

福島事故廃棄物を対象とした ^{93}Zr , ^{93}Mo , ^{107}Pd 及び ^{126}Sn 分析法の開発

Development of ^{93}Zr , ^{93}Mo , ^{107}Pd and ^{126}Sn Analytical Methods for Radioactive Waste
from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

青野 竜士 佐藤 義行 島田 亜佐子 田中 究
上野 隆 石森 健一郎 亀尾 裕

Ryuji AONO, Yoshiyuki SATO, Asako SHIMADA, Kiwamu TANAKA
Takashi UENO, Ken-ichiro ISHIMORI and Yutaka KAMEO

原子力科学研究部門
原子力科学研究所
バックエンド技術部

Department of Decommissioning and Waste Management
Nuclear Science Research Institute
Sector of Nuclear Science Research

November 2017

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 (<http://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, 2017

福島事故廃棄物を対象とした ^{93}Zr , ^{93}Mo , ^{107}Pd 及び ^{126}Sn 分析法の開発

日本原子力研究開発機構 原子力研究開発部門

原子力科学研究所 バックエンド技術部

青野 竜士, 佐藤 義行, 島田 亜佐子, 田中 究, 上野 隆, 石森 健一郎, 亀尾 裕

(2017年9月11日受理)

福島第一原子力発電所で生じた事故廃棄物を対象として抽出された処分安全評価上重要となる放射性核種のうち, 分析手法が定まっていない ^{93}Zr , ^{93}Mo , ^{107}Pd 及び ^{126}Sn の4核種の分析法を開発した。主要な分析対象試料として, 福島第一原子力発電所構内で採取された滞留水・処理水を想定した。この滞留水・処理水中に含まれる ^{93}Zr , ^{93}Mo , ^{107}Pd 及び ^{126}Sn に対して, 目的核種の分離・精製法の開発, 回収率向上に取り組み, この成果を本報告にまとめた。

本報告書には, 技術研究組合国際廃炉研究開発機構(IRID)からの委託による「平成26年度補正予算(廃炉・汚染水対策事業補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発))」として実施した成果の一部を含む。

原子力科学研究所: 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4

Development of ^{93}Zr , ^{93}Mo , ^{107}Pd and ^{126}Sn Analytical Methods for Radioactive Waste from
Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

Ryuji AONO, Yoshiyuki SATO, Asako SHIMADA,
Kiwamu TANAKA, Takashi UENO, Ken-ichiro ISHIMORI and Yutaka KAMEO

Department of Decommissioning and Waste Management
Nuclear Science Research Institute
Sector of Nuclear Science Research
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 11, 2017)

We have developed analytical methods for ^{93}Zr , ^{93}Mo , ^{107}Pd and ^{126}Sn , which are considered important in terms of the safety assessment of radioactive waste disposal. The methods are specialized for the wastes left after accident occurred at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. As the main analytical sample, we assumed accumulated water / treated water collected at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. As for ^{93}Zr , ^{93}Mo , ^{107}Pd , and ^{126}Sn contained in this accumulated water / treated water, we have worked on the development of separation and purification method of target nuclide and improvement of recovery, and summarized these results in this report.

Keywords : Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Radiochemical Analysis, Zirconium-93,
Molybdenum-93, Palladium-107, Tin-126

This report includes part of the results obtained from the work “Development of technology for processing and disposal of solid wastes”, commissioned by International Research Institute for Nuclear Decommissioning (IRID) and carried out on a supplementary budget for fiscal year 2014 allocated for countermeasures for decommissioning and contaminated water treatment.

目次

1. はじめに	1
2. ^{93}Zr 分析法	2
3. ^{93}Mo 分析法	6
4. ^{107}Pd 分析法	10
5. ^{126}Sn 分析法	14
謝辞	19
参考文献	20
付録	21

Contents

1. Introduction	1
2. ^{93}Zr analytical method	2
3. ^{93}Mo analytical method	6
4. ^{107}Pd analytical method	10
5. ^{126}Sn analytical method	14
Acknowledgement	19
References	20
Appendix	21

図リスト

図 2.1	^{93}Zr 分析フロー.....	5
図 3.1	^{93}Mo 分析フロー.....	9
図 4.1	^{107}Pd 分析フロー.....	13
図 5.1	^{126}Sn 分析フロー.....	18

1. はじめに

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震に起因し、福島第一原子力発電所では、核燃料が冷却できなくなり、多量の放射性核種が原子炉内部から放出された。この放出により、原子炉建屋、タービン建屋等の構造物や機器、原子炉建屋周辺の樹木等が広範囲に汚染された。平成29年3月31日現在、約20万m³の瓦礫や、約8万m³の伐採木が保管されており^[1]、今後も多くの廃棄物が発生すると考えられる。これらの廃棄物を処理処分するためには、廃棄物に含まれる放射性核種の種類や濃度等の性状を明らかにすることが望まれる。

原子力災害対策本部の下に設置された廃炉・汚染水対策チーム^[2]では、処理処分方策の整備のために重要な分析対象核種を選定し、廃棄物の分析を実施している。分析対象核種として、³H, ¹⁴C, ³⁶Cl, ⁴¹Ca, ⁶⁰Co, ⁵⁹Ni, ⁶³Ni, ⁷⁹Se, ⁹⁰Sr, ⁹³Zr, ⁹³Mo, ⁹⁴Nb, ⁹⁹Tc, ¹⁰⁷Pd, ¹²⁶Sn, ¹²⁹I, ¹³⁵Cs, ¹³⁷Cs, ¹⁵¹Sm, ¹⁵²Eu, ¹⁵⁴Eu, ²³³U, ²³⁴U, ²³⁵U, ²³⁶U, ²³⁸U, ²³⁷Np, ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu, ²⁴²Pu, ²⁴¹Am, ^{242m}Am, ²⁴³Am, ²⁴⁴Cm, ²⁴⁵Cm, ²⁴⁶Cm の計38核種が選定されている。原子力科学研究部門 原子力科学研究所 バックエンド技術部 放射性廃棄物管理技術課では、研究所等から発生する放射性廃棄物を対象に簡易迅速な分析法を開発し^[3]、その分析法を滞留水や瓦礫、伐採木等に応用することにより、放射能データを蓄積してきた^[4]。しかしながら、これまでに開発した分析法では、選定された分析対象核種の全てを網羅しておらず、分析手法が定まっていない核種が存在することが課題であった。

本報告では分析手法が定まっていない核種のうち⁹³Zr, ⁹³Mo, ¹⁰⁷Pd, 及び¹²⁶Snの4核種に対して、固体試料等の溶液化後の基本分析法を構築し、ここにまとめた。溶液化については、これまでに開発したマイクロ波加熱分解等による溶液化が適用できることが分かっているため^[3, 5]、本報告では、溶液化後の化学分離操作に焦点を絞った。開発した分析法は滞留水・処理水の試料を想定して、実試料のルーチン分析にも適用できるように、できる限り簡易な分析法とした。開発した分析法は滞留水の分析を実施し適用性確認を行うことで、実廃棄物分析に耐えうる分析法であることを確認した。また、開発した分析法を正確かつ安全に行うために分析チェックシートを作成し、本報告書に付録として添付した。

本検討で開発した基本的な分析法は他の試料にも適用できるが、ルーチン分析にあたっては、試料の性状、分析条件に合わせて最適化した分析マニュアルを作成することが望ましい。

2. ^{93}Zr 分析法

2.1. 要旨

0.01 M フッ化水素酸中において TEVA レジンに Zr を吸着させ、Na, Mg, K, Ca, Sr, Mo, Nb 及び Cs などから分離する。吸着した Zr は 0.5 M フッ化水素酸/7 M 塩酸溶液によって溶離させて回収し、10 ml に定容する。 ^{93}Zr の放射能は、誘導結合プラズマ質量分析装置（以下、「ICP-MS」という。）により定量を行う。このとき加えた既知量の Zr 担体を定量することで回収率の確認を行う。

2.2. 適用範囲

本分析法は滞留水、及び処理水の ^{93}Zr 分析に適用することができる。目安として検出下限値は、供試料 1 ml、回収率 90%、ICP-MS による測定するとき 0.05 Bq/ml である。

2.3. 試薬および器具・装置

2.3.1. 試薬

- ・塩酸（多摩化学工業製，TAMAPURE-AA-10，または同等のもの）（注1）
- ・フッ化水素酸（多摩化学工業製，TAMAPURE-AA-10，または同等のもの）
- ・原子吸光用 Zr 標準液（和光純薬工業製，1000 ppm，1 M 硝酸，または同等のもの）
- ・TEVA レジン（Eichrom Technologies 製，粒径 100-150 μm ）

2.3.2. 器具・装置

- ・ICP-MS（ELAN DRC-e，または同等の性能のもの（注2））
- ・カラム（Eichrom Technologies 製 2 ml Empty columns，または同等のもの）

2.4. 操作

2.4.1. 化学分離

^{93}Zr の分析フローを図 2.1 に示す。試料は分析指針^[3]を参考にし、溶液化等の前処理を行う。前処理後の溶液から分析に使用する液量を一定量分取し、Zr 担体 0.05 μg を加え、加熱・濃縮を行う。乾固直前で 0.01 M フッ化水素酸 1 ml を加え、濃縮を 3 回繰り返し 0.01 M フッ化水素酸系に置き換える（注3）。残渣に 0.01 M フッ化水素酸を 10 ml 加えて溶解する（注4）。この溶液を、TEVA レジンに通液し、0.01 M フッ化水素酸 10.2 ml で樹脂を洗浄し妨害核種から分離する。その後、0.5 M フッ化水素酸/7 M 塩酸溶液 6.8 ml で Zr を溶離させて回収し、10 ml テフロンメスフラスコを用いて純水で定容する（注5）。

2.4.2. 測定

^{93}Zr の標準溶液は市販されていないため、検量線を作成できない。そこで、Zr の安定同位体の検量線を使用して ^{93}Zr の濃度を求める。そのため、原子吸光用 Zr 標準液を使用し、

既知の同位体比の $^{90,91,92,94}\text{Zr}$ を測定し、 ^{93}Zr の質量差別効果補正係数を求める。このとき、 ^{96}Zr も Zr 標準液に含まれているが、存在比が小さいため除外した。質量差別効果補正係数は近似式で表すことができ、使用した近似式を下記式に示す。

$$K_{\text{lin}} = \frac{R_{\text{true}}}{R_{\text{meas}}} = 1 + \Delta m \times \varepsilon_{\text{lin}}$$

- K_{lin} : 質量差別効果補正係数
 R_{true} : ^{90}Zr に対する各同位体の天然同位体比
 R_{meas} : ^{90}Zr の ICP-MS による計数率に対する各同位体の計数率の比
 Δm : ^{90}Zr と各同位体の質量の差
 ε_{lin} : 定数

求めた ^{93}Zr の質量差別効果補正係数を用いて下記式により ^{93}Zr 濃度 C_{93} の定量を行う。

$$C_{93} = \frac{\frac{N_{93}}{t_{93}}}{\frac{N_{90}}{t_{90}}} \times \frac{R_{\text{true}}}{R_{\text{meas}}} \times C_{90}$$

- N_{93} : m/z = 93 の計数 [cnt]
 N_{90} : m/z = 90 の計数 [cnt]
 t_{93} : m/z = 93 の測定時間 [s]
 t_{90} : m/z = 90 の測定時間 [s]
 C_{90} : 検量線より求めた ^{90}Zr 濃度 [ng/ ml]

求めた ^{93}Zr 濃度から下記式より放射能濃度 C_A を求める。

$$C_A = \frac{C_{93} \times 10^{-9} \times \ln(2) \times N_A}{T \times M_w}$$

- M_w : 原子量 [g/mol]
 N_A : アボガドロ数
 T : ^{93}Zr の半減期 [s]

回収率は、加えた既知量の Zr 担体を定量することで求める。このとき、試料中に含まれている ^{90}Zr 量をあらかじめ測定しておき、回収率の補正を行う。

2.5. 注意事項

- 注1 試薬は多摩化学工業製の TAMAPURE-AA-10 グレードまたは、それと同等の品質の試薬を使用する。特級グレードを使用するとバックグラウンド計数の上昇の原因となり検出限界値が高くなる。
- 注2 ICP-MS は試料溶液がフッ化水素酸溶液のため、耐フッ化水素酸の導入系を使用する。また、測定後は洗浄を入念に行い、フッ化水素酸が測定装置内に残存しないようにする必要がある。
- 注3 前処理後の試料溶液は 1 M 硝酸を溶媒に用いる。0.01 M フッ化水素酸に置き換えた際、硝酸が残存している場合、Zr は吸着せずに溶出してしまうおそれがある。そのため、硝酸濃度を 0.01 M 以下まで下げる必要がある。
- 注4 フッ化水素酸の濃度が濃いと、滞留水中に含まれる Na や Ca がフッ化物沈殿を生成し、Zr を巻き込んで沈殿する恐れがあり、回収率が低下する原因となる。また、塩化物イオン濃度が高い場合、Zr は吸着せずに溶出してしまうため、試料溶液の液量を十分に増やし、塩化物イオン濃度を 0.1 M 以下まで下げる必要がある。
- 注5 溶離液にはフッ化水素酸が含まれているため、テフロンビーカーで回収し、テフロンメスフラスコで定容する。テフロン製容器がない場合は、ポリエチレン製容器で代用可能である。

2.6. 解説

^{93}Zr は、 β 壊変によって ^{93}Nb に壊変し、 β 線及び X 線を放出する核種である。そのため、定量には ICP-MS による濃度測定もしくは低エネルギー γ 線・X 線用 Ge 半導体検出器（以下、「Ge-LEPS」という。）での X 線測定が考えられる。Ge-LEPS での定量は、 ^{93}Zr の X 線放出率が最大で 7.15%^[6]しかなく、十分に検出下限を担保する場合、供試料量を増やすか、測定時間を延ばす必要があり、適さない。そこで ICP-MS での定量を行うこととした。 ^{93}Zr を ICP-MS により定量するには、同重体である ^{93}Nb 、 ^{93}Mo を分離する必要がある。同重体の分離には TEVA レジンを用いるが、適切なフッ化水素酸及び塩酸濃度で溶離させることにより ^{93}Nb 、 ^{93}Zr 及び ^{93}Mo は逐次分離が可能である^[7]。0.5 M フッ化水素酸/7 M 塩酸溶液 6.8 ml で ^{93}Zr の分離、4 M フッ化水素酸 6.8 ml で ^{93}Mo の分離、TEVA レジン中には ^{93}Nb が残り、それぞれ妨害核種の混入は 3%以下である。なお、TEVA レジンによる分離の際に溶液中に硝酸イオンが含まれていると、Zr 及び Mo は TEVA レジンに吸着しなくなるため留意する必要がある。

本分析法を福島第一原子力発電所タービン建屋地階から採取した滞留水に適用した結果、Zr は 90~100%の良好な回収率が得られた。本分析法により得られる検出下限値は、供試料量 1 ml、回収率 90%のとき、0.05 Bq/ml であった。

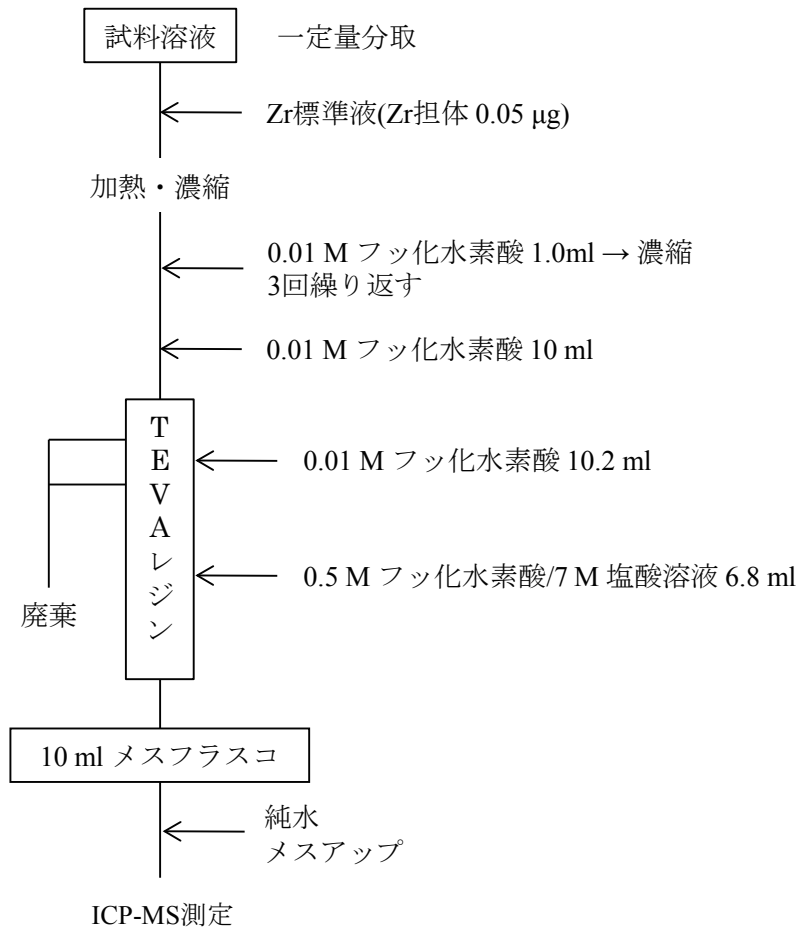


図 2.1 ^{93}Zr 分析フロー

3. ^{93}Mo 分析法

3.1. 要旨

0.01 M フッ化水素酸中において TEVA レジンに Mo を吸着させ、Na, Mg, K, Ca, Sr, Zr, Nb 及び Cs などから分離する。吸着した Mo は 4 M フッ化水素酸によって溶離させて回収し、定容後、一部を分取し誘導結合プラズマ発光分光分析装置（以下、「ICP-AES」という。）で回収率の確認を行う。 ^{93}Mo の放射能は、溶離液を Ta 板に焼き付けたのち、マイラー箔で覆い低エネルギー γ 線・X線用 Ge 半導体検出器（以下、「Ge-LEPS」という。）で X 線を測定し定量を行う。

3.2. 適用範囲

本分析法は滞留水、及び処理水の ^{93}Mo 分析に適用することができる。目安として検出下限値は、供試料 1 ml, 回収率 90%, Ge-LEPS による測定するとき、測定時間 70,000 s で 0.05 Bq/ml である。

3.3. 試薬および器具・装置

3.3.1. 試薬

- ・塩酸
- ・フッ化水素酸
- ・原子吸光用 Mo 標準液（和光純薬工業製，1000 ppm，0.4 M 塩酸/0.2 M 硝酸，または同等のもの）
- ・TEVA レジン（Eichrom Technologies 製，粒径 100-150 μm ）

3.3.2. 器具・装置

- ・ICP-AES（ICPS-7510，または同等の性能のもの（注1））
- ・Ge-LEPS（GLP-36360/13-P，または同等の性能のもの）
- ・カラム（Eichrom Technologies 製 2 ml Empty columns，または同等のもの）
- ・Ta 板（厚さ 0.1 mm）

3.4. 操作

3.4.1. 化学分離

^{93}Mo の分析フローを図 3.1 に示す。試料は分析指針^[3]を参考にし、溶液化等の前処理を行う。前処理後の溶液を一定量分取し、Mo 担体 0.5 mg を加え、加熱・濃縮を行う。0.01 M フッ化水素酸 1 ml を加え、濃縮を 3 回繰り返して 0.01 M フッ化水素酸系に置き換える（注2）。残渣に 0.01 M フッ化水素酸を 10 ml 加えて溶解する（注3）。この溶液を、TEVA レジンに通液し、0.01 M フッ化水素酸 10.2 ml 及び 0.5 M フッ化水素酸/7 M 塩酸溶液 6.8 ml で樹脂

を洗浄し妨害核種から分離する。その後、4 M フッ化水素酸 6.8 ml で Mo を溶離させて回収し、10 ml テフロンメスフラスコを用いて純水で定容する（注 4）。

3.4.2. 測定

Ge-LEPS を用いて、エネルギー校正及び効率校正用に作製した ^{241}Am 標準線源の X 線・ γ 線を測定する。定容した回収液 9.0 ml をテフロンビーカーで加熱・濃縮する。残りの回収液は回収率測定用試料として使用する。乾固直前で 1 M 硝酸 0.5 ml を加え、濃縮を 3 回繰り返して硝酸に置き換える。残渣を 1 M 硝酸 0.5 ml で溶解したのち、Ta 板上に 50 μl ずつ滴下し、計 400 μl をホットプレート上で加熱・乾固する。乾固後、プラスチック板上に Ta 板を乗せ、マイラー箔で覆い測定用試料とする。測定用試料の X 線を Ge-LEPS で測定し、 ^{93}Mo を定量する。定容した回収液 1.0 ml を 10 ml テフロンメスフラスコで定容し、ICP-AES で測定する。既知量の Mo を測定して検量線を作成し、Mo の定量を行い、回収率を求める。このとき、試料中に含まれている Mo 量をあらかじめ測定しておき、回収率の補正を行う。

試料中の ^{93}Mo 放射能濃度 A とその標準偏差 σ_A は、次式に従って求める。

$$A = \frac{N}{t} \times \frac{100}{\varepsilon} \times \frac{100}{I} \times \frac{100}{Y} \times \frac{100}{F} \times \frac{1}{W_S}$$

$$\sigma_A = \frac{\sigma_N}{t} \times \frac{100}{\varepsilon} \times \frac{100}{I} \times \frac{100}{Y} \times \frac{100}{F} \times \frac{1}{W_S}$$

$$Y = \frac{R_{\text{Mo}}}{S \times W_S + W_C} \times 100$$

ただし、

N : 放射能計測における ^{93}Mo の X 線ピーク領域の正味計数 [cnt]

t : 放射能計測時間 [s]

ε : 放射能計測における ^{93}Mo の X 線計数効率 [%]

I : ^{93}Mo の X 線放出率 [%]

Y : 化学分離・精製における Mo の回収率 [%]

F : 分取率 [%]

W_S : 分析供試料量 [g]

σ_N : 放射能計測における ^{93}Mo の X 線ピーク領域の正味計数標準偏差 [cnt]

R_{Mo} : 回収した Mo 量 [mg]

S : 試料中の安定 Mo 濃度 [mg/g]

W_C : 加えた安定 Mo 担体量 [mg]

である。

3.5. 注意事項

- 注1 ICP-AES は試料溶液がフッ化水素酸溶液のため、耐フッ化水素酸の導入系を使用する。また、測定後は洗浄を入念に行い、フッ化水素酸が測定器内に残存しないようにする必要がある。
- 注2 前処理後の試料溶液は 1 M 硝酸を溶媒に用いる。0.01 M フッ化水素酸に置き換えた際、硝酸が残存している場合、Mo は吸着せずに溶出してしまうおそれがある。そのため、硝酸濃度を 0.01 M 以下まで下げる必要がある。
- 注3 フッ化水素酸の濃度が濃いと、滞留水中に含まれる Na や Ca がフッ化物沈殿を生成し、Mo を巻き込んで沈殿する恐れがあり、回収率が低下する原因となる。
- 注4 溶離液にはフッ化水素酸が含まれているため、テフロンビーカーで回収し、テフロンメスフラスコで定容する。テフロン製容器がない場合は、ポリエチレン製容器で代用可能である。

3.6. 解説

^{93}Mo は、電子捕獲によって ^{93}Nb に壊変し、X 線を放出する核種である。そのため、定量には誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS) による同重体の濃度測定もしくは Ge-LEPS での X 線測定が考えられる。本法では、 ^{93}Mo の X 線を測定するために Ge-LEPS を使用し、放射能を定量することとした。効率校正は、 ^{93}Mo 標準溶液が市販されていないため、 ^{93}Mo ($E_X = 16.52, 16.62 \text{ keV}$, $I = 21, 41\%$ [6]) に対して、同エネルギーの X 線を放出する ^{241}Am ($E_X = 13.9 \text{ keV}$ [8]) を用いて行った。

TEVA レジンは、陰イオンを吸着させる性質がある。0.01 M フッ化水素酸中では、Mo はフッ化物イオンと錯形成し陰イオン錯体となり TEVA レジンに吸着する。このとき、フッ化物イオンと陰イオン錯体を形成しない Na, Mg, Ca, K 及び Sr は吸着しない。その後の 0.5 M フッ化水素酸/7 M 塩酸溶液で Zr を溶離し、Mo は吸着されたままとなる。この性質を利用して試料中に含まれる主成分から Mo を分離することができる。4 M フッ化水素酸によって Mo を溶離し測定試料とする。X 線測定時に妨害となる核種は、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ 及び ^{93}Zr が考えられるが、 ^{93}Zr は前段階で分離されており、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ は TEVA レジンに吸着したままであるため測定に影響はない。TEVA レジンによる分離の際に溶液中に硝酸イオンが含まれていると、Mo は TEVA レジンに吸着しなくなるため留意する必要がある。

本分析法を福島第一原子力発電所タービン建屋地階から採取した滞留水に適用した結果、Mo は 90% の良好な回収率が得られた。また、X・ γ 線スペクトルを確認したところ、 ^{93}Mo 以外の X・ γ 線放出核種の存在は認められず、十分に他の核種から分離されていることが確認できた。本分析法により得られる検出下限値は、供試料量 1 ml, 回収率 90%, 70,000 s 測定するとき、0.05 Bq/ml であった。

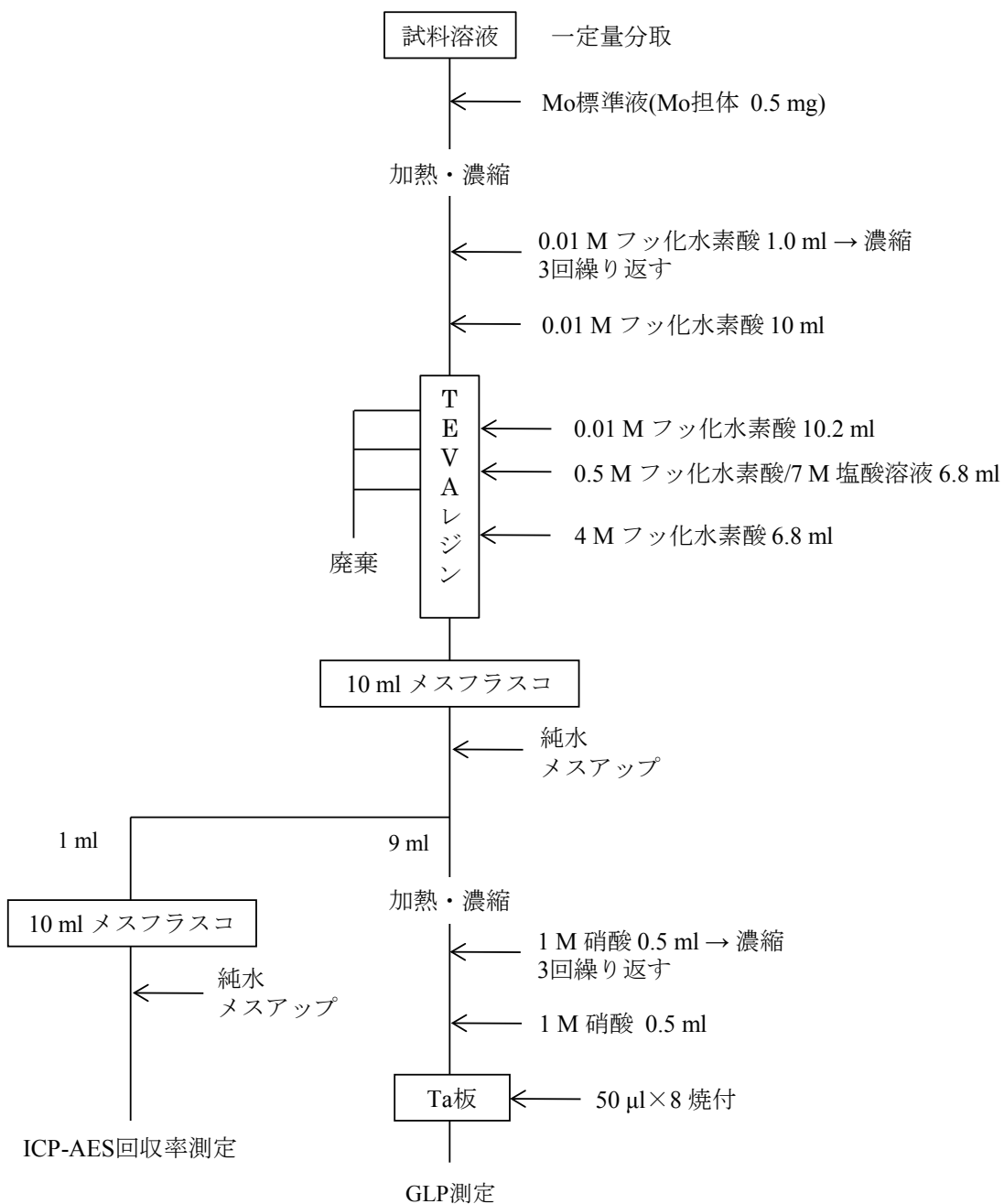


図 3.1 ⁹³Mo 分析フロー

4. ^{107}Pd 分析法

4.1. 要旨

塩酸中において Pd 塩化物錯体を形成させることによって陰イオン交換樹脂に吸着させ、Cs, Sr, Ag 及び Cd などから分離する。吸着した Pd はアンモニア水によって溶離させて回収し、誘導結合プラズマ質量分析装置（以下、「ICP-MS」という。）を用いて、 ^{107}Pd の濃度を測定し定量を行う。このとき加えた既知量の Pd 担体を定量することで回収率の確認を行う。

4.2. 適用範囲

本分析法は滞留水及び処理水の ^{107}Pd 分析に適用することができる。目安として検出下限値は、供試料 1 ml, 回収率 70%, ICP-MS による測定するとき 0.05 Bq/ml である。

4.3. 試薬および器具・装置

4.3.1. 試薬

- ・塩酸（多摩化学工業製, TAMAPURE-AA-10, または同等のもの）（注 1）
- ・硝酸（多摩化学工業製, TAMAPURE-AA-10, または同等のもの）
- ・アンモニア水（関東化学製, Ultrapur, または同等のもの）
- ・原子吸光用 Pd 標準液（和光純薬工業製, 1000 ppm, 1 M 塩酸, または同等のもの）
- ・原子吸光用 Ag 標準液（和光純薬工業製, 1000 ppm, 0.1 M 硝酸, または同等のもの）
- ・陰イオン交換樹脂（Dowex 製 1x8 粒径 100-200 μm , または同等のもの）

4.3.2. 器具・装置

- ・ICP-MS（ELAN DRC-e, または同等の性能のもの）
- ・カラム（Eichrom Technologies 製 2 ml Empty columns, または同等のもの）

4.4. 操作

4.4.1. 化学分離

^{107}Pd の分析フローを図 4.1 に示す。試料は分析指針^[3]を参考にし、溶液化等の前処理を行う。前処理後の溶液を一定量分取し、Pd 担体 0.1 μg を加え、8 M 塩酸を分取した試料量と同量加え 4 M 塩酸に調製する。この溶液を陰イオン交換樹脂に通液し、1 M 硝酸 12 ml で樹脂を洗浄し妨害核種から分離する。その後、1 M アンモニア水 4 ml で Pd を溶離させて回収し、回収液を 10 ml メスフラスコを用いて純水で定容する（注 2）。

4.4.2. 測定

^{107}Pd の標準溶液は市販されていないため、検量線を作成できない。そこで、Pd の安定同

同位体の検量線を使用して¹⁰⁷Pdの濃度を求める。そのため、既知の同位体比の^{104,105,106,108,110}Pdを測定し、¹⁰⁷Pdの質量差別効果補正係数を求める。このとき、¹⁰²PdもPd標準液に含まれているが、存在比が小さいため除外した。質量差別効果補正係数は近似式で表すことができ、使用した近似式を下記式に示す。

$$K_{\text{lin}} = \frac{R_{\text{true}}}{R_{\text{meas}}} = 1 + \Delta m \times \varepsilon_{\text{lin}}$$

- K_{lin} : 質量差別効果補正係数
 R_{true} : ¹⁰⁵Pdに対する各同位体の天然同位体比
 R_{meas} : ¹⁰⁵PdのICP-MSによる計数率に対する各同位体の計数率の比
 Δm : ¹⁰⁵Pdと各同位体の質量の差
 ε_{lin} : 定数

求めた¹⁰⁷Pdの質量差別効果補正係数を用いて下記式により¹⁰⁷Pd濃度 C_{107} の定量を行う(注3)。

$$C_{107} = \frac{\frac{N_{107}}{t_{107}}}{\frac{N_{105}}{t_{105}}} \times \frac{R_{\text{true}}}{R_{\text{meas}}} \times C_{105}$$

- N_{107} : m/z = 107 の計数 [cnt]
 N_{105} : m/z = 105 の計数 [cnt]
 t_{107} : m/z = 107 の測定時間 [s]
 t_{105} : m/z = 105 の測定時間 [s]
 C_{105} : 検量線より求めた¹⁰⁵Pd濃度 [ng/ml]

求めた¹⁰⁷Pd濃度から下記式より放射能濃度 C_A を求める。

$$C_A = \frac{C_{107} \times 10^{-9} \times \ln(2) \times N_A}{T \times M_w}$$

- M_w : 原子量 [g/mol]
 N_A : アボガドロ数
 T : ¹⁰⁷Pdの半減期 [s]

回収率は、加えた既知量の Pd 担体を定量することで求める。このとき、試料中に含まれている ^{105}Pd 量をあらかじめ測定しておき、回収率の補正を行う。

4.5. 注意事項

- 注1 試薬は多摩化学工業製の TAMAPURE-AA-10 グレードまたは、それと同等の品質の試薬を使用する。特級グレードを使用するとバックグラウンド計数の上昇の原因となり検出限界値が高くなる。
- 注2 加熱濃縮によって Pd の濃縮を行うと、難溶解性の析出物を生じ誤差の原因となる。
- 注3 Pd は硝酸溶媒中では不安定であるため、試料溶液は分離後 2-3 日以内に測定を行う。また、検量線作成用試料は用時調製とする。

4.6. 解説

^{107}Pd は β 線のみを放出する純 β 核種であり、正確な定量を行うためには、Pd を他の核種から十分に分離する必要がある。 ^{107}Pd の定量法には放射能測定もしくは質量分析法が考えられるが、放射能測定を行うためには Pd と化学的性質が類似した Ru との分離が必須となり化学分離操作が煩雑となる。一方で質量分析の場合は、同重体である ^{107}Ag や装置内で酸素と分子異音を生成する ^{91}Zr 等を分離すればよく、化学分離操作が Ru との分離に比べ容易である。そのため、定量法には質量分析法を採用し、Ag や Zr 等から Pd を分離するフローを構築した。化学分離は、Pd と化学的性質の酷似した Ru の分析法^[10]及び陰イオン交換樹脂に対する分配比^[11]を参考に条件を決定した。4 M 塩酸中では Pd は塩化物イオンと錯形成し陰イオン錯体となり陰イオン交換樹脂に吸着する。このとき、塩化物イオンと陰イオン錯体を形成しない Na, Al, Ca, Sr, Y, Zr 及び Cs は吸着しない。その後の 1 M 硝酸の洗浄によって、Fe や Co は溶離するが、Pd は吸着されたままの状態となる。この性質を利用して試料中に含まれる主成分から Pd を分離する。Pd は 1 M アンモニア水を通液することによってアンミン錯体を形成させ陰イオン交換樹脂から溶離回収させる。

本分析法を福島第一原子力発電所タービン建屋地階から採取した滞留水に適用した結果、Pd は 70%の回収率が得られた。また、検出下限値は、供試料量 1 ml, 回収率 70%のとき、0.05 Bq/ml であった。

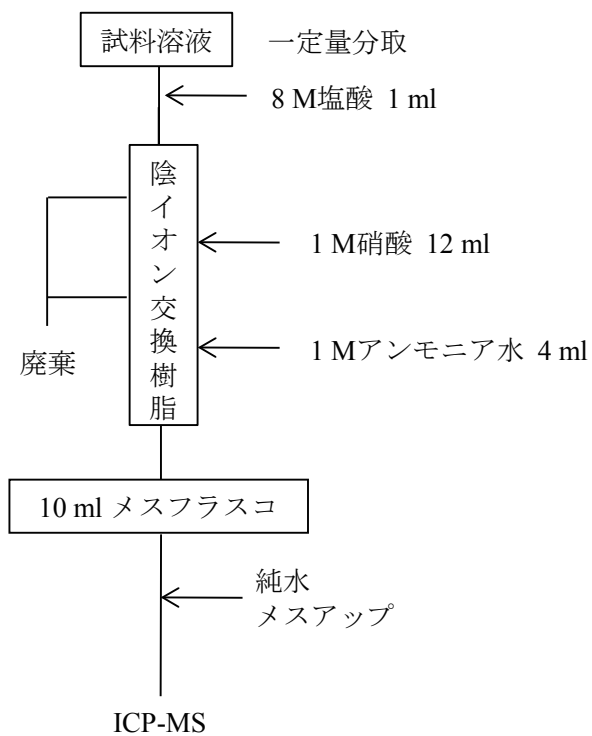


図 4.1 ^{107}Pd 分析フロー

5. ^{126}Sn 分析法

5.1. 要旨

Sn 担体を加え、過酸化水素水で価数調整をした試料を、塩酸中において Sn 塩化物錯体を形成させることによって陰イオン交換樹脂に吸着させ、Cs, Sr, Ag などから分離する。吸着した Sn は硝酸によって溶離させて回収し、定容後、一部を分取し誘導結合プラズマ発光分光分析装置（以下、「ICP-AES」という。）で回収率の確認を行う。 ^{126}Sn の放射能は、残液をバイアル瓶に乾固させたのち、低エネルギー γ 線・X線用 Ge 半導体検出器（以下、「Ge-LEPS」という。）で γ 線を測定し定量を行う。

5.2. 適用範囲

本分析法は滞留水及び瓦礫の ^{126}Sn 分析に適用することができる。目安として滞留水の検出限界値は、供試料 1 ml、回収率 60%、Ge-LEPS による測定するとき、測定時間 70,000 s で 0.05 Bq/ml である。瓦礫の検出限界値は、供試料 1 g、回収率 60%、Ge-LEPS による測定するとき、測定時間 70,000 s で 0.03 Bq/g である。

5.3. 試薬および器具・装置

5.3.1. 試薬

- ・ 塩酸
- ・ 硝酸
- ・ 過酸化水素水
- ・ 原子吸光用 Sn 標準液（和光純薬工業製，1000 ppm，3 M 塩酸，または同等のもの）
- ・ 陰イオン交換樹脂（Merck 製 1x8 粒径 100-200 μm と同等のもの）

5.3.2. 器具・装置

- ・ ICP-AES（ICPS-7510，または同等の性能のもの）
- ・ Ge-LEPS（GLP-36360/13-P，または同等の性能のもの）
- ・ カラム（BioRAD 製 Econo Pac 20 ml カラム，または同等のもの）
- ・ バイアル瓶（5 ml ガラス瓶，底面の厚みが 2 mm 以内のもの）（注 1）

5.4. 操作

5.4.1. 化学分離

^{126}Sn の分析フローを図 5.1 に示す。試料は分析指針^[3]を参考にし、溶液化等の前処理を行う。前処理後の溶液を一定量分取し、同量の 6 M 塩酸及び Sn 担体 1 mg を加えて 3 M 塩酸を調製する。この溶液に、過酸化水素を 0.1 ml 加え、5 分程度静置したのち、穏やかに加熱・攪拌を行い、気泡が発生しなくなったら放冷する（注 2, 3）。試料溶液を陰イオン交換樹脂

に通液し、1 M 塩酸 65 ml 及び 1 M 硝酸 5 ml で樹脂を洗浄し妨害核種から分離する。その後、1 M 硝酸 25 ml で Sn を溶離させて回収し、回収液の重量を測定する（注 4）。このとき、試料中に含まれている Sn 量をあらかじめ測定しておき、回収率の補正を行う。

5.4.2. 測定

Ge-LEPS を用いて、エネルギー校正及び効率校正用に作製した ^{237}Np 標準線源の X 線・ γ 線を測定する。重量を測定した回収液から 2.5 ml を分取し、これを回収率測定用試料とする。残液の重量を測定し、ホットプレートで加熱・濃縮する（注 5）。3 ml 程度まで濃縮し、5 ml バイアル瓶に移し入れたのち、加熱・乾固し放射能測定用試料とする。放射能測定用試料の γ 線を Ge-LEPS で測定し、 ^{126}Sn を定量する。回収率測定用試料は 10 ml メスフラスコを用いて 1 M 硝酸で定容し、ICP-AES で測定する（注 6）。既知量の Sn を測定して検量線を作成し、Sn の定量を行い、回収率を求める。

試料中の ^{126}Sn 放射能濃度 A とその標準偏差 σ_A は、次式に従って求める。

$$A = \frac{N}{t} \times \frac{100}{\varepsilon} \times \frac{100}{I} \times \frac{100}{Y} \times \frac{100}{F} \times \frac{1}{W_S}$$

$$\sigma_A = \frac{\sigma_N}{t} \times \frac{100}{\varepsilon} \times \frac{100}{I} \times \frac{100}{Y} \times \frac{100}{F} \times \frac{1}{W_S}$$

$$Y = \frac{R_{\text{Sn}}}{S \times W_S + W_C} \times 100$$

ただし、

N : 放射能計測における ^{126}Sn の γ 線ピーク領域の正味計数 [cnt]

t : 放射能計測時間 [s]

ε : 放射能計測における ^{126}Sn の γ 線計数効率 [%]

I : ^{126}Sn の γ 線放出率 [%]

Y : 化学分離・精製における Sn の回収率 [%]

F : 分取率 [%]

W_S : 分析供試料量 [g]

σ_N : 放射能計測における ^{126}Sn の γ 線ピーク領域の正味計数標準偏差 [cnt]

R_{Sn} : 回収した Sn 量 [mg]

S : 試料中の安定 Sn 濃度 [mg/g]

W_C : 加えた安定 Sn 担体量 [mg]

である。

5.5. 注意事項

- 注1 ガラスの厚みが2 mmのときの ^{126}Sn の γ 線($E_\gamma = 87.57 \text{ keV}$ [12])の透過率は98.4%であり、自己吸収の影響は無視できるとした。底面の厚い容器を用いる場合は、 ^{126}Sn の自己吸収の影響を考慮し、透過率を計算する必要がある。
- 注2 過酸化水素水を加えた溶液を急激に加熱すると突沸する可能性があるため、気泡が発生しなくなるまで70°C程度で穏やかに加熱する。
- 注3 十分に過酸化水素を除去しておかないと、樹脂の分解を生じさせる。回収率が低下するとともに線源の自己吸収が大きくなり定量値の低下が生じる。
- 注4 回収液は濃縮せずに重量測定によって液量を計算する。濃縮を行うと難溶解性の塩が生じる可能性があり、ICP-AESで正しく回収率を測定することができない。
- 注5 定容した回収液を乾固してしまうと、妨害核種の混入があった場合、再分離が困難になるため、乾固前にGe-LEPSで γ 線スペクトルの確認を行うことが好ましい。 β 線放出核種などの混入の場合、制動放射により低エネルギー γ 線領域のバックグラウンドが上がってしまい、正確に定量することができなくなる。
- 注6 回収率測定は、分離・精製後1週間以内に行う必要がある。時間を置くと難溶解性の塩が徐々に析出して回収率低下の原因となる。

5.6. 解説

^{126}Sn は、低エネルギーの γ 線及び β 線のみを放出する核種であり、正確な放射能測定を行うためには、Snを他の核種から十分に分離する必要がある。そこで、Asaiらによる使用済み核燃料中の ^{126}Sn 分析手法[13]を参考にし、本分析手法を確立した。使用済み核燃料は、試料中のマトリクスを予測することは容易であるが、福島事故廃棄物では、試料の性状が様々であり、マトリクスの予測が困難であることから、ICP-MSを用いた定量は適さない。そこで ^{126}Sn の低エネルギーの γ 線を測定するためにGe-LEPSを使用し、放射能を定量することとした。効率校正は、 ^{126}Sn 標準線源を購入することができないため、 ^{126}Sn ($E_\gamma = 86.94, 87.57 \text{ keV}$, $I = 8.9, 37\%$ [12])に対して、同エネルギーの γ 線を放出する ^{237}Np ($E_\gamma = 86.477 \text{ keV}$ [12])を用いて効率を取得した。

試料の分離には、試料中に2価及び4価のSnイオンが混在していることを考慮する必要がある。そこで、前処理として過酸化水素水を加え、加熱・攪拌を行うことで、試料中に含まれるSnイオンを4価に調整することとした。3 M塩酸中ではSnは塩化物イオンと錯形成し陰イオン錯体となり陰イオン交換樹脂に吸着する。このとき、塩化物イオンと陰イオン錯体を形成しないNa, Al, Ca, Sr, Y及びCsは吸着しない。その後の1 M塩酸の洗浄によって、Coは溶離、Feは90%以上が溶離し、Snは吸着されたままの状態となる。この性質を利用して試料中に含まれる主成分からSnを分離する。Feは1 M硝酸5 mlの洗浄によっても樹脂から溶離し、 ^{126}Sn の定量の妨害となる。そのため、1 M硝酸の洗浄5 mlは廃棄し、Snと測定に影響がでない程度のFeが含まれるフラクションのみを測定試料とする。

本分析法を福島第一原子力発電所タービン建屋地階から採取した滞留水に適用したところ、Sn は 40～60%の回収率が得られた。また、 γ 線スペクトルを確認したところ、 ^{126}Sn 以外の γ 線放出核種の存在は認められず、十分に他の核種から分離されていることが確認できた。本分析法により得られる検出下限値は、供試料量 1 ml, 回収率 60%, 70,000 s 測定するとき、0.05 Bq/ml であった。

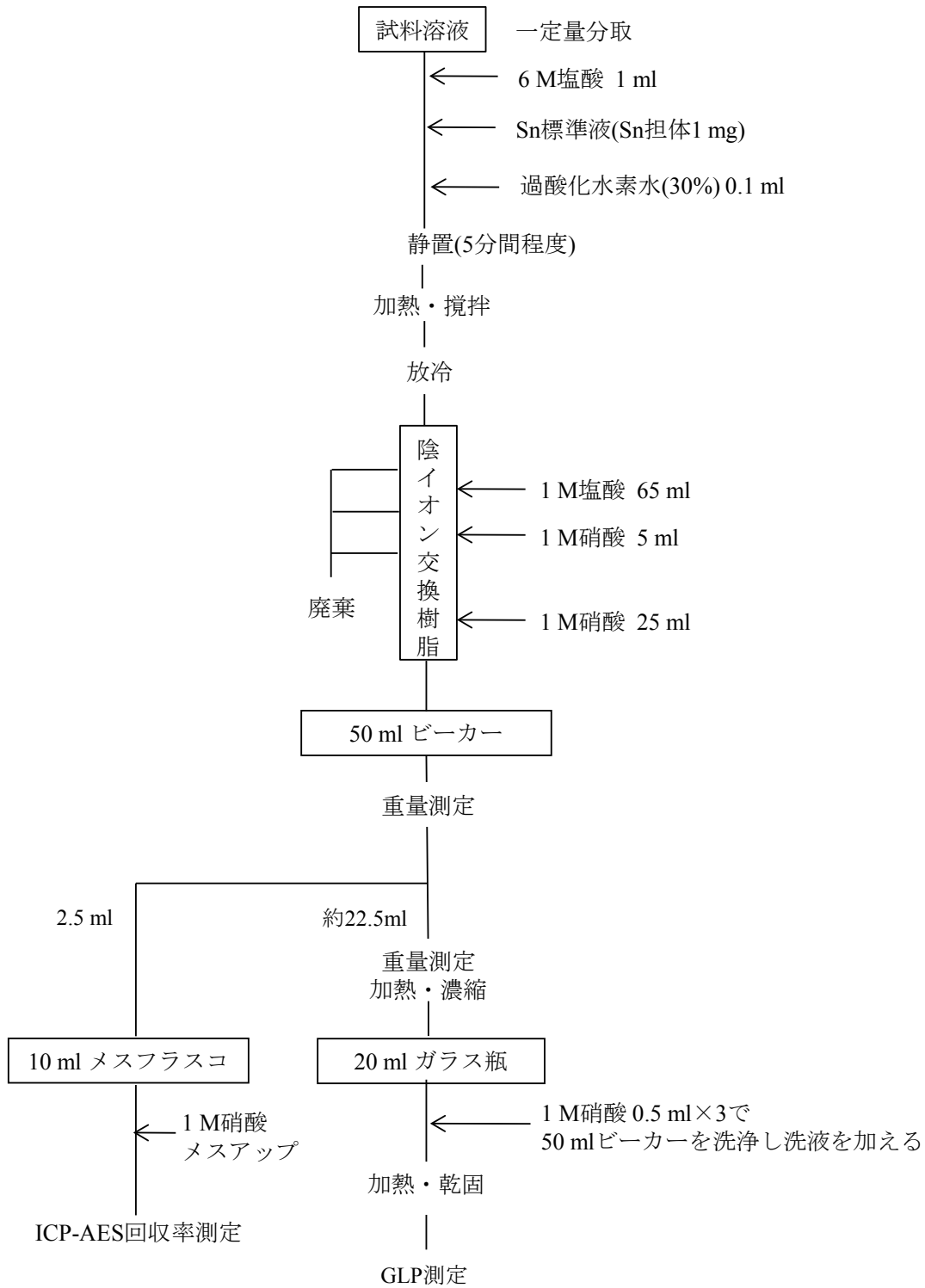


図 5.1 ^{126}Sn 分析フロー

謝辞

^{93}Zr , ^{93}Mo 分析手法の開発にあたりご協力をいただきました，東京パワーテクノロジー株式会社の根橋宏治氏に深く感謝いたします。また， ^{107}Pd 分析手法の開発にあたりご協力いただきました，東京パワーテクノロジー株式会社の徳永貴仁氏，日本原燃分析株式会社の沼山暁氏に深く感謝いたします。 ^{126}Sn 分析手法の開発にあたりご協力いただきました，原燃分析株式会社の新山拓也氏に深く感謝いたします。

本報告は，平成 26 年度「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）」の補助事業に基づいて実施した成果の一部です。

参考文献

- [1] 東京電力ホールディングス株式会社, 放射性廃棄物処理・処分について, <http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2017/04/3-04-02.pdf> (参照:2017年5月12日) .
- [2] 廃炉・汚染水対策関係閣僚等会議 (第1回), 東京電力 (株) 福島第一原子力発電所の廃炉・汚染水対策の体制強化について (原子力災害対策本部長決定), http://www.kantei.go.jp/jp/singi/hairo_osensui/dai1/siryoku2.pdf (参照:2017年5月9日) .
- [3] 亀尾裕, 島田亜佐子, 石森健一郎他, 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.
- [4] 浅見誠, 高畠容子, 明道栄人他, 東京電力福島第一原子力発電所において採取された汚染水および瓦礫等の分析データ集, JAEA-Data/Code 2017-001, 2017, 78p.
- [5] K. Tanaka *et al.*, Radiochemical analysis of rubble and trees collected from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 51, pp.1032-1043, 2014.
- [6] C. M. Baglin, Nuclear Data Sheets for A = 93, *Nucl. Data Sheets*, Vol. 112, No.5, pp.1163-1389, 2011.
- [7] A. Shimada, Y. Kameo, Development of an extraction chromatography method for the analysis of ^{93}Zr , ^{94}Nb , and ^{93}Mo in radioactive contaminated water generated at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Vol. 310, No.3, pp.1317-1323, 2016.
- [8] M. S. Basunia, Nuclear Data Sheets for A = 237, *Nucl. Data Sheets*, Vol. 107, No.8, pp.2323-2422, 2006.
- [9] A. Shimada *et al.*, Development of a separation method for molybdenum from zirconium, niobium, and major elements of rubble samples, *J. Chromatogr. A*, Vol. 1371, pp.163-167, 2014.
- [10] 文部科学省, 放射能測定シリーズ 10 放射性ルテニウム分析法, 分析センター, 千葉, 1996.
- [11] J. C. Rouchaud *et al.*, *J. Radioanal. Chem.*, Etude de separations par echanges d'ions en milieu tartrique et applications a l'analyse par activation, Vol. 16, No.1, pp.221-226, 1973.
- [12] R. B. Firestone and V. S. Shirley, editors. *Table of Isotopes*. 8th edition, 1996.
- [13] S. Asai *et al.*, Isotope dilution inductively coupled plasma mass spectrometry for determination of ^{126}Sn content in spent nuclear fuel sample, *J. Nucl. Sci. Technol.*, Vol. 50, No. 6, pp.556-562, 2013.

b. ⁹³Mo 分析チェックシート

項目	作業手順		備考
試料溶液の調製 (/)	(1) 試料溶液を 200 ml テフロンビーカーに分取する。 (2) 分析試料に Mo 担体 0.5 mg を添加し、ホットプレート上で濃縮する。 (3) 乾固直前で 0.01 M フッ化水素酸 1.0 ml を加え、再び濃縮する。この操作を 3 回繰り返す。 (4) 少量の 0.01M フッ化水素酸を加え、遠沈管に移し入れる。 (5) (4)の遠沈管に 0.01 M フッ化水素酸 10 ml を加える。	<input type="checkbox"/> <input type="checkbox"/>	(作業者：)
検量線試料の調製 (/)	(6) 20 ml メスフラスコ 4 本を準備し、各々に Mo 標準溶液(1000 ppm) を 0.01 ml, 0.02 ml, 0.1 ml, 0.2 ml 分取して 0.25 M フッ化水素酸で定容する。定容した溶液は、Sn-126 の“検量線試料(0.5 ppm, 1 ppm, 5 ppm, 10 ppm)”として、ポリエチレン製容器に移し保管する。	<input type="checkbox"/>	(作業者：)
TEVA レジンカラムの準備 (/)	(7) あらかじめコンディショニングしたTEVAレジン1 mlをカラムに充填する。 ※TEVAレジンは、Eichrom Technologies製、粒径100-150 μmを使用する。また、カラムはEichrom Technologies製2 ml Empty columnsを使用する。 (8) カラム上部にフリットを入れる。 (9) イオン交換水5 ml, 0.01 M フッ化水素酸 5 mlをカラムに通液する。流れ出た溶液は、100 mlテフロンビーカーに受ける。	<input type="checkbox"/> <input type="checkbox"/> <input type="checkbox"/>	(作業者：)

項目	作業手順		備考
	<p>を加える。</p> <p>(10) “陰イオン交換樹脂の準備”(6)で準備した陰イオン交換樹脂に、(7) , (8)で調製した試料溶液を通液し、1 M 硝酸で20 mlに定容する。</p> <p>(11) 試料溶液の通液終了後、ビーカーを4 M 塩酸 0.5 ml×4 回洗浄し、洗浄液もカラムに通液する。カラムから流出する溶液は、1 M 硝酸で20 mlに定容する。</p> <p>(12) カラムに1 M 硝酸12 mlを通液し、カラムから流出する溶液は、1 M 硝酸で20 mlに定容する。</p> <p>(13) 1 M 硝酸 12 ml の通液終了後、1 M アンモニア水を 4 ml 通液する。カラムから流出する溶液は、超純水で 10 ml に定容する。</p> <p>(14) 通液後のカラムは、マチ付きポリ袋に入れて保管する。</p>	<p><input type="checkbox"/></p> <p><input type="checkbox"/></p> <p><input type="checkbox"/></p> <p><input type="checkbox"/></p> <p><input type="checkbox"/></p>	<p></p> <p>溶液がホット試料の場合、りんモリブデン酸アンモニウムで放射性Csを除去するとともに、炭酸塩沈殿により放射性物質を除去し、放射性物質が検出されないことを確認したうえで廃棄する。</p>
<p>ICP-MS による測定 (/)</p>	<p>(15) “陰イオン交換樹脂による分離操作”(10), (11), (12)において1 M 硝酸で定容した試料を準備し、ICP-MS で測定する。</p> <p>(16) “陰イオン交換樹脂による分離操作”(13)で調製したPd-107測定試料（操作ブランク、回収率測定用試料、試料名）を準備し、ICP-MSでm/z = 105, 107の計数率(cps)を測定する。</p> <p>(17) “陰イオン交換樹脂による分離操作”(13)で調製したPd-107測定試料のうち、操作ブランク試料を準備しm/z = 107の計数率(cps)を10回測定する。</p> <p>(18) “混合標準液の調製”(12)で使用した 0.4 M アンモニア水を準備し、m/z = 107 の計数率(cps)を 10 回測定する。</p>	<p><input type="checkbox"/></p> <p><input type="checkbox"/></p> <p><input type="checkbox"/></p> <p><input type="checkbox"/></p>	<p>(作業者：)</p> <p></p> <p>装置定量下限算出のため。</p> <p>装置検出下限算出のため。</p>

項目	作業手順		備考
	<p>(8) 過酸化水素水(30%)添加後，試料溶液を攪拌し5分程度静置した後にホットプレートで加温，攪拌する。</p> <p>(9) 試料溶液から気泡の発生が無くなったことを確認して，ホットプレートから下ろし放冷する。</p>	<p><input type="checkbox"/></p> <p><input type="checkbox"/></p>	<p>ホットプレート温度の目安：70℃程度</p>
<p>陰イオン交換樹脂の準備 (/)</p>	<p>(10) あらかじめコンディショニングした陰イオン交換樹脂 5 ml をカラムに充填する。 ※陰イオン交換樹脂は，Merck 社の 1X8 Resin(mesh：100-200 μm)を使用する。また，カラムは BioRAD 社の Econo Pac 20 ml カラムを使用する。</p> <p>(11) カラム上部にフリットを入れる。</p> <p>(12) イオン交換水 15 ml，硝酸(3+2) 30 ml をカラムに通液する。</p>	<p><input type="checkbox"/></p> <p><input type="checkbox"/></p> <p><input type="checkbox"/></p>	<p>(作業者：)</p> <p>陰イオン交換樹脂の上部 5 mm 程度を目安にフリットを入れる。</p>
<p>陰イオン交換樹脂による分離操作 (/)</p>	<p>(13) 50 ml ポリエチレン容器を必要数(試料数+1個)準備し，試料名を記載する。また，ポリエチレン容器の重量を測定し“分析記録シート”③に記載する。</p> <p>(14) “陰イオン交換樹脂の準備”(12)でコンディショニングした陰イオン交換樹脂に，“試料溶液の調製”(9)で放冷した試料溶液を通液する。</p> <p>(15) ビーカーを6 M 塩酸 1 ml×3 回洗浄し，洗浄液もカラムに通液する。</p> <p>(16) カラムから流出する溶液は，100 ml ポリエチレン製容器に捕集する。</p>	<p><input type="checkbox"/></p> <p><input type="checkbox"/></p>	<p>(作業者：)</p> <p>(14)~(21)までの操作は1週間以内に行うこと</p> <p>100 ml ポリエチレン製容器に捕集した溶液は，ホット廃液としてフード内に保管する。 ホット廃液はりんモリ</p>

項目	作業手順	備考
	<p>(17) カラムに 1 M 塩酸 65 ml を通液する。</p> <p>(18) カラムに 1 M硝酸 5 mlを通液する。</p> <p>(19) 1 M 硝酸の通液終了後, 100 mlポリエチレン製容器を(13)で試料名を記入した50 mlポリエチレン製容器に取り替える。</p> <p>(20) カラムに 1 M 硝酸 25 ml を通液し, 50 ml ポリエチレン製容器に捕集し重量を測定する。“分析記録シート”④, ⑤に記載する。</p>	<p>□ ブデン酸アンモニウムで放射性 Cs を除去するとともに, 鉄共沈,</p> <p>□ 炭酸塩沈殿により放射性物質を除去し, 放射性物質が検出されないことを確認したうえで廃棄する。</p> <p>□</p>
<p>回収率試料調製及び測定 (/)</p>	<p>(21) (20)で調製した溶液から 2.5 ml 分取し, 10 ml メスフラスコに 1 M 硝酸でメスアップし, 回収率測定試料とする。“分析記録シート”⑨, ⑩に記載する。</p> <p>(22) (21)で調製した試料を ICP-AES を用いて回収率測定を行う。 ※※※ ICP-AES 測定条件(島津製作所製 ICPS-7510) ※※※ ・波長 189.989 nm ・キャリアガス流量 0.7 l/min ・検量線 0, 0.5, 1, 5, 10 ppm - 1 M 硝酸溶液 ・検量線の調製には原子吸光分析用Sn標準溶液1000 ppmを希釈して用いる。</p> <p>(23) “試料溶液中 Sn 濃度の測定” (2)の項で求めた Sn 量を考慮して回収率を計算する。 “分析記録シート”⑭に記載する。</p>	<p>(作業者:)</p> <p>□ 時間を置くと Sn が難溶解性の沈殿を生じ回収率が低下するため, 速やかに ICP- AES の測定を行う (過去の試験において(14)の操作から 1 週間以内の測定なら沈殿は生じない)。</p> <p>□ (2)項で ND 値の場合, Sn 担体 1 mg の添加量から 10 ml メスアップすると, Sn 10 ppm が回収率 100%となる。</p>

e. 換算表

Parts-per 表記	1 ppm	1 ppb	1 ppt
SI 単位系	1 mg/l	1 μ g/l	1 ng/l

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
光照射度	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	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加減	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ = s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² = s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電荷密度	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電表面電荷	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ 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	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m ³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
吸収線量率	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ = m ² kg s ⁻³
酵素活性濃度	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
	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	μ	1 μ=1μm=10 ⁻⁶ m

