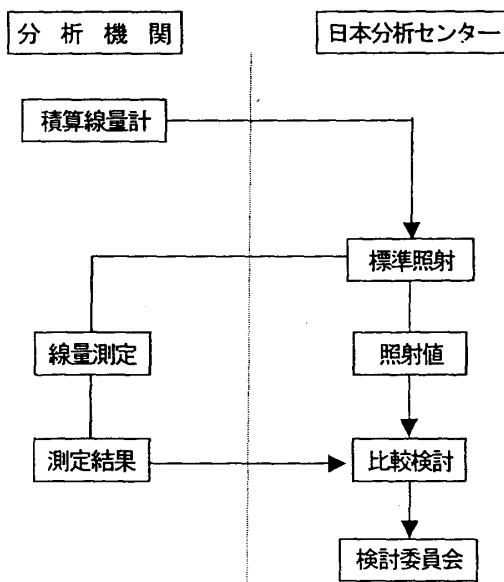
積算線量測定

「分割法」、「標準照射法」及び「分析機関標準照射法」の三つの方法により実施する。

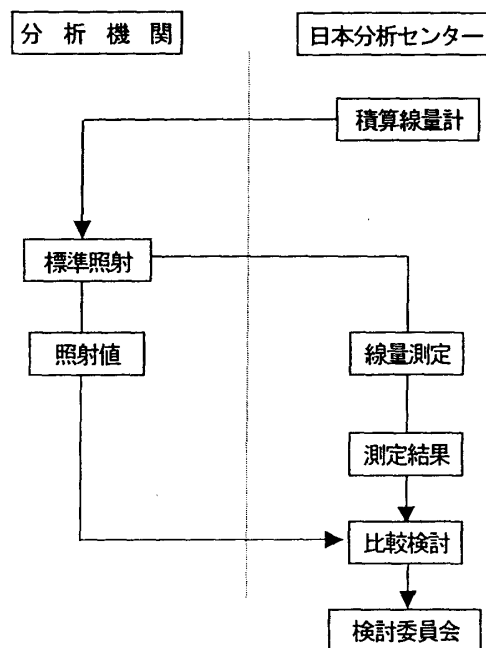
(1) 分割法



(2) 標準照射法



(3) 分析機関標準照射法



連続モニタによる環境γ線量率測定

「低線量率比較法」：分析機関の固定式連続モニタ（環境ガンマ線量率測定装置）と日本分析センターの NaI (TI) シンチレーション測定装置により、同時に環境ガンマ線量率を測定し、相互の測定結果を比較する。

「高線量率比較法」：分析機関の固定式連続モニタ（環境ガンマ線量率測定装置）と日本分析センターの電離箱線量計に、基準ガンマ線源及びX線発生装置を用いて同様な条件で照射し、相互の測定結果を比較する。

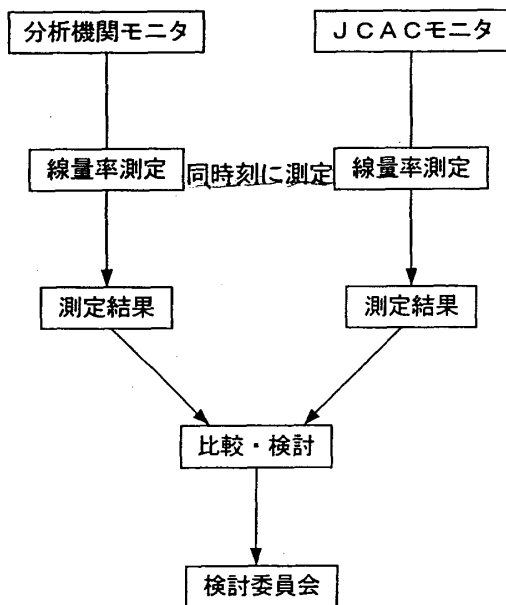
(1) 低線量率比較法

対象：NaI (TI) シンチレーション測定装置

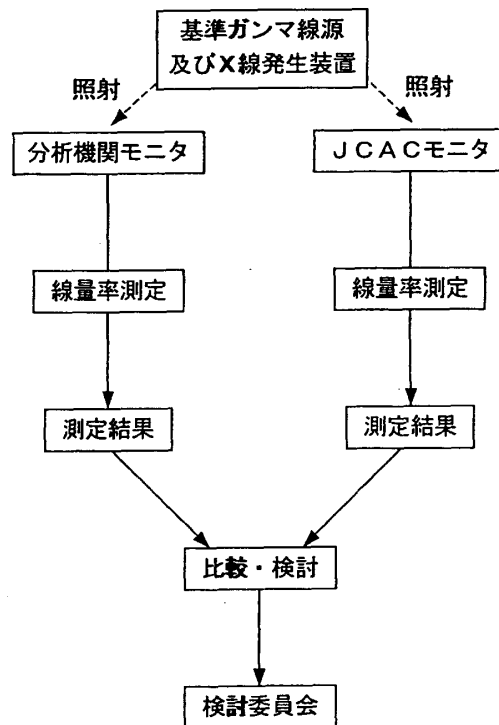
(2) 高線量率比較法

対象：NaI (TI) シンチレーション測定装置、
電離箱線量計

平常時の環境γ線の比較測定
〔分析機関モニタリングポスト〕



緊急時を考慮した調査
〔分析機関モニタリングポスト〕



長寿命核種の分離・核変換(消滅処理)と
環境放射能

館 盛 勝 一

1. はじめに
2. 地球全体の放射能の過去・現在
(総量と濃度)
3. 原子力利用と環境放射能の制御
(総量、濃度、毒性)
4. 分離・核変換の考え方と現状
5. むすび

はじめに

現在の環境放射能

- ◎ 制御が不可能である ⇒ 正確な把握
- ◎ 時間とともに変動する ⇒ 正確な予測手法があるか？

将来の環境放射能

国内外の原子力事故



万全の監視体制
万全の緊急時体制

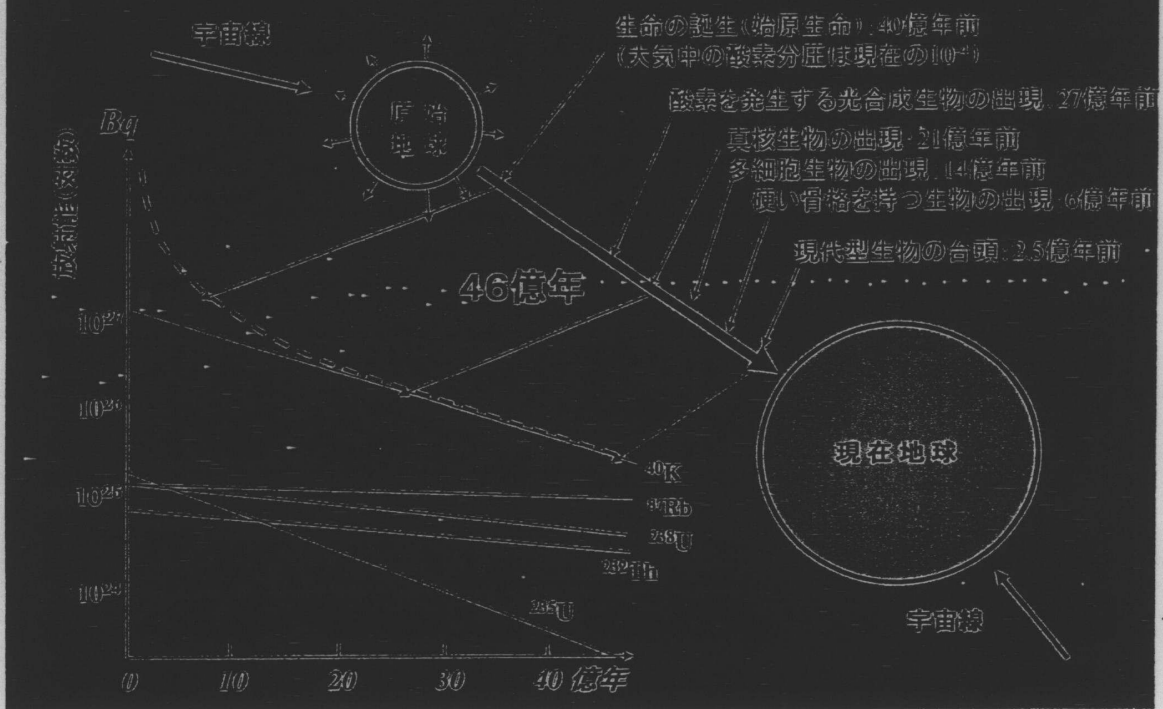
国内の人間活動に伴う負荷増は制御が可能



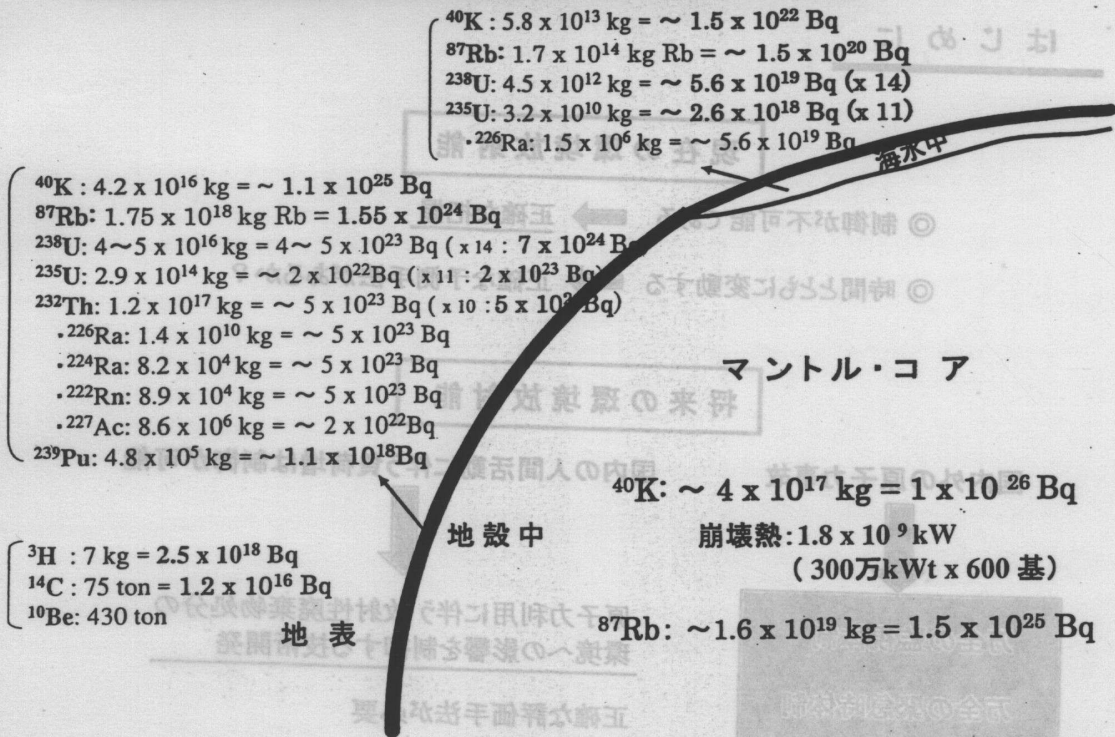
原子力利用に伴う放射性廃棄物処分の
環境への影響を制御する技術開発

正確な評価手法が必要

地球全体の放射能（経時変化）



現在地球に存在する自然放射性核種(総量)



地球に存在する自然放射性元素(核種)

ウラン系列核種

核種	半減期	比放射能	地殻中の存在量*	海水中の存在量	その他
U-238	4.468E9 y	1.24E4 Bq/g	4.08E16 kg	4.5E12 kg	*地殻中U含有率を 1.7ppm とした。
U-234	2.45E5 y	2.29E8	2.20E12	2.43E8	
Th-230	8.0E4 y	7.17E8	6.53E11	7.2E7	
Ra-226	1.60E3 y	3.66E10	1.38E10	1.53E6	
Rn-222	3.8235 d	5.66E15	8.92E4	9.85E0	
Pb-210	22.3 y	2.82E12	1.53E8	1.70E4	
Po-210	138.38 d	1.66E14	3.0E5	3.33E1	

アクチニウム系列核種

核種	半減期	比放射能	地殻中の存在量	海水中の存在量	その他
U-235	7.038E8 y	8.0E4 Bq/g	2.90E14 kg	3.20E10 kg	*地殻中U含有率を 1.7ppm とした。
Pa-231	3.28E4 y	1.74E9	1.32E10	1.46E6	
Ac-227	21.773 y	2.70E12	8.57E6	9.45E2	
Fr-223	21.8 m	1.43E18	1.63E1 kg	1.80 g	

ここでは地殻の質量を 2.4×10^{22} kg、海水の質量を 1.37×10^{21} kg、天然ウラン-U-235の同位体比を 0.71wt%とした。

トリウム系列核種

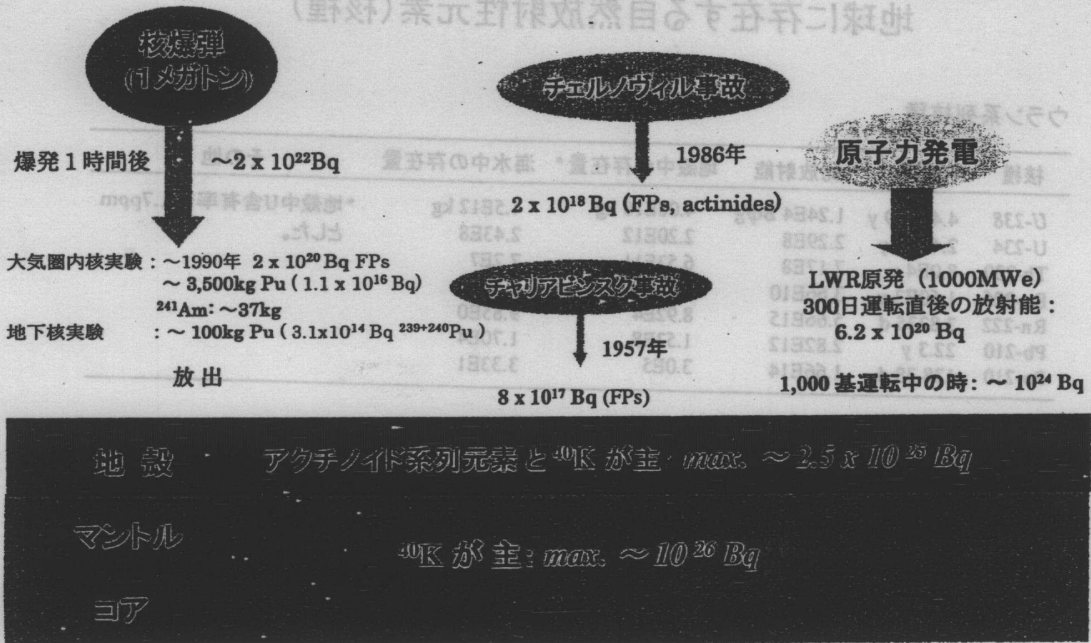
核種	半減期	比放射能	地殻中の存在量*	海水中の存在量	その他
Th-232	1.41E10 y	4.06E3 Bq/g	1.20E17 kg	海水中のトリウム量は非常に少ない(1×10^{-4} μ g/l)。	*地殻中のTh含有率を 5.0ppmとした。
Ra-228	5.76 y	1.00E13	4.81E7		
Th-228	1.913 y	3.03E13	1.59E7		
Ra-224	3.66 d	5.86E15	8.24E4		
Rn-220	55.6 s	3.40E19	1.67E1		

その他の核種

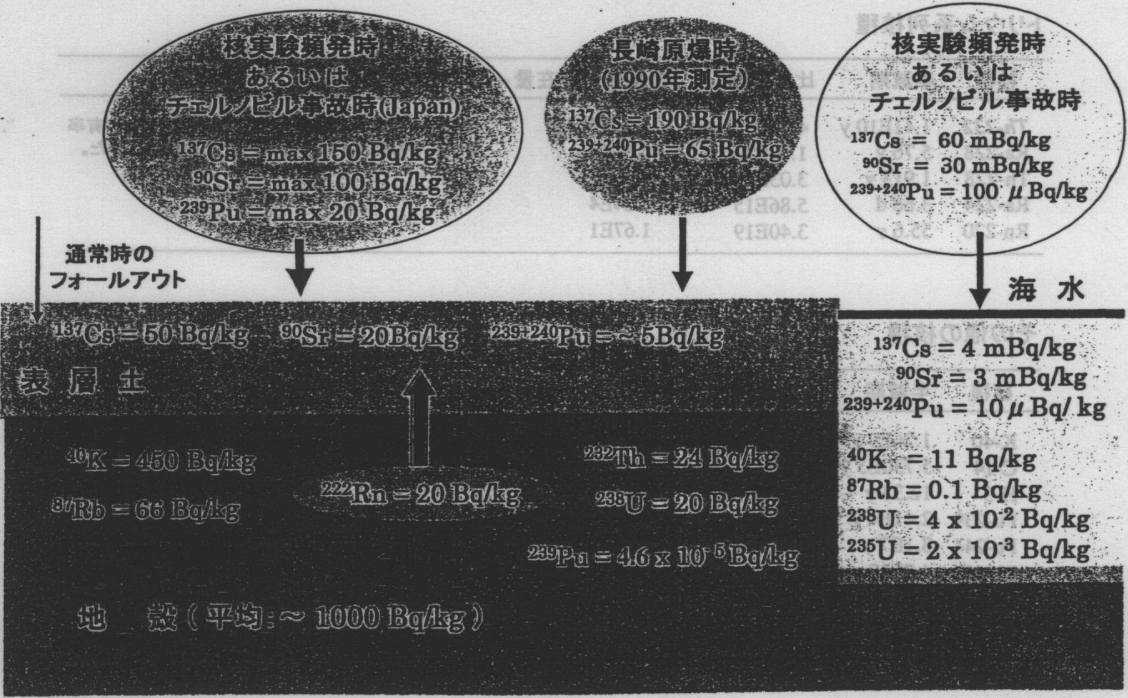
核種	半減期	比放射能	地殻中の存在量	海水中の存在量	その他
K-40	1.26E9 y	2.64E5 Bq/g	5.61E6 kg	6.1E13 kg	K: 全地球の 0.02~0.08wt% ($1 \sim 4 \times 10^{17}$ kg)である。
C-14	5.730E3 y	1.65E11			
H-3	12.33 y	3.58E14			
Pu-239	2.41E4 y	2.30E9	4.8E5 kg *		* ²³⁹ Pu濃度: $\sim 2 \times 10^{-14}$ g/kg
Pu-244	8.1E7 y	7.03E5	10 ~ 50g		
Rb-87	4.8E10y	3.17E3	1.75E18 kg	1.7E14 kg	

ここでは、地球の全質量を 5.974×10^{24} kg、Kの含有率は地殻中で 2 wt%、海水中で 0.399g/l とした。また、Rbの地殻中存在量: 74ppm、海水中存在量: 120 μ g/kg とした。

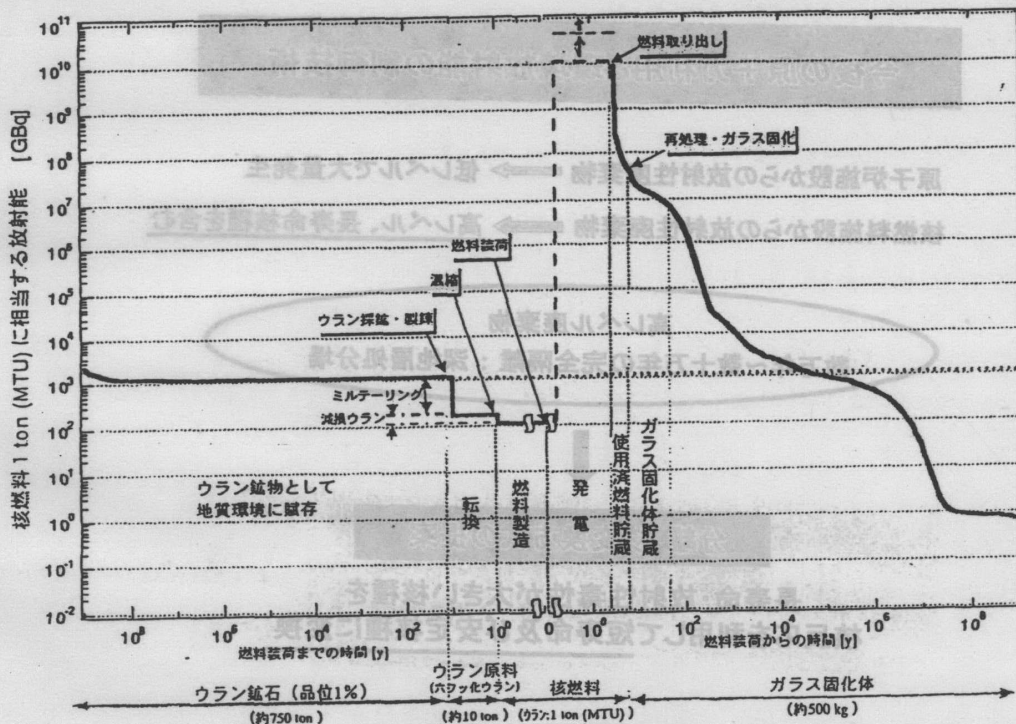
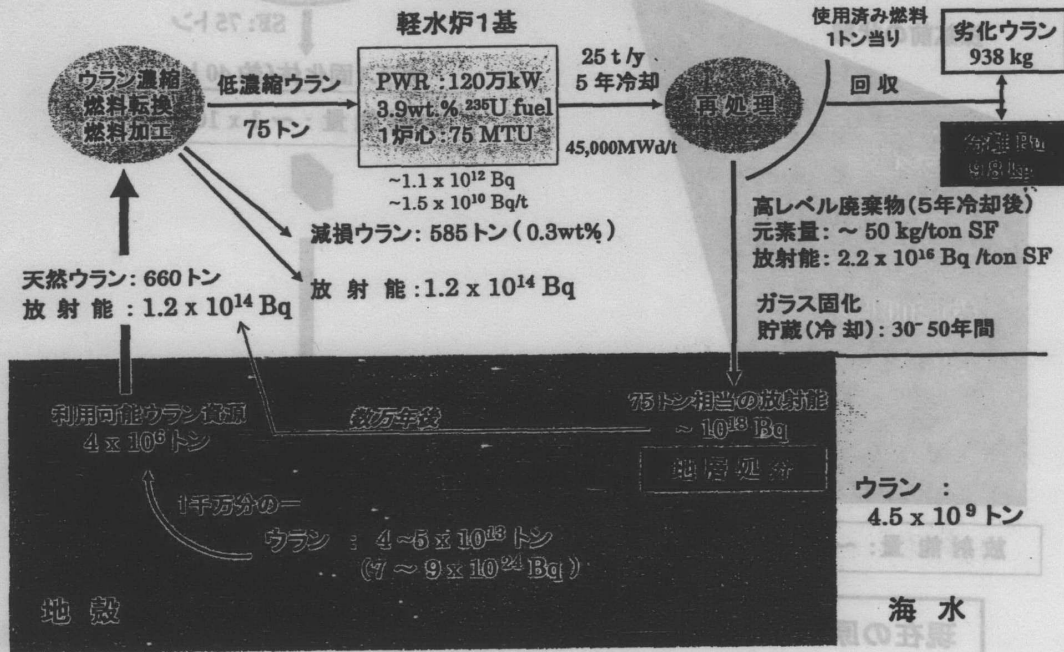
過去・現在の人間活動からの放射能と自然放射能(総量)



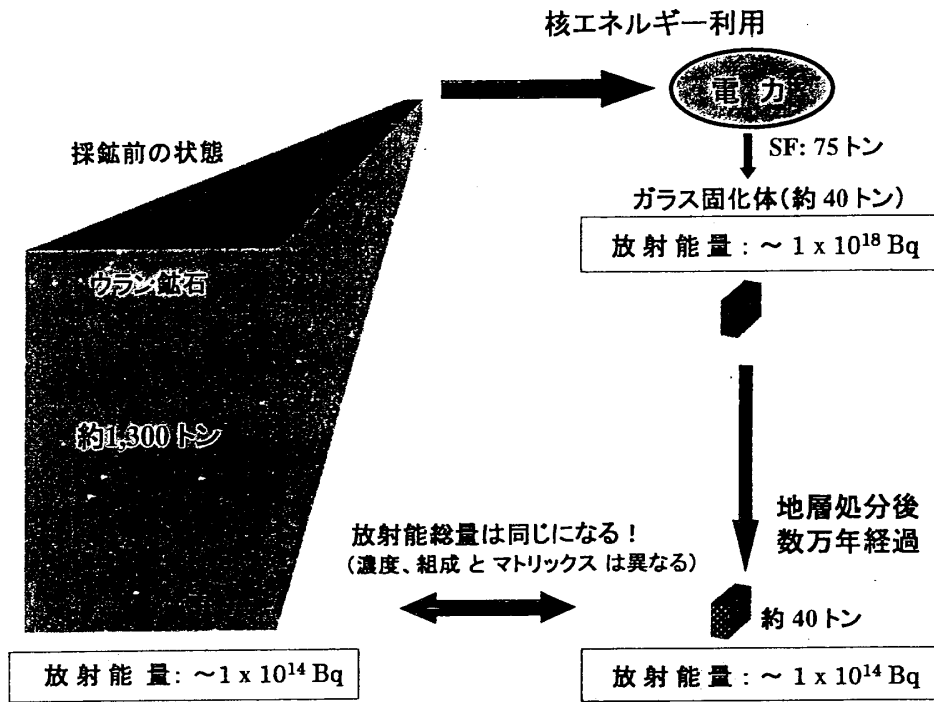
過去・現在の人間活動からの放射能と自然放射能(地表面濃度)



現在の原子力利用に伴う放射能の物質収支(総量)



放射能の推移から眺めた高レベル放射性廃棄物(ガラス固化体)の特徴



現在の原子力利用に伴う放射能の物質収支(経時変化)

今後の原子力利用と環境放射能の制御技術

原子炉施設からの放射性廃棄物 \Rightarrow 低レベルで大量発生

核燃料施設からの放射性廃棄物 \Rightarrow 高レベル、長寿命核種を含む

高レベル廃棄物
数万年～数十万年の完全隔離：深地層処分場

分離・核変換方式の提案

長寿命・放射性毒性が大きい核種を
核反応を利用して短寿命及び安定核種に変換

分離・核変換技術開発の目的・意義・目標

長寿命・放射性毒性が大きい核種を核反応を利用して短寿命及び安定核種に変換

対象核種：

- マイナーアクチノイド (MA : Np, Am, Cm)
- 長半減期核分裂生成物 (LLFP : ^{129}I , ^{99}Tc 等)
- 発熱の大きい核分裂生成物 (^{90}Sr , ^{137}Cs 等)

意義：

廃棄物蓄積量、潜在的毒性、発熱量を低減して、地層処分への負荷を軽減。

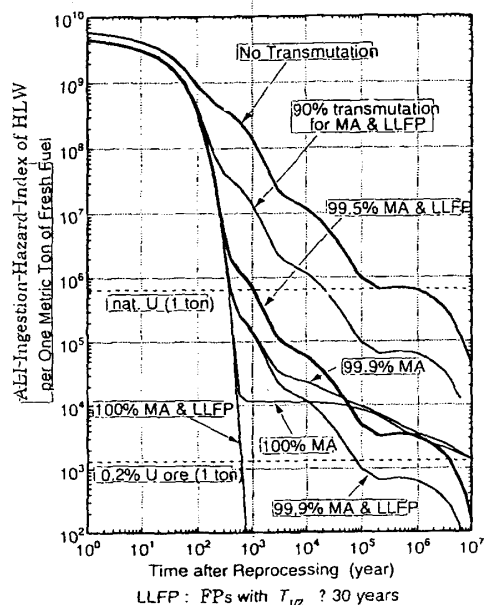
目標：

MAやLLFPの99.5%を核変換し、毒性指数を約1000年後には約4桁低減。
(天然ウランの毒性指数と同等にする)

主な廃棄物の年間摂取限度(経口)
(ALI: Annual Limit of Intake (Ingestion))

核種	ALI(Bq)
^{90}Sr	1×10^6
^{137}Cs	4×10^6
^{99}Tc	1×10^8
^{129}I	2×10^5
^{237}Np	3×10^3
^{241}Am	5×10^4

毒性指数: 含まれる核種の質量をそれぞれの年間摂取限度(ALI)で除した数値



高レベル放射性廃棄物 (HLW) の年間生成量

核分裂生成物の年間生成量¹⁾
(半減期10年以上の核種)

半減期区分	核種名	半減期(year)	重量(kg/年)
10年~100年	^{85}Kr	11	0.70
	^{90}Sr	29	16.3
	^{137}Cs	30	36.4
	^{151}Sm	90	0.37
100年~10 ⁴ 年	該当無し		
10 ⁴ 年 ~ 5 x 10 ⁹ 年 ²⁾	^{79}Se	6.5×10^4	0.15
	^{93}Zr	1.53×10^6	21.3
	^{99}Tc	2.13×10^5	23.4
	^{107}Pd	6.5×10^6	6.21
	^{126}Sn	1.0×10^5	0.64
	^{129}I	1.57×10^7	5.00
合計 ³⁾			120
5 x 10 ⁹ 年以上 (準安定核)	^{87}Rb , ^{115}In , ^{142}Ce , ^{144}Nd , ^{147}Sm , ^{148}Sm , ^{149}Sm		76.5

1) 生成量1g以上の核種のみ記載

2) ^{238}U の半減期は 4.47×10^9 年

3) 半減期が10年 ~ 5×10^9 年の核分裂生成物の合計値

計算: データJENDL-2, 計算コードFSRAC-FPGS

燃焼度: 30GWd/MT

冷却期間: 照射停止150日後の値

全FP生成量: 1.002kg/年

~1 ton

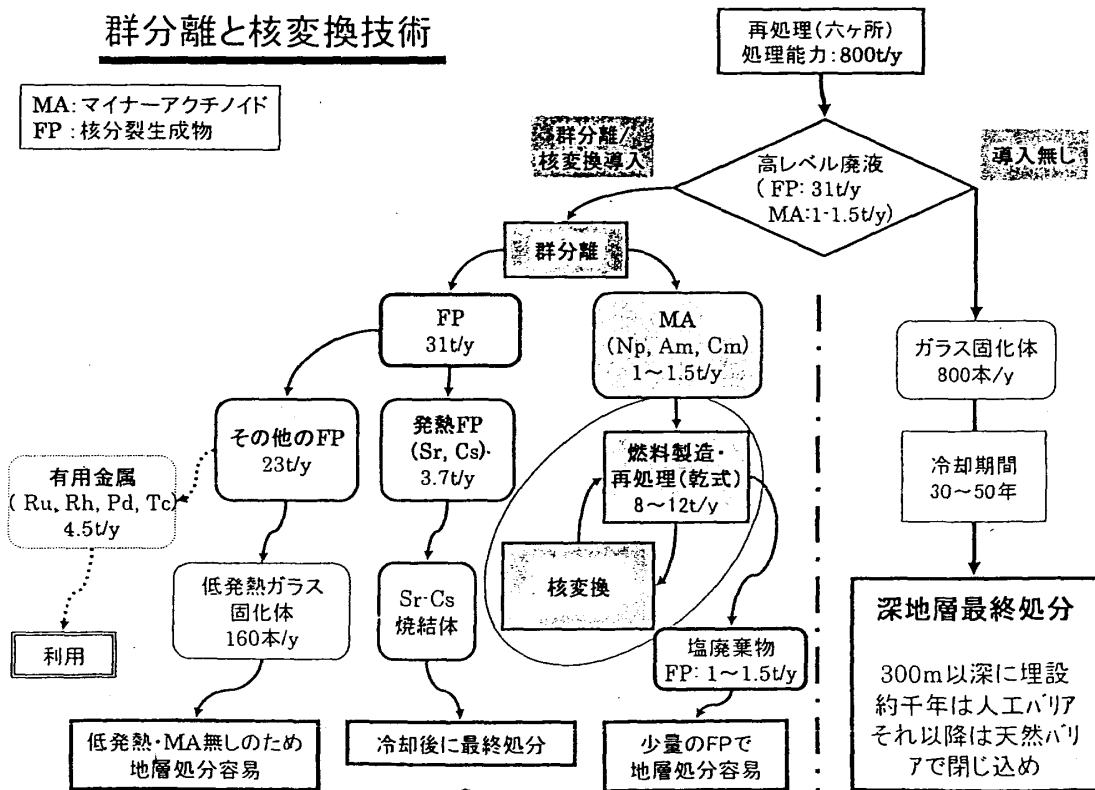
高レベル放射性廃棄物 (HLW) の年間生成量

マイナーアクチノイドの生成量

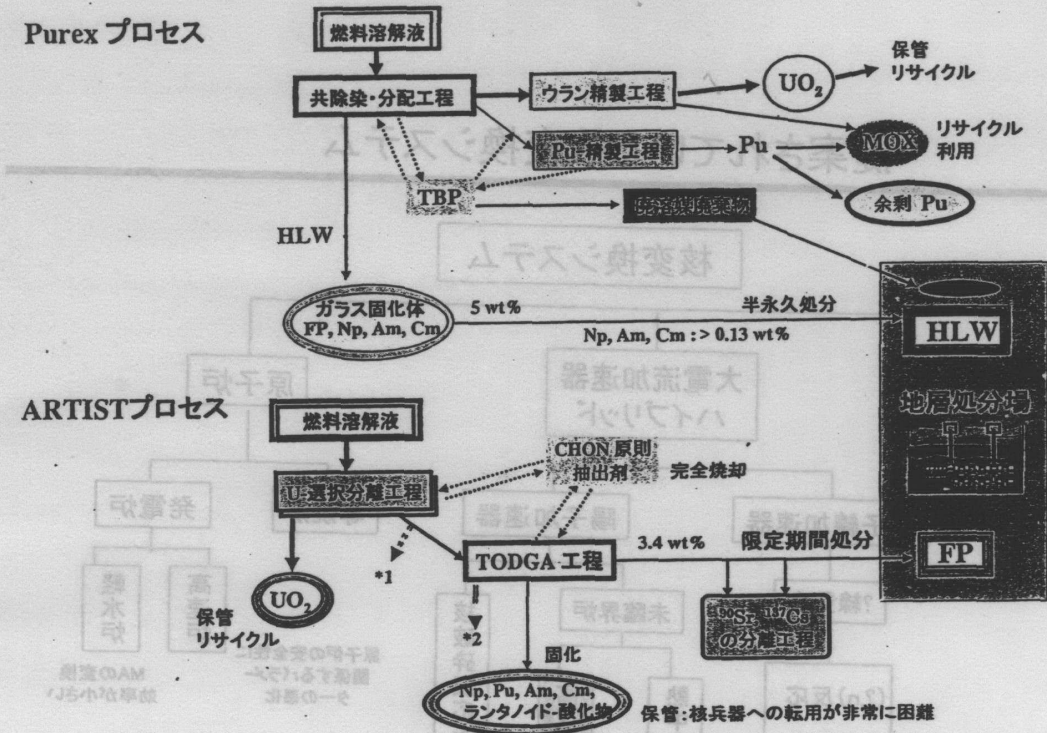
核種	冷却期間	半減期 (year)	3410MWt-PWR	
			3年後 (%)	10年後 (%)
^{237}Np		2.1×10^6	57.9	41.3
^{241}Am		432	27.4	48.8
^{243}Am		7380	11.9	8.33
^{243}Cm		28.5	0.03	0.02
^{244}Cm		18	2.67	1.44
^{245}Cm		8500	0.15	0.1
全重量			23.8 (kg/年)	33.9 (kg/年)

計算: データJENDL-2、計算コードSRAC-FPGS
 燃焼度: 33GWd/MT(PWR)
 再処理から群分離までの冷却期間: 5年
 U,Puの回収率: 100%

群分離と核変換技術



Purex プロセス



*1: オプション :Pu 分離工程 (DOHA抽出剤)、原子炉にリサイクルする量のPuのみを分離する。
 *2: オプション :TRU/ランタノイド分離工程 (窒素ドナー配位子)、核変換技術が完成した時に運転する。

核変換を実現するための条件

1. 弱害化:

核変換反応による2次生成核種や、分離工程からの2次廃棄物に起因するリスク(短期的リスク、長期的リスク)の低減。

2. エネルギーバランス:

原子力発電で発生する(廃棄物を作り出す)エネルギーと比較して、分離・変換に要するエネルギーがずっと小さい。

3. 経済性:

核変換を行うことによって大幅なコストの上昇をもたらさない。

4. 処理速度:

核変換の速度が自然崩壊速度よりも速い。

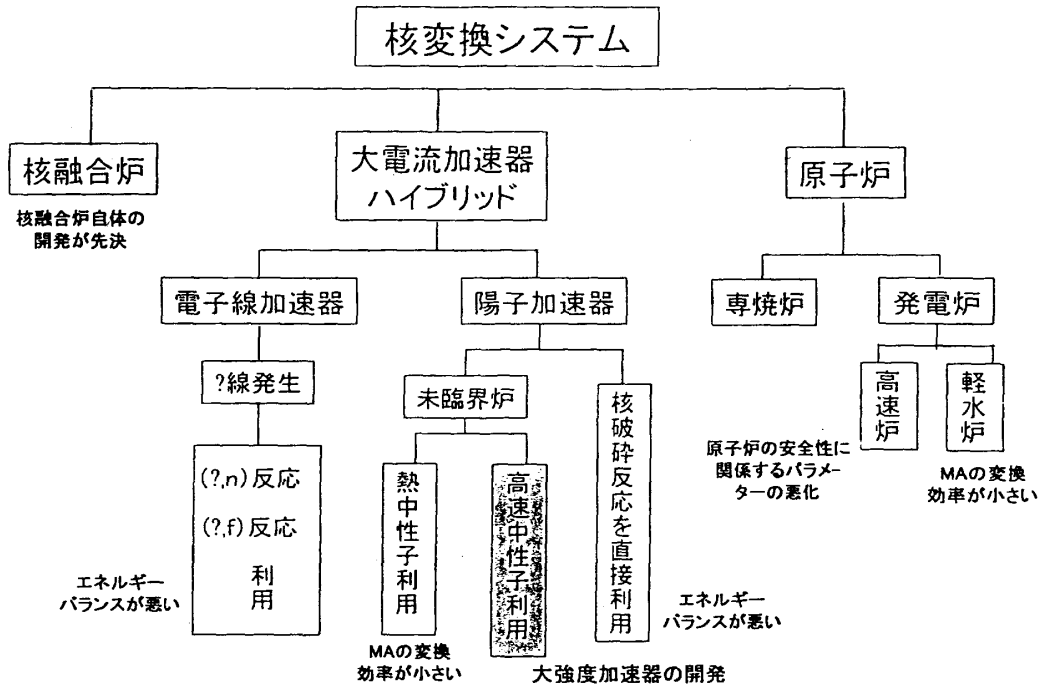
中性子、クーロン障壁に遮られることなく低い運動エネルギーでも原子核に容易に到達し、核反応を起こすためエネルギー収支の観点から有利。

中性子発生反応(効率の比較)

核反応	入射粒子	エネルギー等	中性子収量	発生する熱量 (MeV/n)
T(d,n)	重陽子	250keV (静電加速器)	$8 \times 10^{-5} n/d$	2500
光核反応	電子、 γ 線	10~100MeV (電子加速器)	$3 \times 10^{-2} n/e$	3100
核分裂	中性子	分裂炉 1GeV	$1 \sim 2 n/fission$	200*
核破砕	陽子	(陽子加速器)	$20 \sim 30 n/p$	23
核融合	(d-t)	融合炉	$1 n/fusion$	3*

* 発熱反応

提案されている核変換システム



核変換の効率 (中性子断面積)

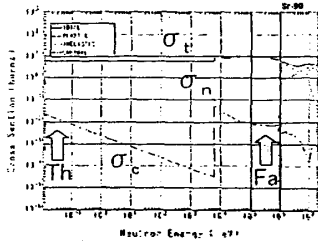
核変換半減期

$$T_{1/2} = \ln 2 / (\sigma \cdot \phi) \quad N = N_0 \exp(-\ln 2 t / T_{1/2})$$

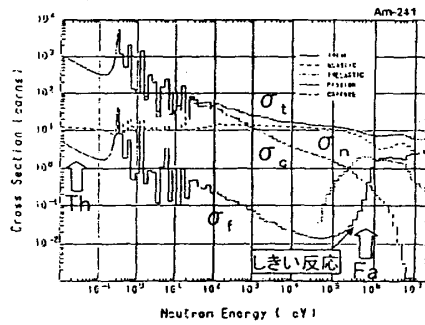
σ : 断面積 (barn·cm⁻²⁴)
 ϕ : 粒子線束 (cm⁻²·s⁻¹)
 (T_{1/2}: 1年を得るには、反応断面積 $\sigma = 1$ barn $\phi = 2.2 \cdot 10^{16}$ (cm²·s) の粒子線束が必要。)

有力と考えられる反応 (中性子束平均)

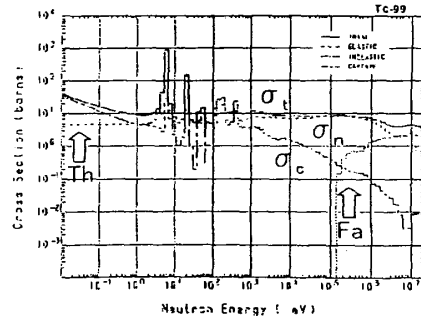
- MA核種: 高速中性子による核分裂反応。
断面積 1~2 barn @ 1MeV
- LLFP: 熱中性子による捕獲反応。
断面積は核種によって大きく異なる。
⁹⁹Tc, ¹²⁹I ではそれぞれ約 20barn と 24barn
⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs ではそれぞれ 0.01barn と 0.2barn



⁹⁰Sr の断面積

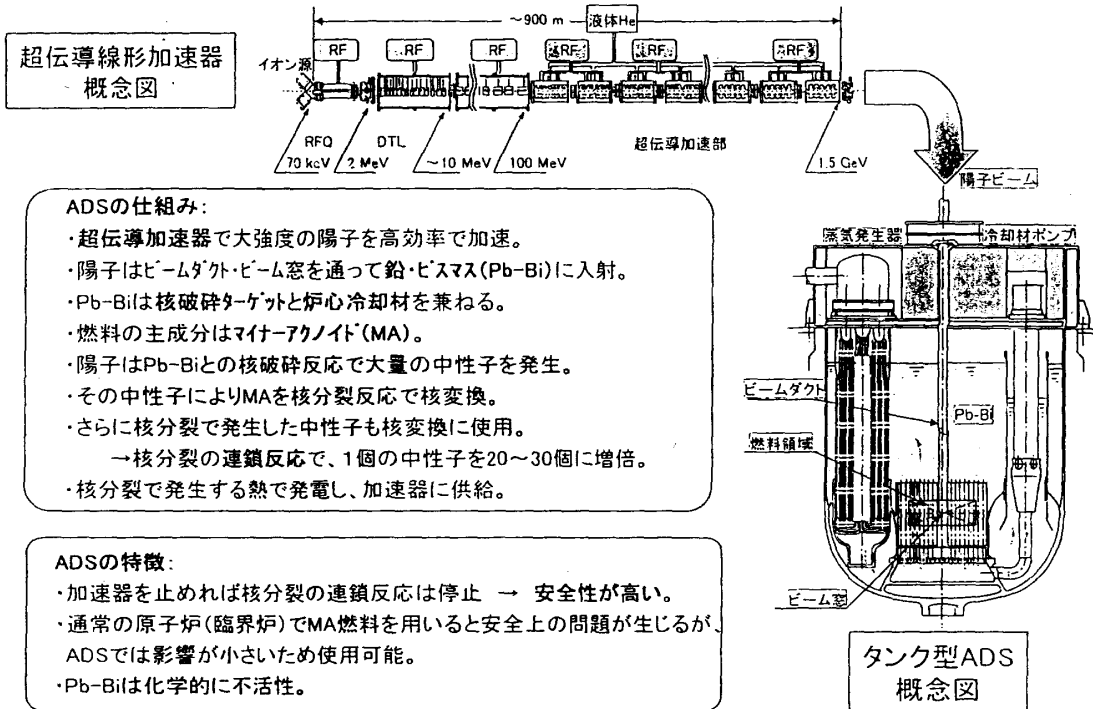


²⁴¹Am の断面積

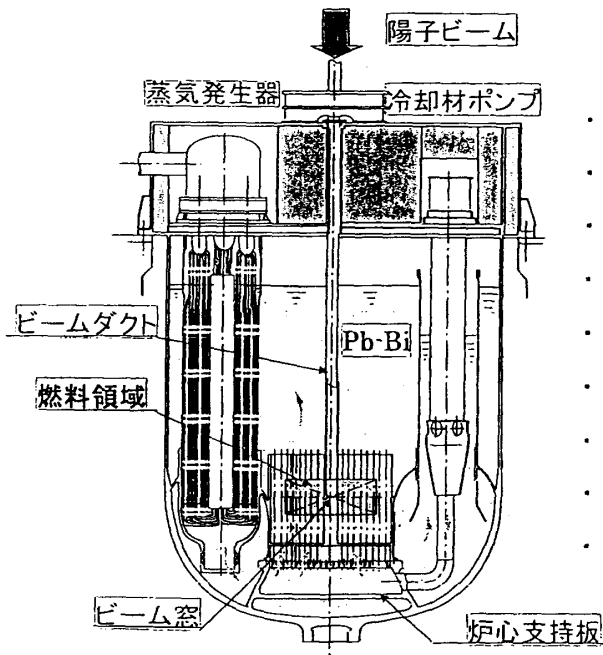


⁹⁹Tc の断面積

加速器駆動未臨界システム(ADS)



ADSの設計例



- ・陽子加速器: 1.5GeV 22~30MW
- ・核破砕ターゲット: Pb-Bi
- ・冷却材: Pb-Bi
- ・実効増倍係数: $k_{\text{eff}}=0.95$
- ・熱出力: 800MWt
- ・MA初期装荷量: 2.5t
- ・燃料組成: (40%Pu+60%MA) 窒化物
- ・変換率: 10%MA/年(軽水炉10基分)
- ・燃焼反応度: $+1.8\Delta k/k$

大強度陽子加速器計画の核変換実験施設

核変換物理実験施設

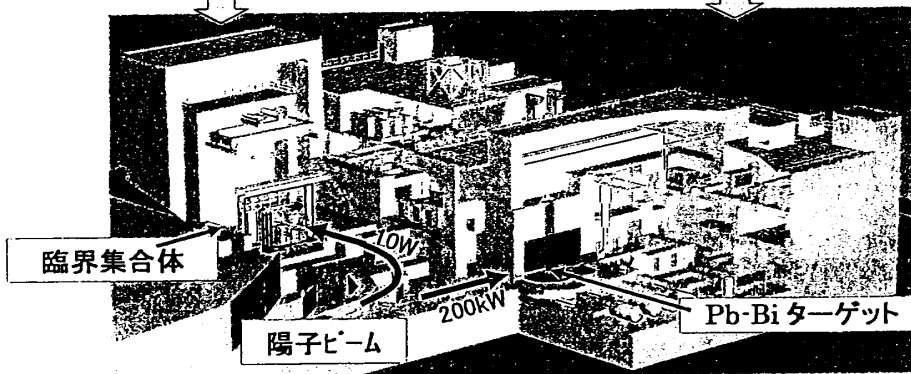
目的：低出力で未臨界炉心の物理的性質を探る

施設区分：原子炉(臨界実験施設)
陽子ビーム：600MeV、10W
熱出力：500W以下

ADSターゲット試験施設

目的：200kWの陽子ビームで核破碎ターゲットの技術開発と材料の研究開発を行う

施設区分：放射線発生装置
陽子ビーム：600MeV、200kW
ターゲット材料：鉛・ビスマス

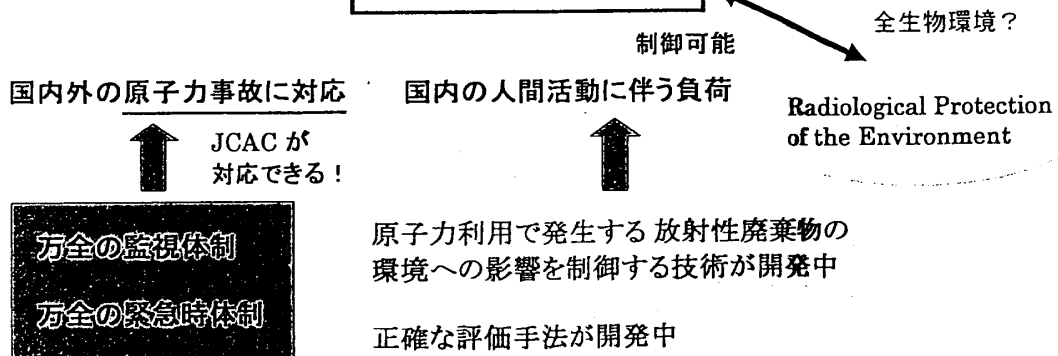


むすび

現在の環境放射能

- ◎ 制御が不可能である ➡ 国内の状況を マイクロ、マクロ的に把握
 - ◎ 時間とともに変動する ➡ 正確な予測が必要
- } JCAC が対応できる！

将来の環境放射能



研修の感想

王 志 榮 2003/10/30

15年ぶりに私はもう一度 TRMC から貴所へ研習のために派遣されてきました。貴所は昔より業務や設備や人員などが大きく変わりました。だけれども、皆様の親切なことは全然変わっていません。例えば、私は寒がりの人ですから上杉様は洋服を持って空港で迎えてくれました。また、ときどき、佐藤様他の皆様は「王さん寒くないですか。」といいますので心が温かくなります。中国の諺は「賓至如帰」(家に帰り着くに似る)を感じるがあります。JCAC は私の第二の郷里だと思っています。

わが国の全国実験室認証委員会 (CNLA) の新しい 17025 方針のなかで、環境放射線測定分野の不確かさ (The Expression of Uncertainty in Measurement) のことが要求されています。2003 年 12 月末の前に CNLA の認定実験室となるには、そのことを完成しなければなりません。当センターは台湾全国の環境放射線モニタリングの機関ですから、貴所の業務と同じ仕事が多いです。私はいま、TRMC で分析の品質保証の仕事をやっています。TRMC の分析について不確かさの評価方法を確立することが必要です。今回、貴所は TRMC に不確かさについての研習の機会を提供して下さい有り難うございました。

今度の研習の期間に貴所の上杉様は非常に細かく手配してくれました。私は日本語が下手ですが、授業の先生は頑張って教えてくれました。それでだんだんに理解しました。それらは、来週 TRMC に帰ってから、分析の不確かさの表示の手順を確立するときなどに非常に助けになります。

最後に貴所の皆様に心から感謝いたします。また、JCAC と TRMC の両方の技術交流についてはさらに増えることをお祈り申し上げます。