

JAERI-Tech

2004-050



JP0450521



放射性物質を含む酸性溶液からのCs分離法の検討  
及びICP-AESを用いた元素分析

2004年6月

金沢 徹\*・日高 昭秀・工藤 保・中村 武彦・更田 豊志

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公開している研究報告書です。

入手の間合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）にて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Nakagun, Ibarakiken 319-1195, Japan.

放射性物質を含む酸性溶液からの Cs 分離法の検討及び ICP-AES を用いた元素分析

日本原子力研究所東海研究所安全性試験研究センター原子炉安全工学部  
金沢 徹\*・日高 昭秀・工藤 保・中村 武彦\*・更田 豊志

(2004 年 4 月 16 日受理)

原研では、シビアアクシデント時における燃料からの放射性物質の放出挙動を調べるため、VEGA 実験計画を進めている。同計画では、放出量評価の一環として、実験後に装置配管を酸洗浄した溶液の $\gamma$ 線計測により、主な $\gamma$ 線放出核種の燃料からの放出と実験装置内沈着量のマスバランスを求めている。しかしながら、一部の実験を除いては照射後数年間冷却した燃料を実験に用いているため、長半減期核種しか計測できず、 $\gamma$ 線を放出しない核種や微量元素の定量化が不可能である。そこで、これらの元素の放出及び移行沈着量評価を目的として、誘導結合プラズマ原子発光分光分析 (ICP-AES) を用いた配管酸洗液中の元素分析を実施している。この分析に際しては、装置の汚染防止及び被曝量低減の観点から、酸洗液中に溶解している核種のうち主な $\gamma$ 線源である Cs-134 及び Cs-137 を事前に除去しておく必要がある。このため、酸洗液からの Cs 分離法として、イオン交換分離法と沈殿分離法について検討し、ICP-AES による元素分析への適用性について考察した。

Cs に対する選択的吸着性が高いアンモニウムモリブドリン酸 (AMP) を交換体としたイオン交換分離法について、コールド及びホット試料溶液からの分離試験を実施した結果、Cs を 99.9%以上分離できること、また、錯化剤を併用することによって、Cs とともに分離した Sb も回収可能であることを明らかにした。また、AMP 法で Cs 分離した VEGA-3 実験の酸洗液を、ICP-AES により試験的に元素分析した結果、U, Sr, Zr の定量化に成功した。AMP 法の短所として、その主成分である Mo の発光スペクトルが Ag, Mo, Sb, Sn の測定を妨害することが挙げられるが、Mo (Mo-99) 及び Sb (Sb-125) は $\gamma$ 線計測により定量可能であり、Ag, Sn は原子炉のリスク評価上、あまり重要ではないことから実用的には特に問題を生じない。

今後、Cs 分離法として沈殿分離法も併用しつつ、ICP-AES を用いて、VEGA 実験における短半減期核種、 $\gamma$ 線非放射性核種及び微量元素の放出、移行沈着等を明らかにしてゆく予定である。

---

本報告書は、原子炉安全工学部の研究テーマに従い作成された成果である。第一著者である金沢徹は、同部在籍中に本報告書の主要箇所を執筆し、現在、(株)グローバル・ニュークリア・フュエル・ジャパンに出向復帰している。

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

※文部科学省に出向中

\* (株)グローバル・ニュークリア・フュエル・ジャパン

Method for Separation of Cs from Acid Solution Dissolving Radionuclides  
and Microanalysis of Solution with ICP-AES

Toru KANAZAWA\*, Akihide HIDAKA, Tamotsu KUDO, Takehiko NAKAMURA\*  
and Toyoshi FUKETA

Department of Reactor Safety Research  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received April 16, 2004)

The VEGA (Verification Experiments of radionuclides Gas/Aerosol release) program is being performed at JAERI to understand mechanisms of radionuclides release from irradiated fuel during severe accidents. As a part of evaluation in the program, the mass balances of released and deposited FP (Fission Products) onto the test apparatus are estimated from gamma ray measurement for acid solution leached from the apparatus, but short-life nuclides are difficult to be measured because those in the VEGA fuel have been mostly depleted due to cooling for several years. Moreover, the radionuclides without emitting gamma rays and very small quantity of elements cannot be quantified by gamma ray measurement. Therefore, a microanalysis by ICP-AES (Inductively Coupled Plasma - Atomic Emission Spectrometry) for the acid solution leached from VEGA apparatuses is being applied to evaluate the released and deposited masses for those elements. Since Cs-134 and -137, which are major FP dissolved in the solution, have high intensity of gamma ray spectrum, they have to be removed from the solution before the microanalysis in order to avoid contamination of ICP system and to decrease exposure to gamma ray. In this report, methods for separation of Cs from acid solution were reviewed and the applicability of them to the ICP-AES analysis was discussed.

---

All contents of this report are outcomes of research activities performed in the Department of Reactor Safety Research. The first author, T. Kanazawa, who currently works for Global Nuclear Fuel - Japan Co., Ltd., prepared the principal parts of this report when he was on loan to JAERI.

※On loan to MEXT

\*GNF-J

The method for Cs separation using the inorganic ion exchanger, AMP (Ammonium Molybdate Phosphate) was applied to the solutions of cold and hot test and the effectiveness was examined. The results showed that more than 99.9% of Cs could be removed from the test solutions, and once removed Sb by AMP was recovered by using a complexing agent such as citric acid. Next, the method was applied to an acid solution leached from VEGA-3 apparatus, and ICP-AES analysis was performed for it. The analysis showed that amount of U, Sr and Zr were successfully quantified. Most of elements to be analyzed were measurable except for Sb, Ag and Sn, although there was a remarkable hindrance for the analysis due to interference of spectrum of Mo dissolved from AMP components. Mo (Mo-99), Sb (Sb-125) can be quantified by gamma ray measurement, and Ag, Sn are not so important from the view point of risk assessment for nuclear power plants. Therefore, AMP method is considered to be practically applicable to the ICP-AES analysis in the VEGA program.

The release and deposition of short-life or no-gamma ray emitting nuclides and very small quantity of elements in VEGA tests will be quantified through the ICP-AES analysis for acid solutions from which Cs is separated by the AMP or other precipitation method.

Keywords: Severe Accident, Radionuclide Release, VEGA Program, ICP-AES, Cesium, Separation, Ammonium Molybdate Phosphate

This is a blank page.

## 目 次

1. はじめに	1
2. VEGA 実験と実験後分析の概要	2
2.1 実験装置	2
2.2 計測及び実験後分析	2
2.3 ICP-AES による元素分析と試料溶液の前処理	4
3. 酸洗液からの Cs 分離法の検討	5
3.1 Cs 分離法のレビュー	5
3.2 Cs 分離法の比較	7
4. AMP 法による Cs 分離	8
5. ICP-AES による分析	11
6. まとめ	14
謝辞	15
参考文献	15
付録1 : ICP-AES によるホット及びコールド試料の分析結果	25
付録2 : ホット試料の発光波形	35
付録3 : コールド試料の発光波形	40
付録4 : Mo と P の混合溶液の発光波形	45
付録5 : Mo の発光プロファイル	50

## Contents

1 . Introduction .....	1
2 . Outlines of VEGA Experiments and Post-test Analyses .....	2
2 . 1 VEGA Test Apparatus .....	2
2 . 2 Measurement and Post-test Analyses .....	2
2 . 3 Microanalysis by ICP-AES and Pre-processing of Specimen Solution ..	4
3 . Investigation of Method for Cs Separation from Acid Solution .....	5
3 . 1 Review of Method for Cs Separation .....	5
3 . 2 Comparison of Methods for Cs Separation .....	7
4 . Cs Separation with AMP Method .....	8
5 . Microanalysis by ICP-AES .....	11
6 . Conclusions .....	14
Acknowledgments .....	15
References .....	15
Appendix 1 : Results of ICP-AES Analyses for Hot and Cold Specimen .....	25
Appendix 2 : Emission Spectrums of Hot Specimen Solution .....	35
Appendix 3 : Emission Spectrums of Cold Specimen Solution .....	40
Appendix 4 : Emission Spectrums of Mixing Solution of Mo and P .....	45
Appendix 5 : Emission Spectrum of Mo .....	50



## 1. はじめに

日本原子力研究所（以下、原研）では、シビアアクシデント条件下における放射性物質の放出機構解明とソースターム（事故時に環境中に放出される放射性物質の量、種類）の予測精度向上を目的として、照射済燃料からの放射性物質放出挙動実験 VEGA (Verification Experiments of radionuclides Gas / Aerosol release)計画<sup>1)</sup>を進めている。VEGA 計画では、燃料の融点を超える 3,150K までの高温条件及び最大 1.0MPa までの高圧条件下において、UO<sub>2</sub> または MOX 燃料から放出される放射性物質の放出及び移行挙動を調べている。これにより、従来の研究でデータが得られていない加圧雰囲気下での放出挙動、並びに、データが少ない低揮発性及び短半減期の核分裂生成物 (FP; Fission Products) やアクチニドに関する放出挙動を評価している。

VEGA 実験では、試験燃料と放出した FP が沈着する装置各部をオンライン及びオフライン $\gamma$ 線計測することにより、主な $\gamma$ 線放射性核種の放出及び移行挙動を測定している。また、実験後に試験燃料の下流側配管を約 20cm 毎に切断し、硝酸液に浸して沈着物を洗い流し、洗浄液を $\gamma$ 線測定することにより、装置配管内における $\gamma$ 線放射性核種のマスバランスを求めている<sup>2)</sup>。しかし、これまで実施した VEGA 実験では、一部を除いて照射後数年経過した燃料を事前に再照射せずに使用していたため、半減期の短い核種はほとんど消滅しており、長半減期核種しか計測できなかった。また、 $\gamma$ 線を放出しない核種及び微量な元素についても定量化できなかったため、これらの放射性及び非放射性物質の沈着量評価を目的として、配管洗浄液中の元素分析を実施することとした。分析方法としては、多くの元素を ppb レベルの高精度で分析でき、多元素を同時分析可能な誘導結合プラズマ原子発光分光分析法 (ICP-AES; Inductively Coupled Plasma - Atomic Emission Spectrometry)<sup>3),4)</sup>を用いることにしている。ただし、ICP-AES 装置の使用に際しては、測定装置の汚染防止及び被曝量低減のため、洗浄液中に溶解している FP のうち、主要な $\gamma$ 線源である Cs-134 及び-137 を前処理として除去しておく必要がある。

本報告では、放射性物質を含む酸性溶液からの Cs 分離法について調査し、VEGA 実験装置配管の酸洗浄液を ICP-AES で元素分析する際の前処理として行う Cs 分離の方法について検討する。また、アンモニウムモリブドリン酸 (AMP; Ammonium Molybdate Phosphate) をイオン交換樹脂とした分離法<sup>5),6)</sup>について長所、短所を検討するとともに、AMP 法により実際に VEGA 試料溶液から Cs を分離し、ICP-AES を用いて試料溶液中の元素を試験的に分析した結果について述べる。

## 2. VEGA 実験と実験後分析の概要

### 2.1 実験装置

VEGA 実験装置は、高周波誘導加熱炉、試験燃料を設置する坩堝及び内管、加熱炉出口部の配管温度の低下を防止するインラインヒータ、水平配管、3系統の温度勾配管 (TGT; Thermal Gradient Tubes) 及びエアロゾルフィルタ、高温高圧型のカスケードインパクト、コンデンサ、ドライヤ、冷却活性炭を装填した希ガストラップ等から構成される。実験装置の概略を Fig.1 に示す。試験燃料は、実炉で照射した  $UO_2$  または MOX 燃料のペレット最大 6 個であり、タングステン (水蒸気雰囲気の場合、トリア( $ThO_2$ )) の坩堝内に設置される。誘導コイルの高周波電流により、坩堝の外側に設置されたタングステン内管の円周方向に、水蒸気雰囲気の場合は加熱炉断熱材(カーボンフェルト)の内側に設置された黒鉛サセプタ(図示せず)に誘導電流が流れ、最高 3,150K まで加熱される。加熱炉下部から内管内にキャリアガス ( $He$ ,  $H_2$ ,  $H_2O$  及び Air を供給可能) が流入し、試験燃料から放出される放射性物質とともに加熱炉上部より流出する。内管外側にもキャリアガスと同種類のガスが供給されており、内管は内部ガスと外部ガスの圧力境界を成している。実験中は、内管の外側圧力が内側よりも 0.05MPa だけ高くなるように設定され、内管が万一破損した場合でも、放射性物質が加熱炉外側を汚染するのを防ぐ構造になっている。

加熱炉出口と接合する配管には、配管温度を約 1,000K 以上に保つためのインラインヒータを設置し、揮発性 FP の凝縮を防ぐとともに、中・低揮発性 FP 及びアクチニドの大部分をここで凝縮またはエアロゾル化させて沈着捕集する。インラインヒータの出口から温度勾配管入口までは、一定温度 (1,023K) に保たれている。TGT では、入口から出口に向かって内面がほぼ直線的な温度勾配 (1,023K から 473K まで) に設定されており、揮発性 FP の大部分は凝縮またはエアロゾル化する。TGT を通過したエアロゾルは、エアロゾルフィルタにて捕集される。TGT 及びエアロゾルフィルタは 3 系統 (A, B, C) から構成されるが、実験中に使用するのは 1 系統であり、試験燃料温度が上昇するに従って順次切り替えて用いている。フィルタを通過したガス状ヨウ素は、さらに後段に設置されたコンデンサ(温度 273K)で凝縮捕集され、コンデンサを通過した希ガスは冷却した活性炭(温度 210K)に物理吸着される。また、水平配管の中央部からは、エアロゾル粒径を測定するためのカスケードインパクトへの配管が設けられている。カスケードインパクトは、直径が 0.2~20 $\mu m$  程度までのエアロゾルを、ノズル径が異なる 8 枚の分級板で分離捕集する。

### 2.2 計測及び実験後分析

VEGA 実験における計測及び実験後分析の流れと測定内容の概略を Fig.2 に示す。昇温実験前後に、ゲルマニウム (Ge) 半導体検出器を用いて試験燃料の  $\gamma$  線スペクトルをそれぞれ 100 分間測定し、その強度差から  $\gamma$  線放射性核種の放出割合を求める。また、実験装

置配管要素 (TGT、フィルタ、カスケードインパクト分級板) の重量についても測定し、実験前後の重量増加 (FP 沈着重量) を求める。昇温実験中は、加熱炉中心、エアロゾルフィルタ、コンデンサ及び冷却活性炭 (希ガストラップ) に対して1分毎の $\gamma$ 線強度をオンラインで測定し、 $\gamma$ 線放射性核種の放出及び捕集履歴を求める。装置各部の温度、圧力、ガス流量及びエアロゾルフィルタの後段におけるキャリアガス中の水素及び酸素濃度についても、オンラインで測定する。

昇温実験後は、垢層を含む加熱炉中心部をエポキシ樹脂で固定し、内管軸方向の $\gamma$ 線強度分布をスキャンすることにより、加熱炉内におけるFP沈着分布を求める。内管の試験燃料部分の横断面については、SEM/EPMA (Scanning Electron Microscope / Electron Probe X-Ray Micro Analyzer) 分析を実施し、燃料のミクロ金相を観察するとともに、微小領域内の元素分布を求める。

加熱炉出口からエアロゾルフィルタまでの配管は、概ね20cm毎に切断し、TGT配管については軸方向の $\gamma$ 線強度分布からFP沈着分布を測定する。また、カスケードインパクトの各分級板の $\gamma$ 線測定を行い、Csを含むエアロゾルの粒径分布を推定する。その後、切断した配管を2N硝酸溶液に浸して1分間超音波洗浄し、沈着物を洗い流した洗浄液を $\gamma$ 線検出器で測定することにより、沈着した主な $\gamma$ 線放出核種の装置配管内のマスマバランスを求める。

しかしながら、これまで実施したVEGA実験<sup>2)</sup>では、Cs-134及び-137の放射能強度が強く、コンプトン散乱によるバックグラウンド値の上昇のため、Cs以外の $\gamma$ 線放出核種の測定が困難であった。また、 $\gamma$ 線計測では、実験時には消滅している短半減期核種やSr-90などの $\gamma$ 線を放出しない核種の放出及び沈着量を定量化できなかった。そこで、これらの元素を定量化するために、配管洗浄液中の元素分析を別途、実施することとしている。分析方法としては、質量分析法、原子スペクトル法等が考えられるが、質量分析法では同質量数の異元素を区別できないため、原子スペクトル法を用いることにしている。原子スペクトル法は原子固有のスペクトル線を検出して定性及び定量分析するものであり、原子発光分析、原子吸光分析、原子蛍光分析の3種類がある。本分析では、種々の元素が混在する溶液の分析に適する原子発光分析法のうち、近年、測定感度の高い分析装置が市販されているICP-AES (Inductively Coupled Plasma - Atomic Emission Spectrometry)<sup>3),4)</sup>に着目した。

VEGA実験後分析 (Fig.2) において、本報告が対象とするICP-AES分析と試料溶液の前処理であるCs分離を破線で囲って示した。VEGA試料溶液に対するICP-AESでは、多元素同時計測の特長を活かし、主な放射性元素のうちICP-AESで測定可能と思われる10

元素 (Sr, Ag, Ba, Sb, Mo, Ce, U, Eu, Zr, Sn) の計測を計画している。なお、VEGA 実験で放出特性を調べることになっているアクチニド (Pu) については、放射性元素かつ核燃料物質であるため ICP-AES での測定実績が無く、実質的に分析不可能である。このため、 $\alpha$  線計測により定量化する予定である。 $\alpha$  線計測に際しては、Cs を除去するだけでなく、洗浄液中に混在する他の放射性物質を全て取除いておく必要があるため、配管洗浄液から Pu のみを抽出分離する。これについては、別途検討することとし、本報告の対象から除外した。

### 2.3 ICP-AES による元素分析と試料溶液の前処理

ICP-AES<sup>3),4)</sup>は、誘導結合プラズマ(ICP)を利用して原子を励起またはイオン化し、それらの原子が発生する光を検出することによって、存在する元素の種類及び量を測定する原子発光分析法(AES)である。励起源として、従来の炎、スパーク、アークに比べて安定で強力な約 9,000K のドーナツ型アルゴンプラズマを用いる。ネブライザによりエアロゾル化された試料溶液は、アルゴンガスとともにドーナツ型プラズマの中心に導入され、約 6,000K に加熱される。プラズマ中で原子化され励起された金属元素及び半金属元素は、各元素に特有の光が発生する。AES は、その発光波長から定性分析、発光強度から定量分析するものであり、ICP を励起源として利用することによって、原子吸光分析に匹敵する感度と測定精度を得られる。ICP-AES は、気体状元素を除く多くの元素に対して定量下限が 10-50ppb 程度の高感度分析が可能で、数十種類の多元素同時分析を極短時間で行える特長がある。

ICP-AES による定量は、一般に検量線法による。これは、あらかじめ元素濃度が既知の標準試料を用いて検量線 (元素濃度と発光強度の相関式) を求め、試料の発光強度を測定して目的元素の定量を行う方法である。ICP-AES は、検量線の直線範囲が広い (4~5 桁) ため、主成分から微量成分まで濃度範囲が大きく異なる元素が共存していても、希釈や分離の手間無く定量できるという利点がある。ただし、前記の定量下限値は理想的な標準溶液を用いた場合のものであり、実際の試料では、共存する多種類の元素の発光スペクトルによる干渉を受けるため下限値が上昇する。発光スペクトル線の数は元素によって大きく異なり、アルカリ金属及びアルカリ土類金属のように数十本程度のものから、遷移金属のように数千本あるものまでである。したがって、測定対象元素が出すスペクトル線に近接する波長のスペクトル線を出す元素は、測定の妨害元素となる。また、発光強度の大きいアルカリ土類金属は、発光線の裾野や散乱によりバックグラウンド値を上昇させる。さらに、イオン化率の高いアルカリ金属が試料中に多量に存在した場合、プラズマの電子密度を増加させ、元素の発光強度に影響を及ぼす恐れがあり、これらの要因により検出感度が著しく低下する可能性がある。

VEGA 実験装置配管の洗浄液から化学的に Cs を分離する際には、上述した ICP-AES の分析精度に及ぼす影響を最小限にするよう、測定対象元素が Cs とともに分離されないこと及び測定波長に対してスペクトル干渉を引き起こす元素が試料中に溶出しないこと等に注意して、分離方法や使用する試薬を慎重に選択する必要がある。そこで、放射性物質を含む酸性溶液からの Cs 分離法について調査した結果を次章に記述する。

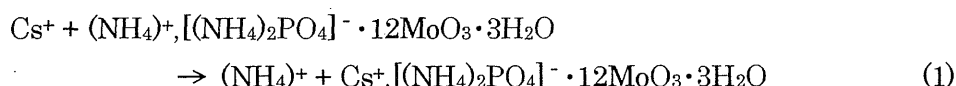
### 3. 酸洗液からの Cs 分離法の検討

#### 3.1 Cs 分離法のレビュー

多種類の金属イオン等が混在する酸性溶液から Cs を分離する方法はいくつか考えられるが、イオン交換樹脂を用いたイオン交換分離法と沈殿剤を用いた沈殿分離法が主な方法である。ここでは、研究室レベルで実施可能な分離方法として、アルカリ金属に対する選択的な吸着性が高いモリブドリン酸アンモニウム (AMP ; Ammonium Molybdate Phosphate) を陽イオン交換体として用いる AMP 法<sup>5),6)</sup>と、重アルカリ金属 (K, Rb, Cs) の代表的な沈殿分離法である塩化白金酸法<sup>8)</sup>及びテトラフェニルホウ酸ナトリウム法<sup>9)</sup>について調査した。

#### (1) AMP 法

イオン交換は、固相 (イオン交換体) と液相との 2 相間で、可逆的にイオンの交換が起こる現象で、物質の分離精製の目的で広く利用されている。AMP ( $(\text{NH}_4)_3\text{PO}_4(\text{MoO}_3)_{12} \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ) は、アルカリ金属に対する選択性が高く、特に Cs に対する吸着が強いため、陽イオン交換体として Cs の分離定量によく用いられている<sup>5),6)</sup>。AMP による Cs の吸着反応は次式で表される。



Cs と AMP の吸着は強く、AMP からの Cs の溶離回収は困難である。

イオン交換体の作成手順としては、アンモニア水に AMP を溶解し、pH を 9 に調整した溶液に塩酸で洗浄後乾燥した無水ケイ酸 (シリカゲル) を加え、十分混合した後、乾燥させる。これを、硝酸及びイオン交換水で洗浄し、シリカゲル中の微細な粉末及び乾燥中に脱落した過剰の AMP を除いて、AMP 添加無水ケイ酸交換体とする。Cs の分離作業には、カラム (一端を細くしたガラス管) を用いる。カラム内に充填した交換体に少量の試料溶液をしみ込ませ、Cs を AMP に吸着させた後、溶離液として硝酸溶液を流し入れ、Cs 以外の成分を流出させる。AMP は耐酸性に優れており、硝酸への溶出はほとんど無いと考えられる。

**(2) 塩化白金酸法<sup>8)</sup>**

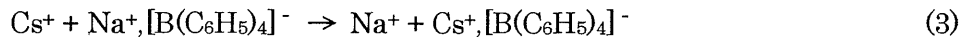
塩化白金酸法は、沈殿剤として六塩化白金酸 ( $\text{H}_2\text{PtCl}_6$ ) を用いる沈殿分離法であり、アルコール溶媒のもとで、塩化白金酸ナトリウムの可溶性と塩化白金酸カリウムの実質的不溶性を利用して Na と K を分離できるため、K の定量方法として古くから行われている。K の沈殿反応は、次式で表される。



沈殿した塩化白金酸カリウム ( $\text{K}_2\text{PtCl}_6$ ) をろ過分離し、乾燥して秤量するか、白金を金属に還元して秤量することにより、カリウムと白金の重量比からカリウムの重量を得られる。 $\text{H}_2\text{PtCl}_6$  は、K と同様にアンモニウム ( $\text{NH}_4$ )、Rb、Cs とも沈殿を形成する。その中でも Cs 塩の溶解度は最も小さいため、Cs 分離に適用できる。

**(3) テトラフェニルホウ酸ナトリウム法<sup>9)</sup>**

テトラフェニルホウ酸ナトリウム ( $\text{Na}[\text{B}(\text{C}_6\text{H}_5)_4]$ 、以下 Na-TPB と略す。) は、K、Rb、Cs、 $\text{NH}_4$  の他に、一価の金属イオン ( $\text{Ag}^+$ 、 $\text{Tl}^+$ 、 $\text{Cu}^+$  など) と難溶性の沈殿を形成する優れた試薬である<sup>11)</sup>。このため、Na-TPB を用いた K の分析法は、様々な試料に対して広く用いられている。Cs の沈殿反応は次式で表される。



Cs のテトラフェニルホウ酸錯体 (Cs-TPB) は、塩化白金酸の Cs 塩よりも溶解度が極めて小さい。

Na-TPB の TPB イオンは、強酸性溶液において不安定であり、分解されやすい。このため、Cs 分離に際しては、試料溶液に水酸化ナトリウム ( $\text{NaOH}$ ) を加えて pH3~4 にコントロールした後、Na-TPB を加えて Cs-TPB を沈殿させる。このとき、金属イオンを化学的に安定な錯体に変える錯化剤としてエチレンジアミン四酢酸 (EDTA; Ethylene Diamine Tetraacetic Acid) を添加し、試料溶液中の Zr 等のイオンが水酸化イオン ( $\text{OH}^-$ ) と結合して沈殿を形成するのを防ぐ必要がある。この手順において、pH コントロール剤として  $\text{NaOH}$  を使用するため、Cs を分離した試料溶液には多量の Na イオンが含まれる。

**(4) テトラキス(p-フルオロフェニル)ホウ酸ナトリウム二水和物法**

Na-TPB 法で用いる沈殿剤として、Na-TPB の代わりに、テトラキス(p-フルオロフェニル)ホウ酸ナトリウム二水和物 ( $\text{Na}[\text{B}(\text{p-FC}_6\text{H}_4)_4] \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、以下 Na-TFPB と略す。) を適用できる<sup>12),13)</sup>。Na-TFPB は、Na-TPB を構成するフェニル基 ( $-\text{C}_6\text{H}_5$ ) に、置換基としてフッ素 (F) を導入した誘導体であり、 $\text{K}^+$  以外の一価陽イオン ( $\text{Ag}^+$ 、 $\text{Cs}^+$ 、 $\text{Rb}^+$ 、 $\text{Tl}^+$  など) の選

択的沈殿剤であることから、環境中の Cs-137 の分析に使用されている<sup>13)</sup>。Na-TFPB は  $\text{NH}_4^+$  イオンと沈殿を形成しないことから、pH コントロール剤として NaOH の代わりに  $\text{NH}_4^+$  を使用できるため、試料溶液中への Na の混入を最小限に抑えられる。ただし、Na-TPB 及び Na-TFPB のいずれを用いた場合でも、ICP-AES の測定対象元素である Ag は、Cs と同様にほぼ 100% 分離されるため定量困難となる。

### 3.2 Cs 分離法の比較

AMP 法、塩化白金酸法及びテトラフェニルホウ酸ナトリウム法 (Na-TPB 及び Na-TFPB) の長所及び短所と、ICP-AES の測定対象元素に及ぼす影響及び ICP-AES で分析可能な元素の予測を Table 1 にまとめて示す。AMP 法は、従来の陽イオン交換法と異なり塩酸を必要としないため、VEGA 実験装置配管の硝酸酸性溶液からの Cs 分離操作が容易である。しかし、AMP 成分が溶離液に溶出すると、試料溶液中に元々存在する Mo の定量誤差になる。また、遷移金属である Mo の発光スペクトルが ICP-AES の測定妨害となる。他方、塩化白金酸法はアルコール溶媒を必要とするため、VEGA 実験装置配管の硝酸酸性溶液からの分離操作が複雑になる。さらに、Cs の塩化白金酸塩はわずかに可溶性があることから、試料溶液に溶出した場合、主成分である Pt が ICP-AES の測定妨害となる可能性が考えられる。Na-TPB または Na-TFPB を用いるテトラフェニルホウ酸ナトリウム法は、pH コントロールや沈殿のろ過等の化学的操作を要するため AMP 法より分離作業が複雑であるが、アルコール溶媒を必要としないため塩化白金酸法よりも簡便である。しかし、Ag は Cs と同時に分離される。また、Na-TPB を用いる方法では、pH コントロール剤として用いる NaOH の Na イオンが、ICP-AES の測定誤差を増加させる可能性がある。

各分離法の長所及び短所を検討した結果、いずれの方法にも ICP-AES における測定妨害や干渉の可能性、また、Cs と同時に他元素も分離される可能性が明らかになった。本報告では、これらの分離法のうち、分離作業が最も簡易で高度な熟練作業を必要としない AMP 法に着目した。AMP 法により試料溶液に溶出する成分が ICP-AES の測定感度に及ぼす影響や、スペクトル干渉の有無を明らかにするために、AMP 法による Cs 分離試験を実施し、Cs を分離した溶液を ICP-AES により元素分析した。次章以降に、その結果を述べる。

#### 4. AMP 法による Cs 分離

本章では、AMP 法による Cs の分離性能と VEGA 実験装置配管の酸洗液からの Cs 分離への適用性を把握するために、コールド及びホット試料溶液からの Cs 分離を試みた結果について記述する。

##### (1) 溶離液量の検討及び Cs 分離試験結果

VEGA 実験装置配管の酸洗液量には限りがあるため、Cs 分離試験のための試料溶液として、VEGA 実験<sup>2)</sup>で使用した試験燃料(約 6 年冷却した燃焼度 47GWd/t の PWR 燃料)と燃焼度及び照射後の冷却期間がほぼ同等の高燃焼度燃料(高浜 3 号機で 3 サイクル照射後、約 5 年経過、50GWd/t)を溶解した硝酸溶液を用いた。Cs 分離作業には、Fig.3 に示すカラム(内径 10mm、高さ 200mm)を用いた。カラムに脱脂綿及び AMP 添加無水ケイ酸交換体を充填し、燃料を溶解していない硝酸溶液を流して溶液の流下速度が約 2ml/min になるよう、脱脂綿の詰め方を調整した。分離手順としては、試料溶液を交換体にしみ込ませ、Cs を AMP に吸着させた後、溶離液として硝酸溶液を流し入れ、Cs 以外の FP 成分を流出させることとした。まず、AMP 交換体から Cs 以外の FP をほぼ全て流出させるのに必要な溶離液の濃度及び量について検討した。

試料溶液 0.1ml をカラムに入れ、硝酸溶液 1ml を加えた後、溶離液(先に加えた 1ml と同濃度の硝酸溶液)を 5ml ずつ 4 回にわたって加えたときの各流出液の  $\gamma$  線スペクトルを測定した。溶離液の硝酸濃度を 0.5, 1.0, 2.0mol/l (以下、mol/l を M と略記する)とした場合の各流出液中の Eu-154 の  $\gamma$  線強度を Fig.4 に示す。いずれの濃度の溶離液を用いた場合でも、2 回目の流出液までに大部分の Eu が溶出した。この結果から、今後の Cs 分離作業には、Cs 以外の FP 成分を流出させるのに必要十分な溶離液の濃度及び量として、試料溶液 0.1ml あたり 2.0M 硝酸溶液 20ml を用いることとした。

Cs 分離前及び 2.0M 硝酸溶液 20ml の溶離液を用いて Cs 以外の FP 成分を流出させた試料溶液の  $\gamma$  線スペクトルを Fig.5 に示す。短半減期核種は既に消滅しているため、分離前のスペクトルでは Cs-134, Cs-137, Eu-154, La-140 等の長半減期核種のピークのみが確認できる。これに対して、分離後のスペクトルでは、Cs-134 及び 137 のピークが全く確認できないことから、Cs は良好に分離できたと考えられる。また、分離後は Cs が放出する  $\gamma$  線による散乱の影響がほとんど無くなったため、低エネルギー域のバックグラウンドレベルが低減し、Eu-154 (核種名を記入していないピークの大部分は Eu-154), Ce-144 等のピークが明瞭となった。Eu-154 及び La-140 について、Cs 分離前よりも分離後のピークの方がやや大きい部分が見られるが、これは Cs 分離前後の測定に供した試料液量が異なり、分離後の試料液量の方が多かったためと考えられる。



## (2) コールド試験による元素回収率

AMP 法による Cs の分離性能及び他元素の回収率を確認するため、元素濃度が既知のコールド試料溶液（主に市販の原子吸光分析用標準液）を用いて、Cs 分離操作前後における 40 種類の元素の重量変化及び回収率を求めた結果を Table 2 に示す。Cs については 1mg をカラムに流し入れ、20ml の 2.0M 硝酸溶液で溶離した。Cs 等のアルカリ金属はプラズマ中でのイオン化率が高く、ICP-AES における測定感度が低いため、アルカリ金属に対しても高感度で測定可能な原子吸光分析法（AAS; Atomic Absorption Spectrometry）を用いて溶離液中の Cs 濃度を測定した。その結果、検出下限（0.001ppm）以下であったことから、Cs はほぼ 100%分離除去されたと考えられる。その他の元素については、同濃度及び量の溶離液を ICP-AES で計測し、概ね 95%以上回収できていることを確認した。ただし、Rb は Cs と同様に 100%AMP に吸着され、Zr も約 98%吸着された。また、Tl は約 45%、Ag は約 24%、Sb は約 18%吸着された。以上の結果から、AMP 法は Cs に対する選択的吸着性能は高いが、VEGA 実験で調べる予定の Zr, Ag, Sb についても部分的に吸着することが明らかになった。

なお、上記の試験で使用した市販の原子吸光分析用標準液は、元素の性質に合わせて塩酸、硝酸、アンモニア等、種々の溶液を溶媒としている。このうち、硝酸よりも塩酸に対する溶解度が高い Sb の標準液は、塩酸酸性溶液であった。VEGA 実験装置配管の洗浄液は硝酸溶液であるため、Sb の回収率は上記の試験結果よりもさらに低くなると予想される。照射済燃料を溶解した硝酸溶液から AMP 法により Cs を分離した後の  $\gamma$  線スペクトル (Fig.5) において、試料燃料中に存在すると予想される長半減期 FP である Sb-125 のピークをほとんど確認できないことから、試料溶液に溶解した Sb の大部分が AMP に吸着された可能性が考えられる。

## (3) 錯化剤に関する検討

コールド試験において回収率が低かった Cs 以外の元素を AMP 交換体から溶離回収するため、錯化剤を溶離液と併用する方法を検討した。錯化剤は金属イオンを化学的に安定な錯体に変えることによって、その化学反応を抑制する金属イオン封鎖剤であり、AMP と結合した金属イオンを安定な水溶性の錯体に変えることによって溶離液中に回収する効果を期待できる。従来から錯化剤として良く使用されている、クエン酸 ( $C_6H_8(OH)(COOH)_6$ )、酒石酸 ( $C_4H_6(OH)_2(COOH)_2$ )、ホウフッ化水素酸 ( $HF_4$ ) を用い、3 種類の溶離液 (1M クエン酸-2.5M 硝酸溶液、0.1M 酒石酸-2M 硝酸溶液、 $HF_4$ -2M 硝酸溶液) を用意した。例えばクエン酸は、2 個の COOH と 1 個の OH を配位子として金属イオンと結合する。残り 1 個の COOH が親水性であるため、金属イオンとの錯体は水溶性となる。

錯化剤の検討には、試料溶液として、BWR（福島第2発電所2号炉）で5サイクル照射後、約5年経過した高燃焼度燃料（61GWd/t）を溶解した硝酸溶液を使用した。コールド試験で回収率の低かったZr, Ag, Sbのうち、 $\gamma$ 線計測で定量可能なSb（Sb-125）の回収量を評価することとした。Cs分離作業における被曝量低減の観点から、1回の分離作業で扱う試料溶液量を0.1mlに限定し、各溶離液20mlを用いてAMP交換体に吸着されたSbを溶離した。各溶離液の $\gamma$ 線計測結果をTable 3に示す。硝酸溶液のみを用いた場合に比べて、クエン酸または酒石酸を併用した場合、溶離液中のSb-125の量は約20倍に達した。この結果から、錯化剤の効果によって、Sbの回収率が向上することが明らかになった。また、いずれの溶離液を用いた場合にもCsの分離効率は99.9%以上であることを確認した。参考のため、硝酸溶液のみで溶離した場合とクエン酸を併用した場合の試料溶液の $\gamma$ 線スペクトルを、Cs分離前のスペクトルと比較してFig.6(a),(b)に示す。 $\gamma$ 線強度が強いCs分離前の試料溶液については、200倍に希釈して測定した。分離前試料に見られるCs-134及び-137のピークが分離後にはほとんど確認できず、代わりにEu-154のピーク（核種名を記入していないピークの大部分はEu-154）が明確になっている。また、クエン酸を併用した場合は、Sb-125のピークが明確であり、錯化剤によるSbの回収率向上効果が顕著に現れている。

以上のコールド及びホット試験結果から、AMP法によれば、酸性溶液からCsを99.9%以上分離できることが明らかになった。コールド試験ではZr, Ag, Sbの回収率が、それぞれ約2%、76%、82%（ただし、Sbは塩酸酸性溶液での結果）であったが、VEGA実験で調べる予定の他の元素については概ね95%以上回収できた。また、硝酸溶液を用いたホット試験ではSbをほとんど回収できなかったが、金属イオンを安定な錯体に変える錯化剤としてクエン酸または酒石酸を溶離液と併用した結果、硝酸溶液のみを溶離液として用いた場合に比べて、少なくともSbの回収量を約20倍に向上できることが明らかになった。クエン酸を用いた場合と酒石酸の場合を比較すると、Sbの回収率は同等であったが、クエン酸の場合のCs分離効率がわずかに高かったことから、AMP法で用いる錯化剤としてクエン酸を選択した。以上のことから、クエン酸を併用したAMP法をVEGA実験試料溶液のCs分離に適用することとした。次章では、AMP法によりCsを分離したVEGA実験試料溶液をICP-AESにより試験的に分析した結果を報告する。

## 5. ICP-AES による分析

本章では、ICP-AES の分析対象元素濃度及び分析感度等の把握と、分析波長に対する妨害の有無を調べるため、VEGA-3 実験<sup>10)</sup>装置配管のうち、中・低揮発性核種の沈着が予想されるインラインヒータ下部配管 (Fig.1 参照) を洗浄した 2M 硝酸溶液から AMP 法により Cs を分離した溶液を試料として、ICP-AES による分析を実施した結果について記述する。

### (1) 分析方法

VEGA 実験装置配管を酸洗した洗浄溶液中には、配管内面に沈着した FP だけでなく、配管材 (インコネル 600) からの溶出物 (たとえば、Ni, Cr 等) も混入していると考えられる。そこで、AMP 法により Cs 分離したホット試料とは別に、昇温実験に使用していないインコネル配管を 2M 硝酸で洗浄したコールド配管洗浄液についても分析を実施し、配管材からの溶出物が ICP-AES に及ぼす影響を考慮することとした。

まず、測定対象元素の検量線を作成するため、標準試料溶液の分析を実施した。標準溶液には、元素濃度が既知の市販品 (原子吸光分析用標準液、各元素 1000ppm) を用いた。ただし、U については、U-233 標準液の希釈液 (U-233, 180  $\mu\text{g/g}$  硝酸溶液) を用いた。液性の不一致を避けるため、標準溶液を以下の 3 グループに分けた。

グループ 1 : Ba, Ce, Eu, Sb, Sn, Sr, Zr

グループ 2 : Ag, Mo

グループ 3 : U

標準溶液が硝酸及び塩酸溶液のものをグループ 1 とし、塩酸に混合すると沈殿を形成する Ag については、アンモニア溶液の Mo とともにグループ 2 とした。グループ 1 及び 2 について、元素濃度が異なる 6 種の溶液 (0, 0.1, 0.5, 1.0, 5.0, 10.0 ppm) を作成した。U 標準液は液量が約 1ml のみであったため、独立にグループ 3 として、4 種の溶液 (0, 0.468, 0.935, 1.87 ppm) を作成した。全ての濃度の標準溶液について、検量線作成に必要な発光強度のデータを、ICP-AES 分析装置により測定した。なお、分析に使用した装置 (島津製作所製、ICPS-1000II) の仕様及び分析条件を Table 4 に示した。

ICP-AES による分析では、一般に、試料溶液が含有する元素の種類や量が未知のため、共存元素の妨害を受けない発光波長を探すための予備分析を繰り返し実施する。妨害波長が多数存在すると考えられる分析においては、測定感度が最も高いとされている第 1 波長 (分析装置に内蔵されたデータベースにおいて、主に発光強度が強いこと、元素濃度変化

に対する発光強度の変化率が大きいこと、及び他元素の妨害が少ないこと等を勘案して、波長に順位が付けられている) から、第2、第3またはそれ以下の感度の波長について予備分析を繰り返し行い、妨害を受けていない波長を検出するまで、1波長ずつ確認してゆく必要がある。しかし、本分析ではホット試料の液量が20ml余りに限られており、通常の方法では予備分析だけで試料溶液を使い果たす恐れがあった。このため、通常とは異なる方法であるが、試料の分析を一度の測定で可能とする方法を検討した。それは、あらかじめ妨害が分かっている波長を除き、測定対象10元素各々について感度の良い順に3波長を選び、そのプロファイル分析結果から妨害を受けていない波長を選定する方法である。選定した波長について、標準溶液の発光強度測定結果から検量線を作成し、この式を用いて試料溶液中の元素濃度を算出することとした。分析波長を3波長に限定したのは、3波長の中に妨害を受けない波長が存在する確率が高いと見込まれることと、それ以下の感度の波長では分析精度が急激に低下するためである。

## (2) 分析結果

VEGA-3 実験装置のインラインヒータ下部配管を洗浄したホット試料及びコールド配管洗浄液の分析結果一覧を Table 5 に示す。また参考のため、ホット試料及びコールド配管洗浄液の検量線と分析結果を付録 1 に添付する。付録 1 には、コールド試料としてステンレス (SUS) 配管洗浄液の分析結果も記載されているが、これは VEGA 実験で使用したステンレス配管の洗浄液を ICP-AES で分析する際のリファレンスデータを得るため別途実施したものであり、本報告の対象外のデータである。さらに、ホット試料の発光強度の波形を付録 2 に、コールド配管洗浄液 (インコネル) の発光強度の波形を付録 3 に添付する。測定対象の全元素について、第1波長の予備分析を行った結果、FP を含有せず AMP 法による Cs 分離操作を施していないインコネル配管の洗浄液 (コールド配管洗浄液) には妨害が見られなかった。一方、VEGA 実験試料溶液から AMP 法により Cs を分離したホット試料については、ほとんどの元素においてピーク波長の重なりやバックグラウンドの上昇等の妨害が見られた。

ICP-AES によるホット試料の分析結果 (Table 5 参照) から、試料溶液中に多量の Mo が存在することが判明した。Mo は AMP の主成分であることから、Cs 分離時に AMP が溶解液に溶解したと思われる。同様に、AMP の主成分である P も多量に溶解していると予想される。遷移金属である Mo は多数の発光波長を有することから ICP-AES の妨害元素になりやすく、ホット試料における妨害ピークの原因であると考えられたため、Mo と P の混合溶液を作成し、選定波長付近の分析を実施した。Mo, P 混合溶液 (各 500ppm) の発光強度の波形を付録 4 に添付する。その結果、ホット試料の妨害ピークとほぼ同様の発光プロファイルが得られた (Mo 及び P の妨害を確認した波長については、付録 2 のホット試料の発光波長欄最下部にその旨を記載)。また、Mo は P に比べ多数の発光波長を有すること (付

録5にMoの発光プロファイルを添付)から、ほとんどの妨害ピークはMoの影響と考えられる。妨害の影響により、Sb, Sn, Agは選定した3波長ともに測定不能であった。Ce, Euは、1つまたは2つの波長が妨害を受けなかったが、検出下限以下の濃度であった。Baは、第1波長(455.403nm)で検出されているが第2波長(413.066nm)では検出されておらず、第1波長として検出された発光スペクトルは、他元素の発光に起因している可能性がある。最終的に、AMP法によりCs分離したVEGA実験試料溶液について、U, Zr, Srの3元素の定量化に成功した。

本分析ではホット試料の液量に制限があったため1回の測定しか行っておらず、分析精度(標準偏差)を求めることができなかった。標準溶液による検量式の精度は、標準溶液の濃度誤差に基づくため±2%以下と考えられるが、U, Zr, Srの測定結果について測定波長ごとの濃度測定値にばらつきが見られることから、分析誤差はそれより大きいと考えられる。各元素の検出限界濃度の文献値<sup>4)</sup>をTable 5の最右欄に記載した。ICP-AESによる定量下限は、通常、検出限界の10~100倍であり、VEGA実験試料溶液中の元素濃度測定値は定量下限値とほぼ同オーダーであることが分かる。さらに妨害ピークの影響等の誤差要因を考え合わせると、本分析結果には±30%程度の誤差が見込まれる。なお、コールド配管洗浄液についてはBaのみが検出されているが、配管材のインコネル600はBaを含まない。ホット試料において、第1波長で検出されたが第2波長で検出されなかったBaの測定結果の不確定性を考慮すると、今回の測定におけるBaの定量値にはやはり疑いがあると考えられる。

以上の分析により、ICP-AESの分析感度及びVEGA実験試料溶液中の元素濃度を把握することができた。ただし、試料溶液中に溶出したAMPの主成分であるMoの発光波長が、ICP-AESで他元素からの発光波長を測定する際に妨害となり得ることが明らかになった。このため、試料溶液中のU, Zr, Srの定量化に成功したが、Mo及びSb, Sn, Agを定量できなかった。しかしながら、Mo(Mo-99)及びSb(Sb-125)はγ線計測から定量可能であり、Ag, Snはリスク評価上重要でないことから、AMP法は、ソースターム評価を主目的とするVEGA実験の試料溶液からのCs分離に適用しても特に問題無いと考える。

4章及び5章で実施した試験結果を含め、AMP法によるCs分離がICP-AESの測定対象元素に及ぼす影響をTable 1のAMP法の欄に記載した。本報告で検討したCs分離法の長所及び短所を踏まえ、沈殿分離法も併用しつつ、今後、VEGA実験装置配管酸洗浄液のCs分離とICP-AESを用いた分析を実施し、γ線非放射性核種、短半減期核種及び微量元素の放出、移行沈着挙動を明らかにしてゆく予定である。

## 6. まとめ

照射済燃料からの放射性物質放出挙動実験 (VEGA) 計画においては、 $\gamma$ 線非放射性核種、短半減期核種及び微量元素の放出及び移行沈着量評価を目的として、誘導結合プラズマ原子発光分光分析 (ICP-AES) を用いた実験装置配管酸洗液中の元素分析を予定している。分析に際しては、ICP-AES 分析装置の汚染防止及び被曝量低減の観点から、酸洗浄液中に溶解している FP のうち、主要な $\gamma$ 線源である Cs-134 及び Cs-137 を事前に除去する必要がある。このため、酸洗液からの Cs 分離方法、及びその手法を用いた場合の ICP-AES 分析への影響等について検討した。その結果、以下のことが明らかになった。

- (1) Cs に対する選択的吸着性が高いアンモニウムモリブドリン酸 (AMP) をイオン交換樹脂とした Cs 分離法について、コールド試料を用いた分離試験を実施し、40 種類の元素の回収率を調べた結果、Cs を 99.9% 以上分離しつつ、その他の元素はほとんど回収できた。しかしながら、分析対象である一部の元素 (Zr, Ag, Sb) の回収率は約 80% 以下であり、Zr は約 2% と非常に低かった。それらに対し、金属イオンを化学的に安定な錯体に変える錯化剤について検討した結果、クエン酸または酒石酸を錯化剤として分離液と併用することにより、少なくとも Sb の回収率は向上できた。
- (2) また、クエン酸を併用した AMP 法により Cs を分離除去した VEGA 実験試料溶液を ICP-AES を用いて試験的に元素分析した結果、試料溶液に溶出した AMP の主成分である Mo のスペクトル干渉により、Ag, Mo, Sb, Sn の定量は不可能であったが、U, Sr, Zr を定量化できた。Mo (Mo-99) 及び Sb (Sb-125) は $\gamma$ 線計測から定量可能であること、Ag, Sn はリスク評価上重要でないことから、AMP 法は、VEGA 実験試料溶液からの Cs 分離に用いても実用上、特に問題無いものとする。

本報告で検討した Cs 分離法の長所及び短所を踏まえ、沈殿分離法も併用しつつ、今後、VEGA 実験における $\gamma$ 線非放射性核種、短半減期核種及び微量元素の放出、移行沈着挙動を明らかにしてゆく予定である。

## 謝 辞

原研 WASTEF 課の喜多川勇氏、糸永文雄氏には、ICP-AES による元素分析を実施していただいた。原子力エンジニアリング (株) の永井敦也氏、(財)放射線利用振興協会の武石秀世氏には、Cs 分離作業を実施していただくとともに、それらの方法について有用な助言をいただいた。また、ホット試験室実用燃料試験課の方々と熱水力安全研究室の木内敏男氏には、放射線管理に関して技術的な支援及びコメントをいただいた。アトックス(株)の安蔵雅彦氏、(株)バンダイ・ケミカルの河村敏秀氏には、VEGA 実験装置の運転保守、試験後分析等の一連の作業を進めていただいた。ここに、深く感謝の意を表します。

## 参考文献

- 1) 日高昭秀、他、「照射済燃料からの放射性物質放出挙動実験 (VEGA) 計画について」、日本工業出版プロダクション「原子力 eye」、Vol.46, No.3, pp.79-83 (2000).
- 2) 日高昭秀、他、「シビアアクシデント条件下の照射済燃料からの放射性物質放出挙動 [VEGA-1 実験の結果]」、JAERI-Research 2001-055 (2001).
- 3) 不破敬一郎、原口紘?、編、「ICP 発光分析」、化学の領域、増刊 127 号、南江堂、(1980).
- 4) 原口紘?、「ICP 発光分析の基礎と応用」、講談社サイエンティフィック、(1988).
- 5) W. Faubel and A. A. Sameh, "Separation of Cesium from Acid Solutions by Sorption on Inorganic Ion Exchangers," *Radiochim. Acta*, 40, pp.49 (1986).
- 6) M. Suss and G. Pfrepper, "Investigations of the Sorption of Cesium from Acid Solutions by Various Inorganic Sorbents," *Radiochim. Acta*, 29, pp.33 (1981).
- 7) 林田烈、他、「照射済燃料からの放射性物質放出 (VEGA) 実験装置の運転・保守要領書」、JAERI-Tech 2001-029 (2001).
- 8) I. M. Kolthoff 他著、藤原鎮男監訳、「コルトフ 分析化学 (III) 定量分析」、廣川書店、(1975).
- 9) 上野景平、他、「テトラフェニルホウ素ナトリウム - その分析化学的応用 - (その 2)」、*Japan Analyst*, 18, pp.81 (1969).
- 10) A. Hidaka, et al., "Enhancement of Cesium Release from Irradiated Fuel at Temperature above 2,800K," *J. Nucl. Sci. Technol.* Vol.39, No.3, pp.273-275 (2002).
- 11) 日本分析化学会編、「分析化学便覧」、改定四版、丸善、(1991).
- 12) 坂本正臣、他、「テトラフェニルホウ酸塩とテトラ (p-フルオロフェニル) ホウ酸塩によるカリウム、ルビジウム、セシウムの同時熱重量分析定量」、*分析化学*, 39, pp.7 (1990).
- 13) C. M. Tsai, et al., "A New Method for the Determination of  $^{137}\text{Cs}$  in Environmental Materials," *Radiochem. Radioanal. Letters*, 20(3), pp.167 (1975).

Table 1 Comparison of Cs Separation Methods

Separation Methods	Affection to objective elements to be analyzed	Objective Elements										Remarks (M: Merit, D: Demerit)		
		Objective Elements												
		Sr	Ag	Ba	Sb	Mo	Ce	U	Eu	Zr	Sn			
AMP	Cs Separation	⊙	⊙	⊙	(X)	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	M: Easy operation D: Low recovery of Sb and Zr. (But, recovery of Sb was improved by using complexing agent.) D: AMP components (Mo, P) dissolved into solution
	ICP-AES	⊙	X	⊙	X	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	D: Ag, Sb and Sn could not be measured due to interference by Mo
H <sub>2</sub> PtCl <sub>6</sub>	Cs Separation	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	D: Need alcohol solvent D: Possibility of dissolving Cs <sub>2</sub> PtCl <sub>6</sub> into solution M: All objective elements are considered to be not removed by the method
	ICP-AES	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	D: Possibility of interference by Pt
Na-TPB	Cs Separation	⊙	X	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	M: Low solubility of Cs-TPB into solution D: Using NaOH for pH control increases Na concentration in solution D: Ag is considered to be removed by the method
	ICP-AES	△	△	△	△	△	△	△	△	△	△	△	△	D: Possibility of increase in measurement error due to ionization of Na
Na-TFPB	Cs Separation	⊙	X	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	⊙	M: Low solubility of Cs-TFPB into solution M: Lower Na concentration than Na-TPB method D: Ag is considered to be removed by the method
	ICP-AES	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	M: Considered to be less error because of lower concentration of Na than Na-TPB method

⊙ : Sufficient recovery in Cs separation method, or it is measurable in ICP-AES  
 ○ : Considered to be measurable in ICP-AES  
 △ : Considered to be measurable in ICP-AES, but it will be accompanied with some error  
 - : Unknown to be or not to be measurable in ICP-AES  
 X : Low recovery in Cs separation method, or it is not measurable in ICP-AES



Table 2 Recovery of Elements from AMP

Element	Element Weights in solutions before and after Cs separation		Recovery [%]	Method of Measurement
	Before [ $\mu\text{g}$ ]	After [ $\mu\text{g}$ ]		
Li	500.0	497.3	99.5	ICP-AES
Na	500.0	479.0	95.8	ICP-AES
K	500.0	486.3	97.3	ICP-AES
Rb	716.4	N.D.	0.0	ICP-AES
Cs	1000.0	N.D.	0.0	AAS
Mg	503.5	494.6	98.2	ICP-AES
Ca	502.1	496.6	98.9	ICP-AES
Sr	739.6	748.8	101.2	ICP-AES
Ba	595.2	586.4	98.5	ICP-AES
Ti	499.0	478.6	95.9	ICP-AES
Zr	516.4	8.1	1.6	ICP-AES
V	481.5	478.2	99.3	ICP-AES
Cr	513.0	497.8	97.0	ICP-AES
Mn	505.2	496.0	98.2	ICP-AES
Fe	504.0	490.4	97.3	ICP-AES
Co	501.6	500.3	99.7	ICP-AES
Ni	498.0	494.4	99.3	ICP-AES
Cu	505.6	491.0	97.1	ICP-AES
Zn	731.1	725.6	99.2	ICP-AES
Ag	519.6	394.4	75.9	ICP-AES
Cd	500.0	490.3	98.1	ICP-AES
Hg	499.5	493.6	98.8	ICP-AES
Al	625.0	620.2	99.2	ICP-AES
In	503.3	496.7	98.7	ICP-AES
Tl	504.5	276.9	54.9	ICP-AES
Ge	500.0	491.8	98.4	ICP-AES
Pb	722.7	715.8	99.0	ICP-AES
Bi	716.4	690.5	96.4	ICP-AES
Se	500.0	477.0	95.4	ICP-AES
Te	500.0	489.9	98.0	ICP-AES
As	500.0	522.8	104.6	ICP-AES
Sb	500.0	408.6	81.7	ICP-AES
Pd	533.7	525.1	98.4	ICP-AES
Rh	547.3	534.4	97.6	ICP-AES
Y	466.6	445.9	95.6	ICP-AES
Ce	605.2	616.5	101.9	ICP-AES
Nd	618.2	631.1	102.1	ICP-AES
Sm	633.2	636.3	100.5	ICP-AES
Eu	604.2	610.2	101.0	ICP-AES
Gd	630.8	640.9	101.6	ICP-AES

N.D.: Not Detected

ICP-AES: Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectrometry

AAS: Atomic Absorption Spectrometry

(Shaded elements; lower recovery than 95%)

Table 3 Radioactivity of Solution before and after Cs Adsorption onto AMP

Nuclides	Radioactivity (Bq/ml)				
	Before	After			
		HNO <sub>3</sub>	HNO <sub>3</sub> + Citric Acid	HNO <sub>3</sub> + Tartaric Acid	HNO <sub>3</sub> + HBF <sub>4</sub>
Cs-134	8.25E+05	N.D.	N.D.	1.09E+02	2.60E+01
Cs-137	7.23E+06	6.40E+01	9.30E+00	2.53E+01	6.08E+02
Sb-125	N.D.	9.28E+01	1.97E+03	1.98E+03	4.98E+02

(N.D.; Not Detected)

Table 4 Specification of ICP-AES System and Analysis Conditions

System		ICPS-1000II (Shimadzu Co.)
ICP Components	Nebulizer	GEICP 046-00092-02 type (Conical Nebulizer)
	Chamber	GEICP 046-00093-02 type (Cyclone Chamber)
	Torch	GEICP 204-74323 type
Inductive Power		1.2 kW
Vacuousness		0.01 Torr (=1.33 Pa)
Ar Gas Flow Rate	Carrier	1.0 l/min
	Plasma	1.2 l/min
	Coolant	15.0 l/min
	Purge	15.0 l/min
Analysis Mode		Profile Analysis Mode

Table 5 Results of ICP-AES for VEGA-3 Solution  
(Cs Separated by AMP)

Elements	Order of Sensitivity	Wave Length (nm)	Concentration (ppm)		Detective Limit <sup>(4)</sup> (ppm)
			Hot Specimen	Cold Specimen	
Ba	1	455.403	0.72	0.01	0.0002
	2	413.066	N.D.	0.05	
	3	230.424	×	N.D.	
Ce	1	413.765	×	N.D.	0.01
	2	413.380	N.D.	N.D.	
	3	418.660	×	N.D.	
Eu	1	381.967	×	N.D.	0.0002
	2	412.970	N.D.	N.D.	
	3	390.710	N.D.	N.D.	
Sb	1	206.833	×	N.D.	0.01
	2	217.581	×	N.D.	
	3	231.147	×	N.D.	
Sn	1	189.989	×	N.D.	0.01
	2	235.484	×	N.D.	
	3	283.999	×	N.D.	
Sr	1	407.771	0.07	N.D.	0.0001
	2	421.552	0.04	N.D.	
	3	216.596	×	N.D.	
Zr	1	343.823	0.10	N.D.	0.002
	2	339.198	×	N.D.	
	3	349.621	0.15	N.D.	
Ag	1	338.289	×	N.D.	0.001
	2	243.779	×	N.D.	
	3	224.641	×	N.D.	
Mo	1	202.030	Over	N.D.	0.001
	2	281.615	Over	N.D.	
	3	277.540	Over	N.D.	
U	1	367.007	×	N.D.	0.05
	2	409.014	3.45	N.D.	
	3	393.203	2.05	N.D.	

N.D.; Not Detected

×; Not Detectable Due to Interference

Over; Scale Over

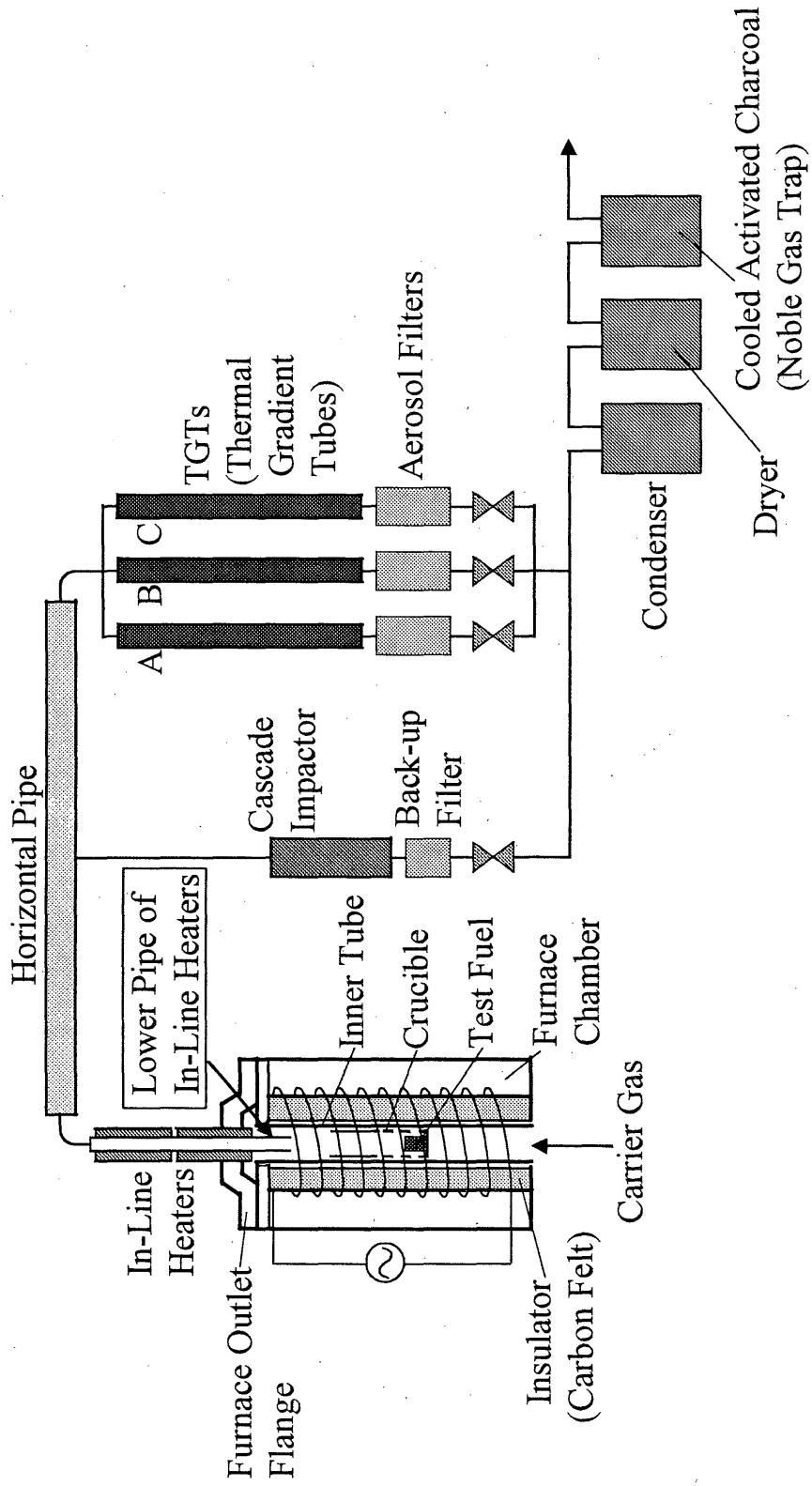


Fig. 1 Schematic of VEGA Test Apparatus

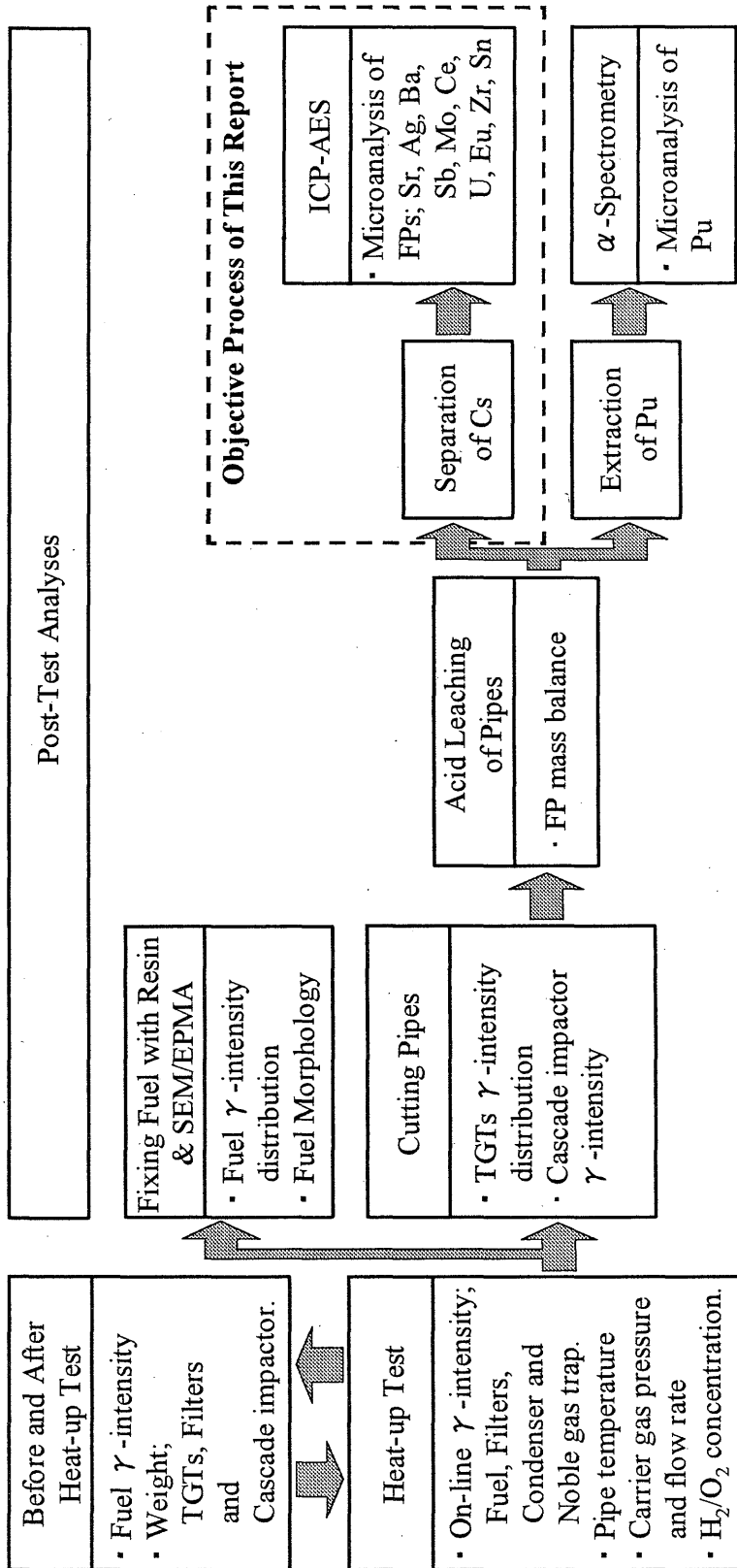


Fig. 2 Flow Chart of VEGA Test and Post-Test Analyses

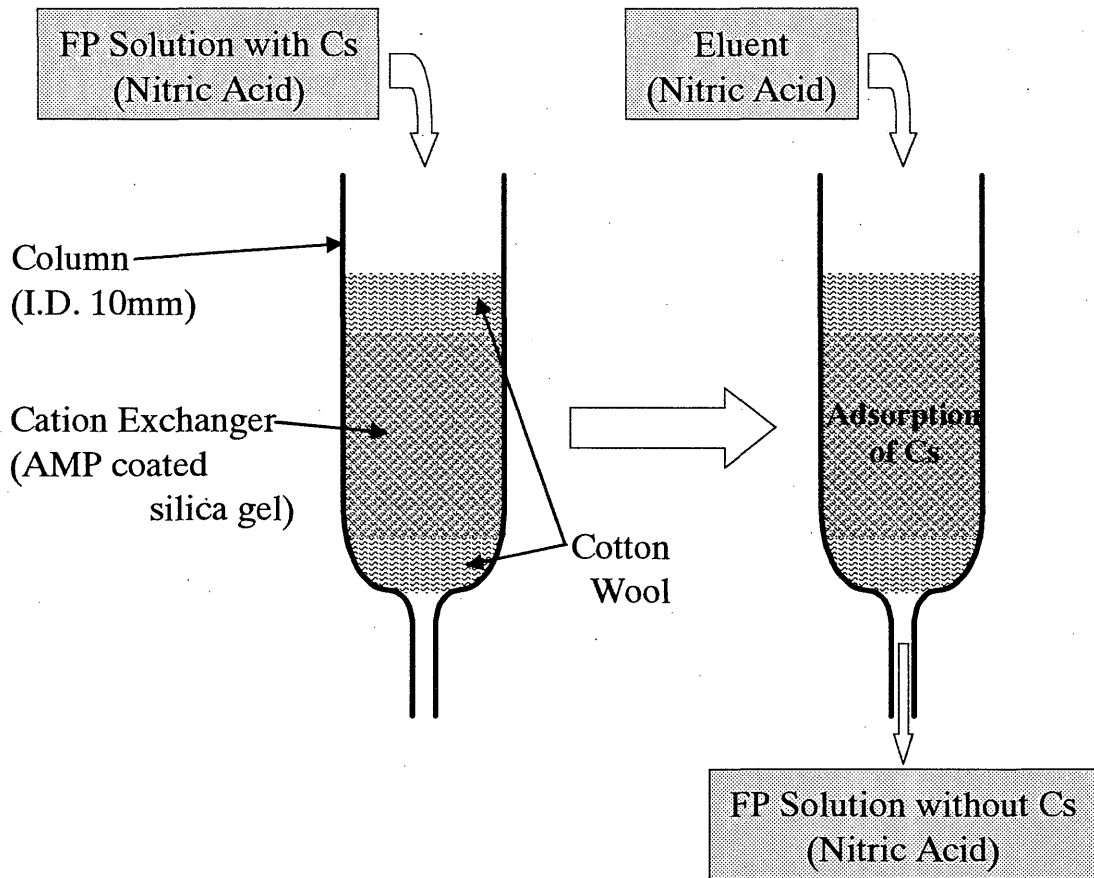


Fig. 3 Column for Cs separation by AMP

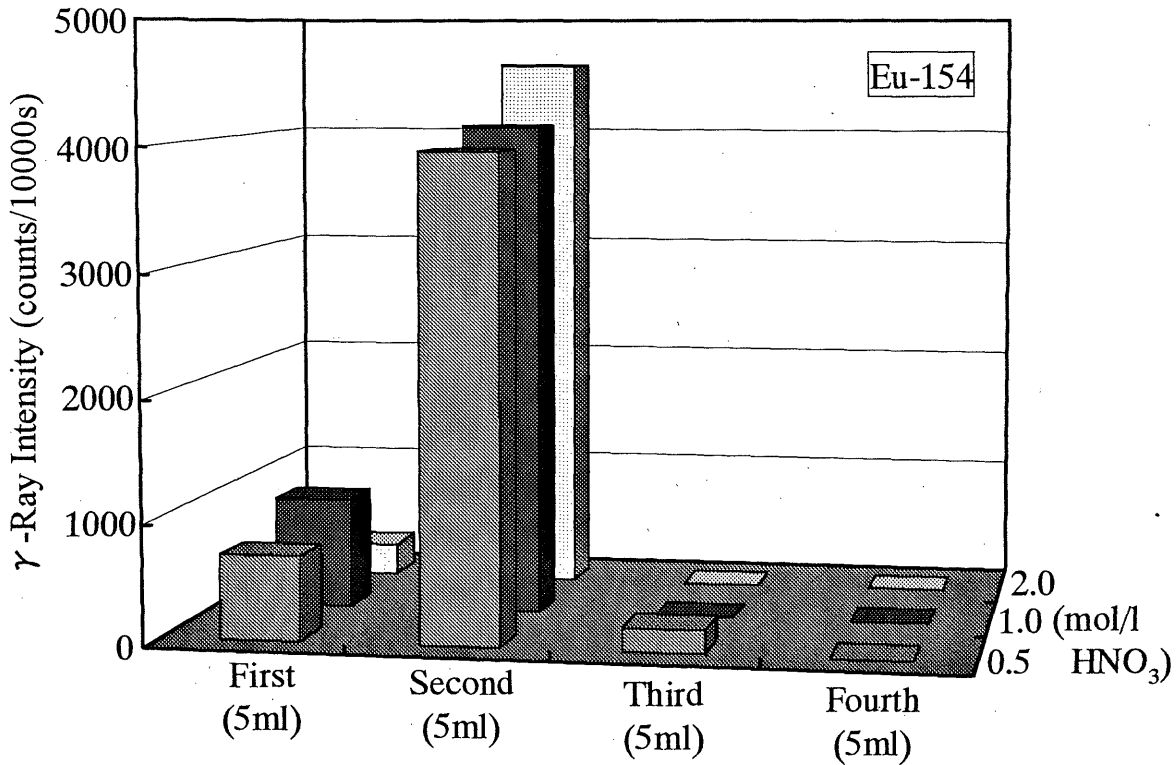


Fig. 4 Influence of Eluent Concentration and Amount on  $\gamma$ -Ray Intensity of Eu-154 in Solution Through AMP

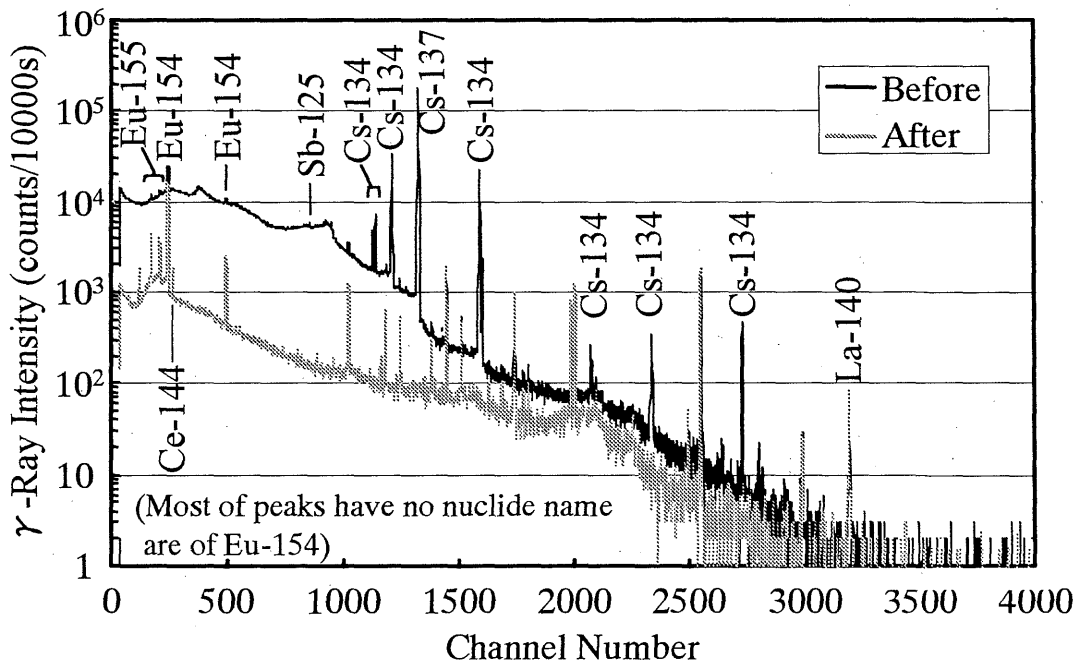


Fig. 5  $\gamma$ -Ray Spectrum of Solution before and after Cs Separation (2mol/l HNO<sub>3</sub> Eluent, 20ml)

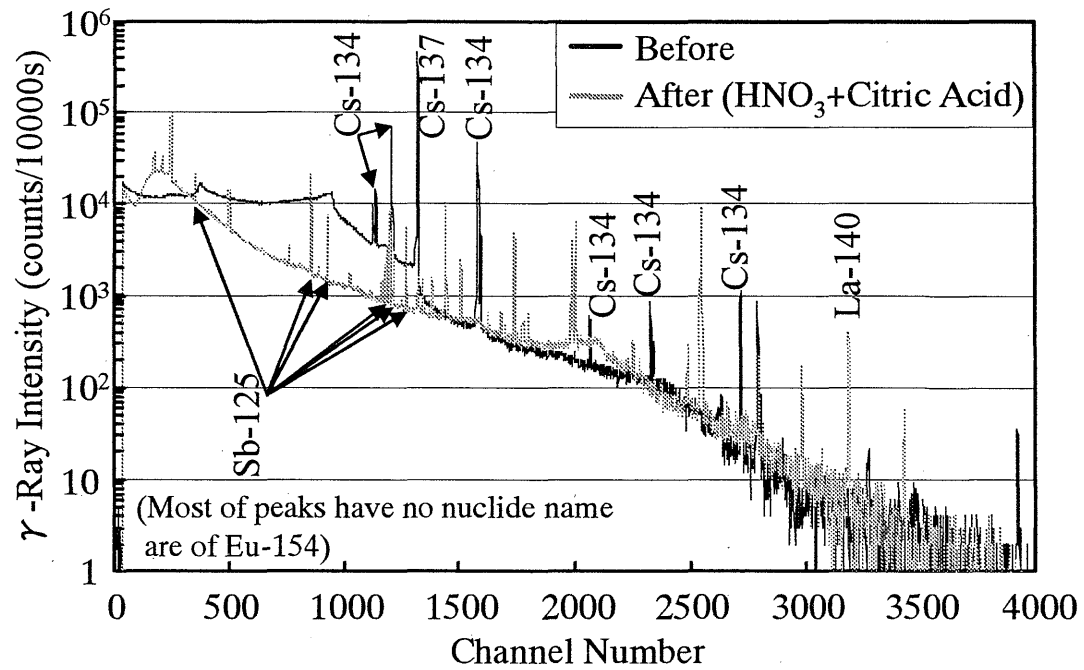
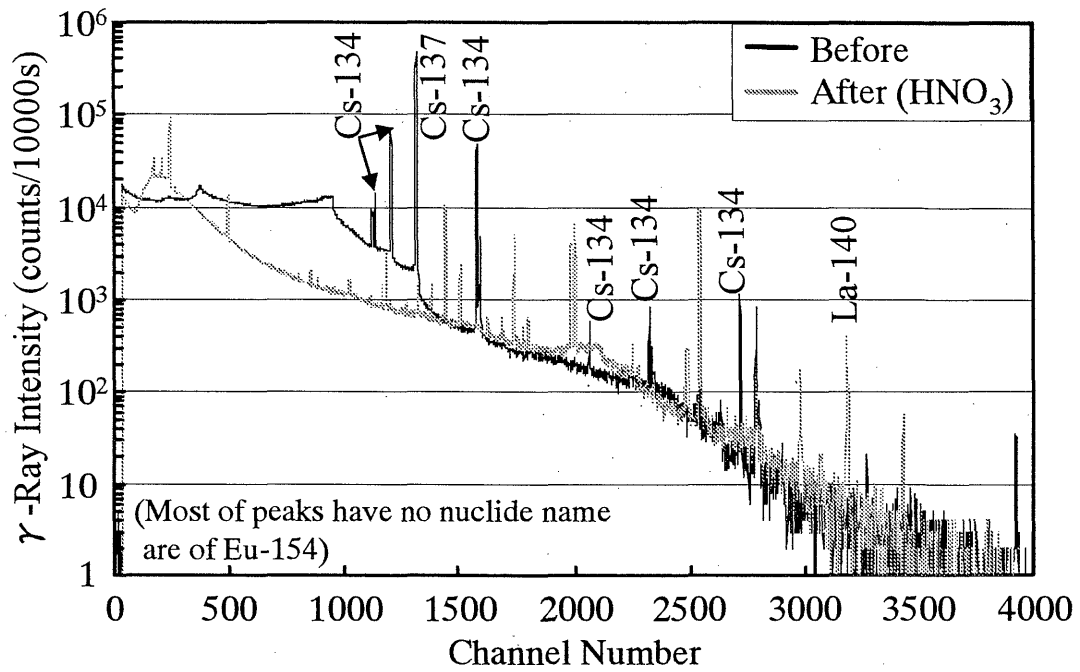


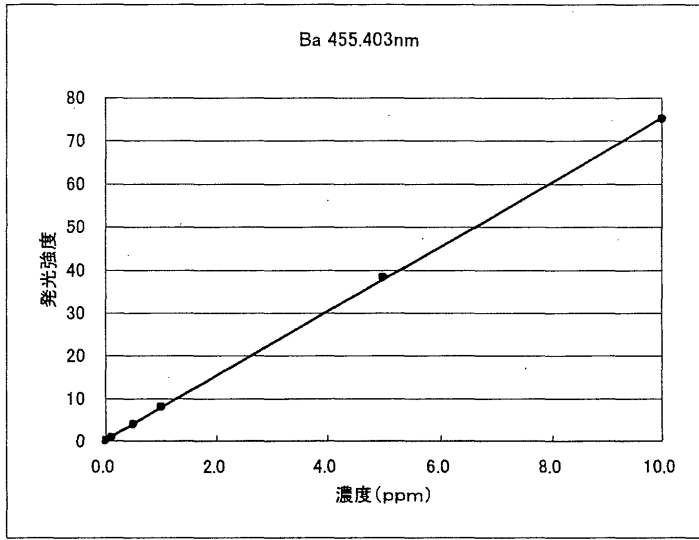
Fig. 6  $\gamma$ -Ray Spectrum of Solution before and after Cs Separation (2mol/l HNO<sub>3</sub> Eluent & 1mol/l Citric Acid-2.5mol/l HNO<sub>3</sub> Eluent)



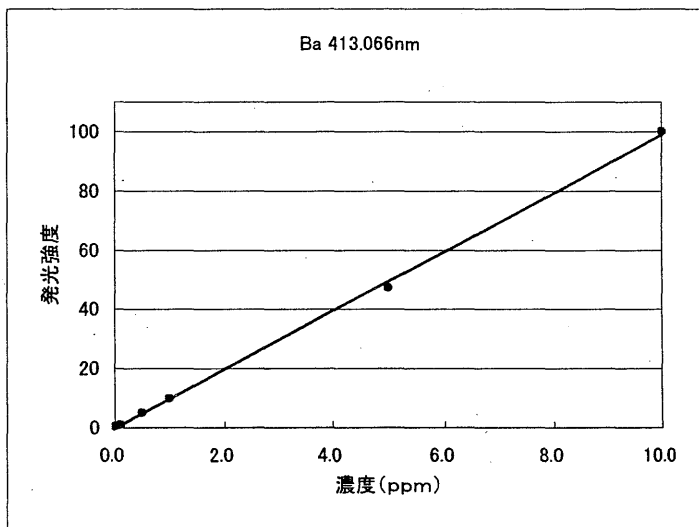
付録1 ICP-AESによるホット及びコールド試料の分析結果

表-1 Ba 検量線及び試料分析結果

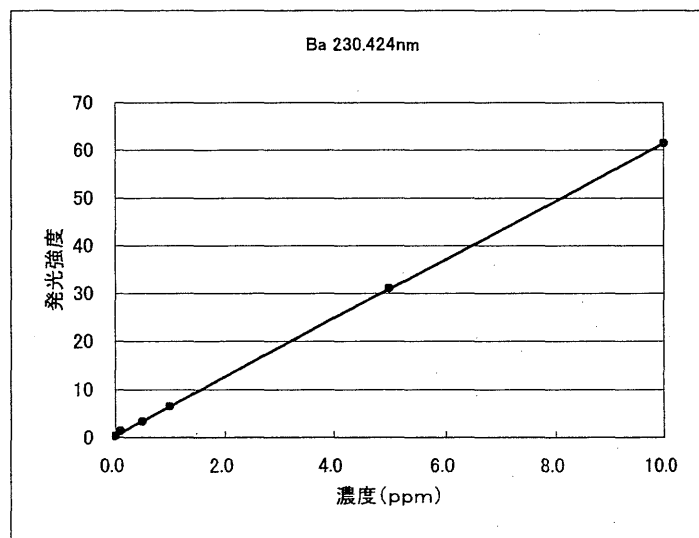
Ba 455.403 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.0799	-0.027489445
0.1	0.8799	0.078972848
0.5	3.999	0.494056021
1.0	7.979	1.023705929
5.0	38.36	5.066744584
10.0	75.2	9.964010063
傾き		0.133077866
切片		-0.038122366
決定係数 $r^2$		0.999906076
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	5.7090	0.722
コールド試料1	0.3699	0.011
コールド試料2	0.1999	-0.012



Ba 413.066 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.4499	0.067990627
0.1	0.8899	0.112330780
0.5	4.979	0.524401955
1.0	9.829	1.013151362
5.0	47.23	4.782165090
10.0	100.0	10.099960186
傾き		0.100773074
切片		0.022652821
決定係数 $r^2$		0.999215926
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	ND	ND
コールド試料1	0.3099	0.003
コールド試料2	ND	ND



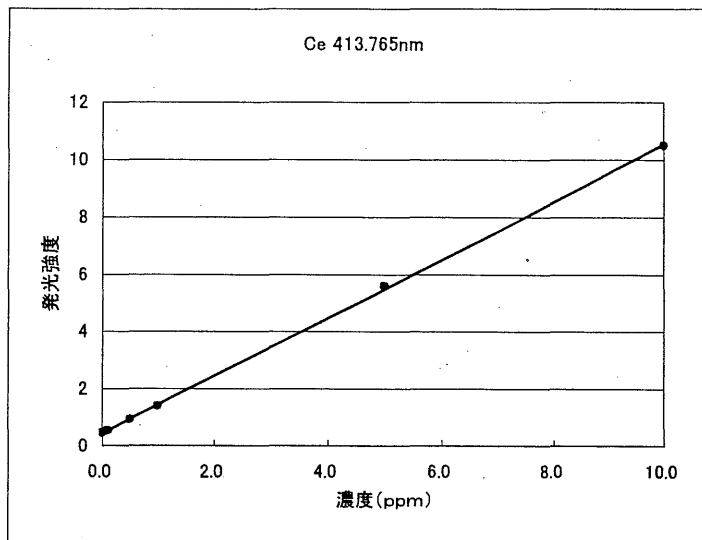
Ba 230.424 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.2099	-0.031265660
0.1	1.3290	0.152026580
0.5	3.299	0.474683816
1.0	6.479	0.995521386
5.0	31.03	5.016616724
10.0	61.4	9.992417154
傾き		0.163785399
切片		-0.065644216
決定係数 $r^2$		0.999941757
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	0.4199	0.018
コールド試料2	0.2999	0.002



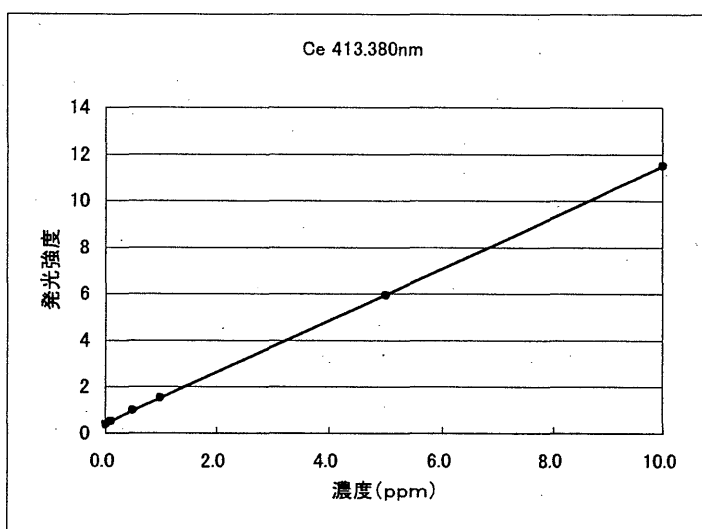
コールド試料1：インコネル酸洗溶液、 コールド試料2：SUS酸洗溶液  
 ND：検出限界以下、 ×：波長干渉（妨害）による分析不可、 Over：オーバースケール

表-2 Ce 検量線及び試料分析結果

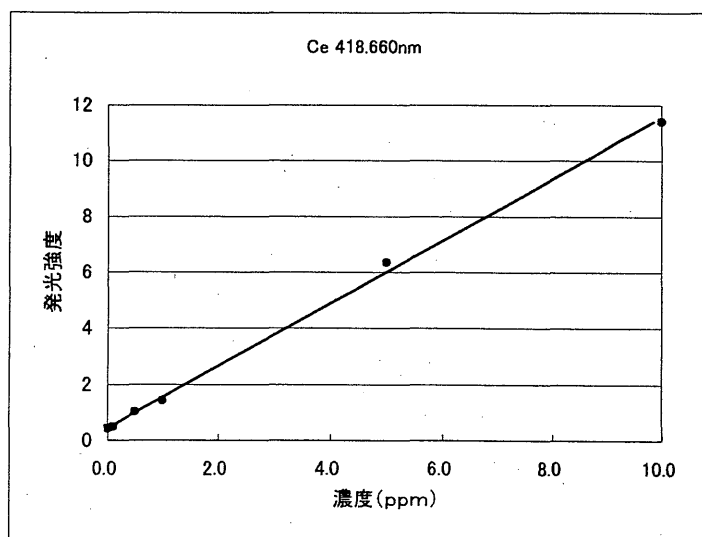
Ce 413.765 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.4399	0.007196715
0.1	0.5299	0.096327415
0.5	0.9199	0.482560446
1.0	1.399	0.957032870
5.0	5.589	5.106562103
10.0	10.48	9.950320452
傾き		0.990341106
切片		-0.428454337
決定係数 $r^2$		0.999800343
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



Ce 413.380 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.3699	-0.027529445
0.1	0.5199	0.107685952
0.5	0.9699	0.513332140
1.0	1.529	1.017324992
5.0	5.929	4.983643276
10.0	11.5	10.005543085
傾き		0.901435974
切片		-0.360970611
決定係数 $r^2$		0.999980169
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	ND	ND
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



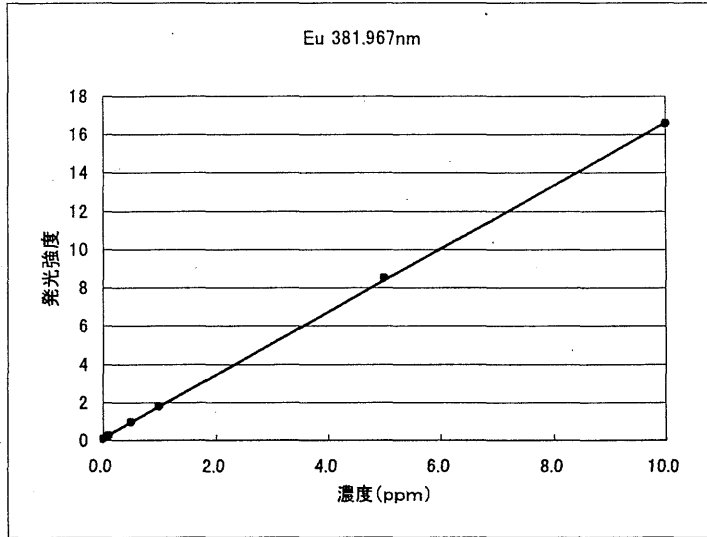
Ce 418.660 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.4099	-0.013724912
0.1	0.4799	0.049134502
0.5	1.009	0.524261866
1.0	1.419	0.892438429
5.0	6.329	5.301577270
10.0	11.39	9.846312845
傾き		0.897991617
切片		-0.381811675
決定係数 $r^2$		0.998387937
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



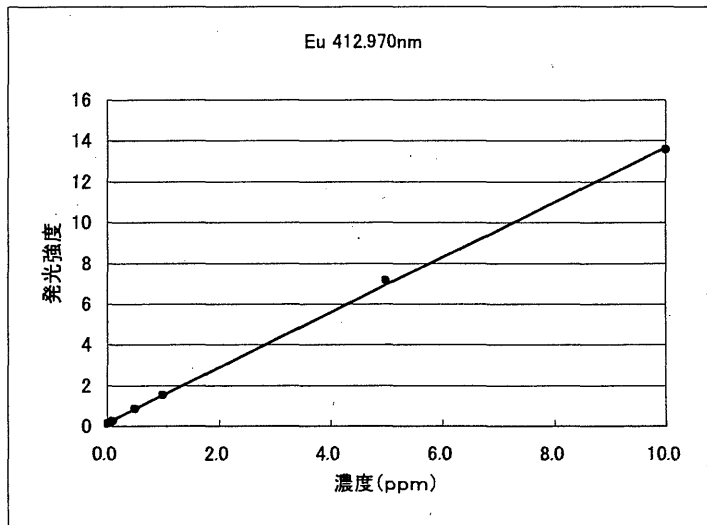
コールド試料1：インコネル酸洗溶液、 コールド試料2：SUS酸洗溶液  
 ND：検出限界以下、 ×：波長干渉（妨害）による分析不可、 Over：オーバースケール

表-3 Eu 検量線及び試料分析結果

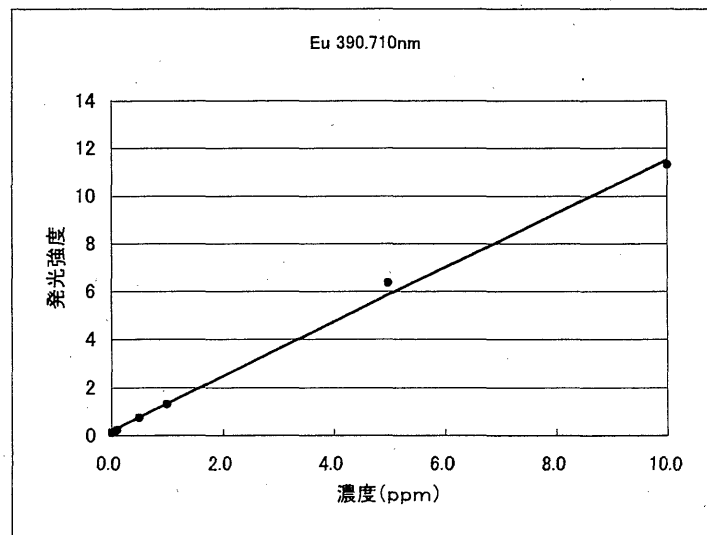
Eu 381.967 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.0699	-0.028875538
0.1	0.2399	0.074071324
0.5	0.9499	0.504025862
1.0	1.789	1.012159458
5.0	8.509	5.081588328
10.0	16.56	9.957030566
傾き		0.605569772
切片		-0.071204865
決定係数 $r^2$		0.999873363
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



Eu 412.970 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.1099	-0.040106252
0.1	0.2499	0.063581766
0.5	0.8399	0.500552697
1.0	1.509	0.996107359
5.0	7.139	5.165846925
10.0	13.55	9.914017504
傾き		0.740628697
切片		-0.121501345
決定係数 $r^2$		0.999528857
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	ND	ND
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



Eu 390.710 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.0999	-0.077660828
0.1	0.2299	0.036708753
0.5	0.7399	0.485389418
1.0	1.289	0.968468933
5.0	6.339	5.411287277
10.0	11.3	9.775806446
傾き		0.879766009
切片		-0.165549452
決定係数 $r^2$		0.997128656
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	ND	ND
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND

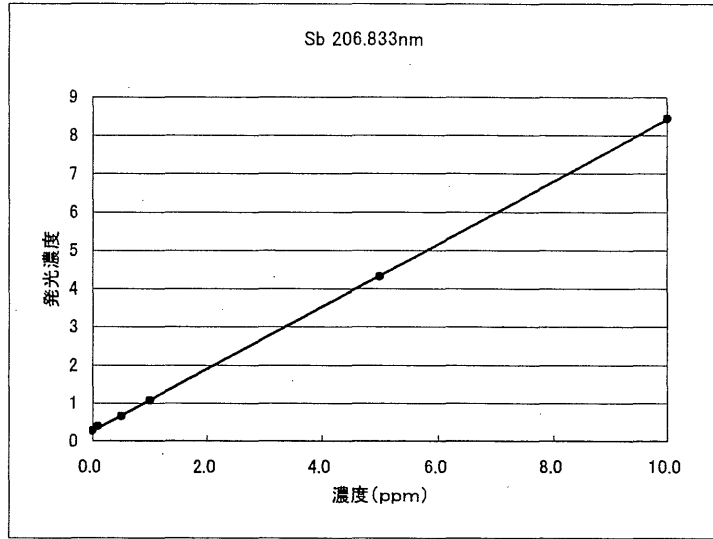


コールド試料1：インコネル酸洗溶液、 コールド試料2：SUS酸洗溶液  
 ND：検出限界以下、 ×：波長干渉（妨害）による分析不可、 Over：オーバースケール

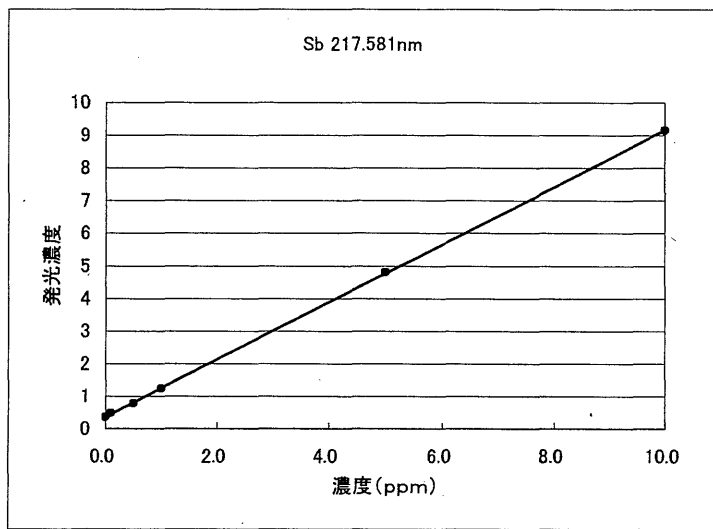
表-4

Sb 検量線及び試料分析結果

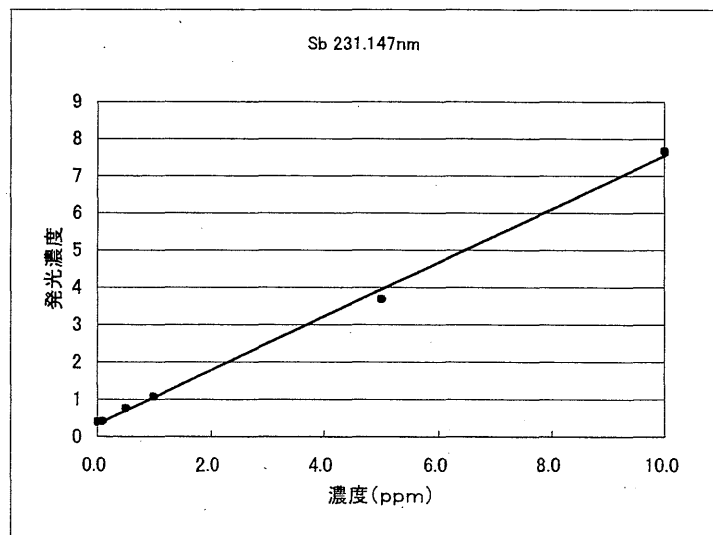
Sb 206.833 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.2599	-0.000701558
0.1	0.3899	0.158750269
0.5	0.6499	0.477653922
1.0	1.059	0.979436556
5.0	4.309	4.965732227
10.0	8.429	10.01912859
傾き		1.226552514
切片		-0.319482557
決定係数 $r^2$		0.999926376
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



Sb 217.581 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.3499	-0.005950991
0.1	0.4699	0.130246311
0.5	0.7699	0.470739566
1.0	1.219	0.980457968
5.0	4.799	5.043677475
10.0	9.149	9.98082967
傾き		1.134977516
切片		-0.403079624
決定係数 $r^2$		0.999944437
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



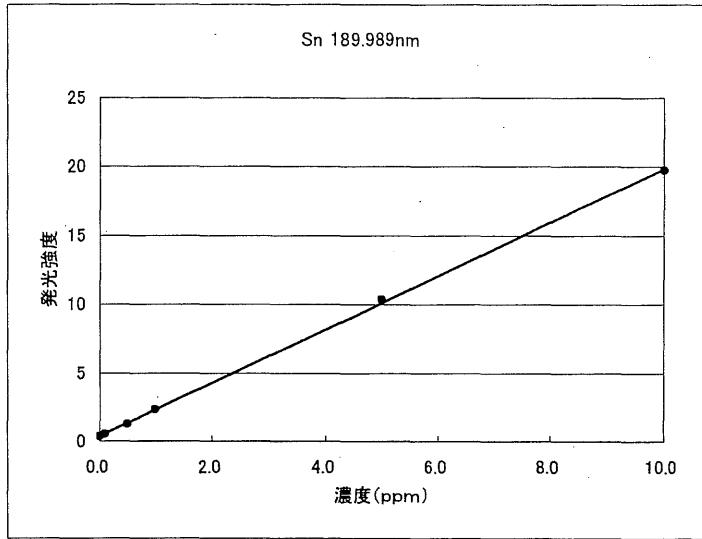
Sb 231.147 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.3899	0.088998671
0.1	0.3999	0.102851902
0.5	0.7499	0.587714999
1.0	1.069	1.029771611
5.0	3.669	4.631611758
10.0	7.659	10.15905106
傾き		1.385323134
切片		-0.451138819
決定係数 $r^2$		0.997790253
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	×	×



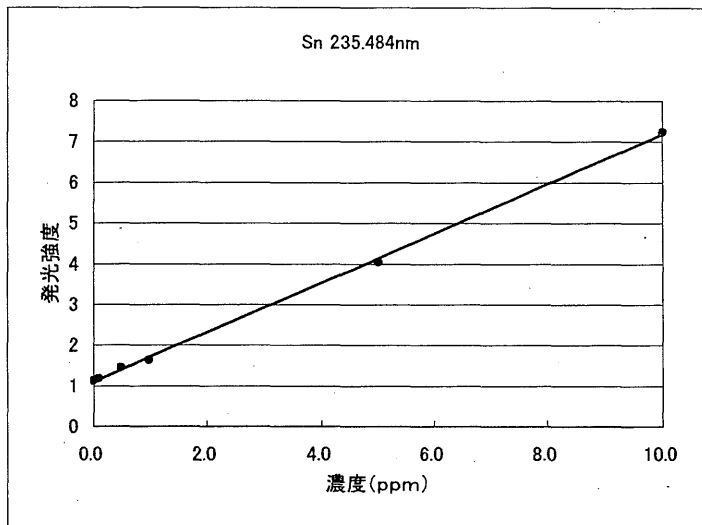
コールド試料1 : インコネル酸洗溶液、 コールド試料2 : SUS酸洗溶液  
 ND : 検出限界以下、 × : 波長干渉 (妨害) による分析不可、 Over : オーバースケール

表-5 Sn 検量線及び試料分析結果

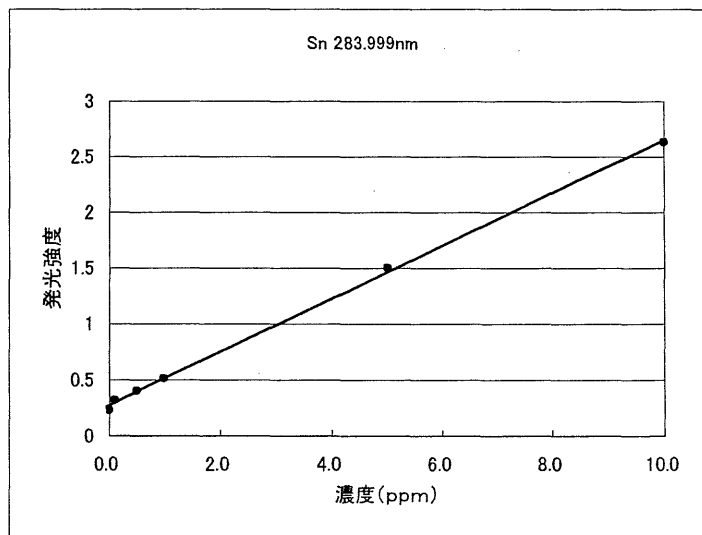
Sn 189.989 nm		
濃度 (ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.3399	-0.001612094
0.1	0.5099	0.085568635
0.5	1.229	0.454343120
1.0	2.289	0.997940610
5.0	10.34	5.126717389
10.0	19.72	9.937042340
傾き		0.512827820
切片		-0.175922270
決定係数 $r^2$		0.999722150
試料名	発光強度	濃度 (ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



Sn 235.484 nm		
濃度 (ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	1.119	0.054037009
0.1	1.179	0.152479214
0.5	1.449	0.595469138
1.0	1.619	0.874388720
5.0	4.039	4.844891001
10.0	7.229	10.078734918
傾き		1.640703422
切片		-1.781910121
決定係数 $r^2$		0.999242847
試料名	発光強度	濃度 (ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	×	×



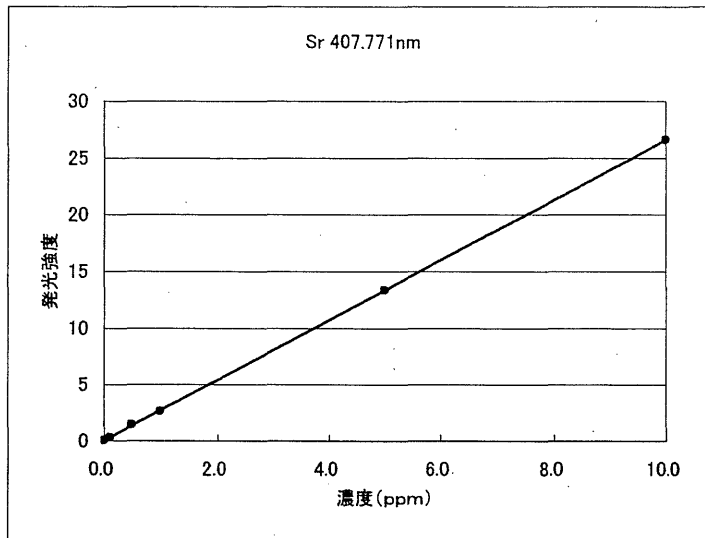
Sn 283.999 nm		
濃度 (ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.2299	-0.185413959
0.1	0.3199	0.193399676
0.5	0.3999	0.530122907
1.0	0.5099	0.993117349
5.0	1.499	5.156279195
10.0	2.629	9.912494832
傾き		4.209040386
切片		-1.153072344
決定係数 $r^2$		0.999052237
試料名	発光強度	濃度 (ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	×	×



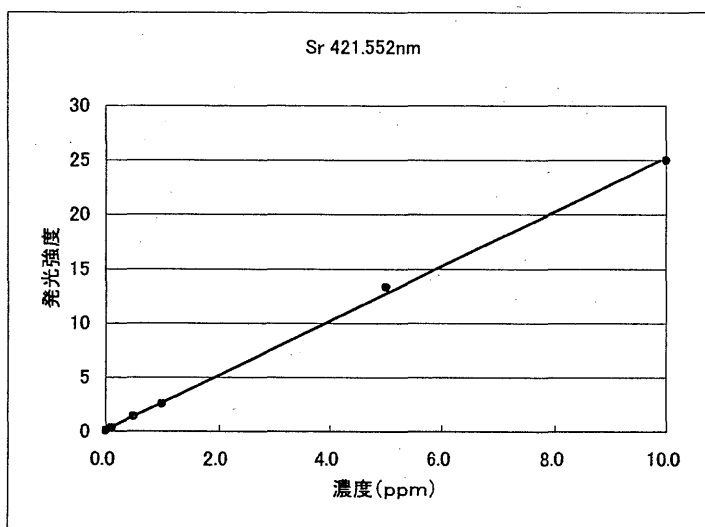
コールド試料1：インコネル酸洗溶液、 コールド試料2：SUS酸洗溶液  
 ND：検出限界以下、 ×：波長干渉(妨害)による分析不可、 Over：オーバースケール

表-6 Sr 検量線及び試料分析結果

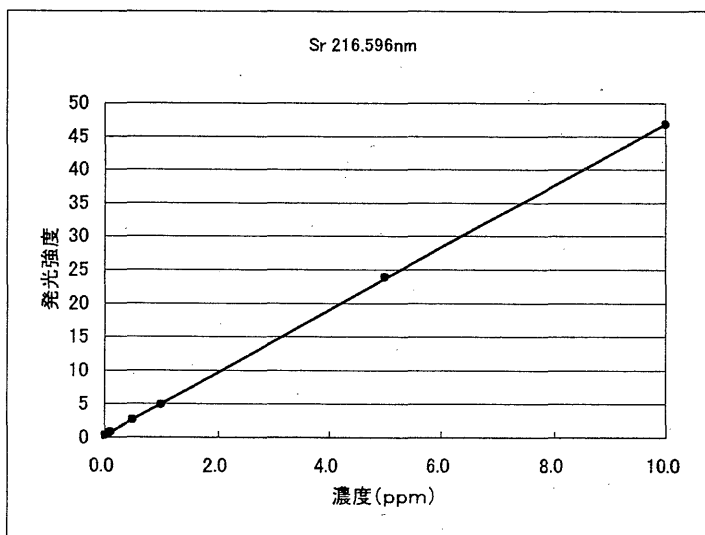
Sr 407.771 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.0299	-0.005642762
0.1	0.3099	0.099733900
0.5	1.459	0.532192192
1.0	2.619	0.968752647
5.0	13.35	5.007313203
10.0	26.61	9.997650820
傾き		0.376345220
切片		-0.016895484
決定係数 $r^2$		0.999973814
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	0.2199	0.066
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



Sr 421.552 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.0299	-0.033920009
0.1	0.2899	0.069588184
0.5	1.349	0.491224827
1.0	2.519	0.957011696
5.0	13.27	5.237075477
10.0	24.93	9.879019826
傾き		0.398108435
切片		-0.045823451
決定係数 $r^2$		0.999068364
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	0.2199	0.066
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



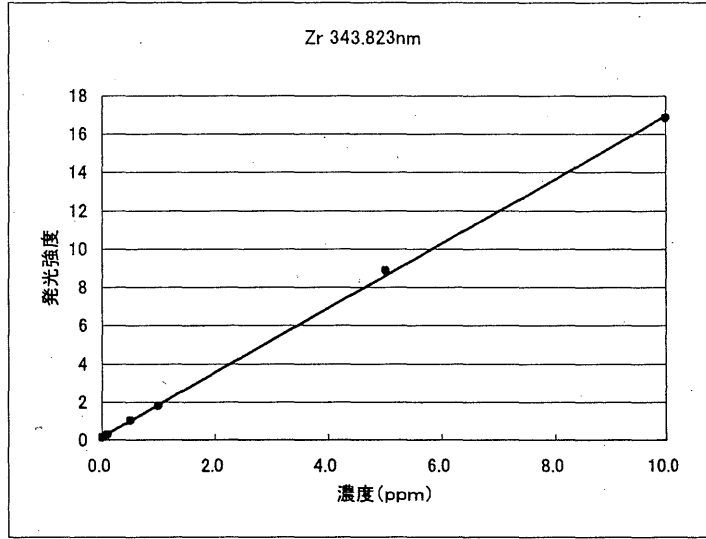
Sr 216.596 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.2799	-0.007176136
0.1	0.8199	0.108641338
0.5	2.579	0.485927483
1.0	4.899	0.983513668
5.0	23.88	5.054497883
10.0	46.82	9.974595764
傾き		0.214476804
切片		-0.067208194
決定係数 $r^2$		0.999947576
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	×	×



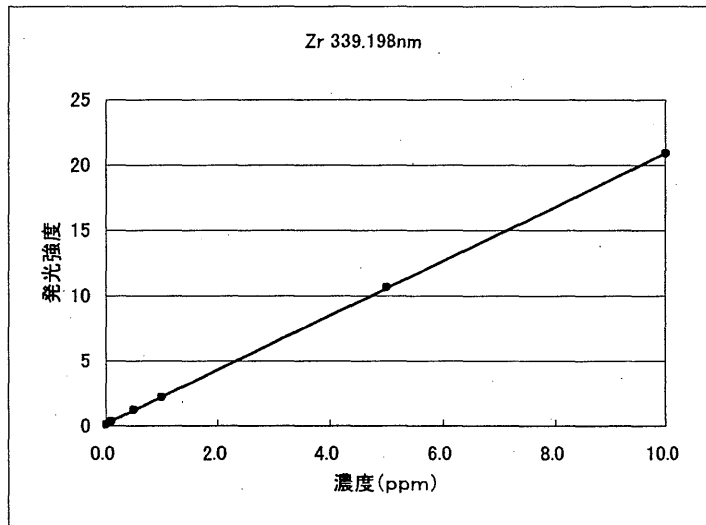
コールド試料1：インコネル酸洗溶液、 コールド試料2：SUS酸洗溶液  
 ND：検出限界以下、 ×：波長干渉（妨害）による分析不可、 Over：オーバースケール

表-7 Zr 検量線及び試料分析結果

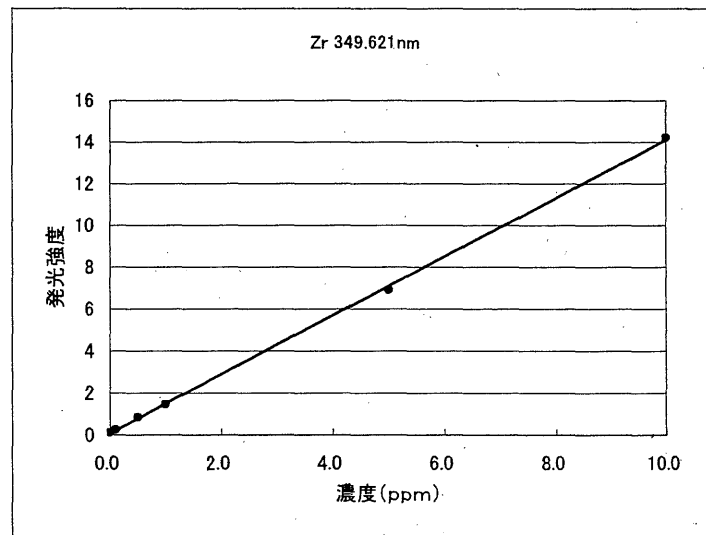
Zr 343.823 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.1099	-0.029107708
0.1	0.2799	0.071953689
0.5	1.019	0.511332974
1.0	1.779	0.963136866
5.0	8.849	5.166102022
10.0	16.84	9.916582157
傾き		0.594478806
切片		-0.094440929
決定係数 $r^2$		0.999531084
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	0.3299	0.102
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



Zr 339.198 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.0899	-0.024677597
0.1	0.3299	0.090665883
0.5	1.219	0.517965418
1.0	2.209	0.993757274
5.0	10.64	5.045677619
10.0	20.9	9.976611403
傾き		0.480597835
切片		-0.067883342
決定係数 $r^2$		0.999954050
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



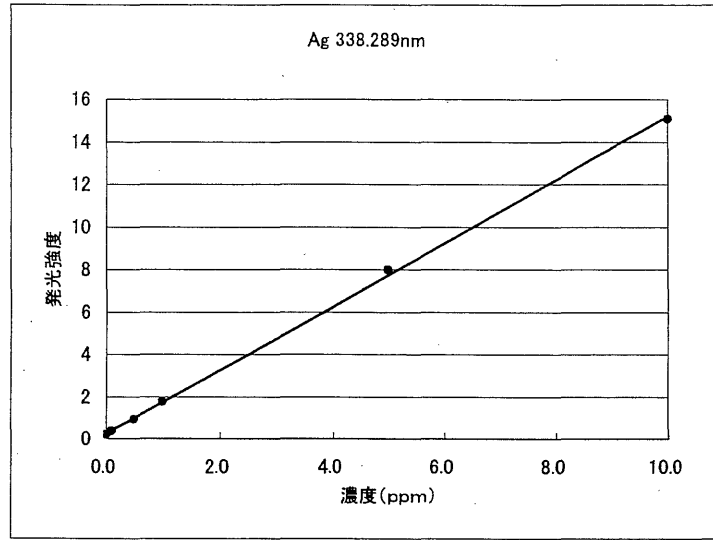
Zr 349.621 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.1099	0.027802042
0.1	0.2399	0.120410271
0.5	0.8399	0.547832866
1.0	1.439	0.974614327
5.0	6.899	4.864159942
10.0	14.2	10.065180553
傾き		0.712370992
切片		-0.050487530
決定係数 $r^2$		0.999666104
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	0.2799	0.072
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



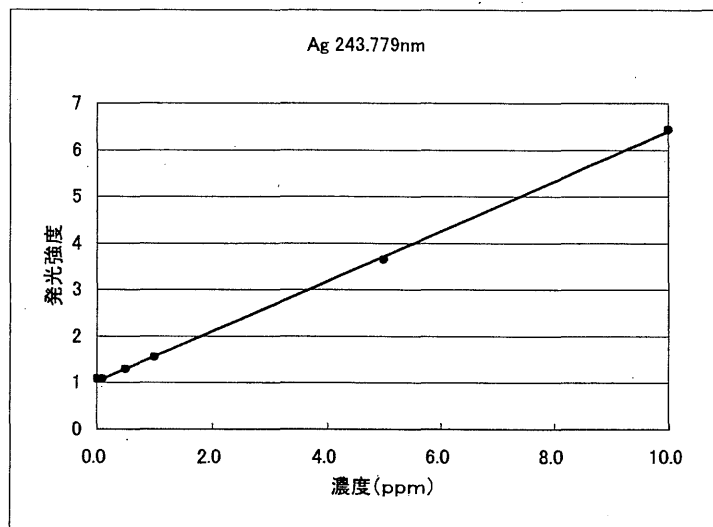
コールド試料1：インコネル酸洗溶液、コールド試料2：SUS酸洗溶液  
 ND：検出限界以下、×：波長干渉（妨害）による分析不可、Over：オーバースケール

表-8 Ag 検量線及び試料分析結果

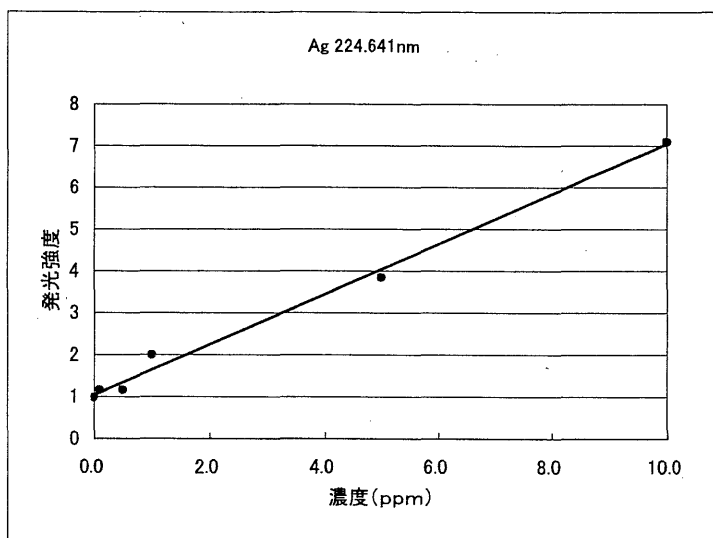
Ag 338.289 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.1999	-0.028523859
0.1	0.3699	0.085118530
0.5	0.9199	0.452785081
1.0	1.749	1.007025695
5.0	7.979	5.171684991
10.0	15.07	9.911909562
傾き		0.668484638
切片		-0.162153938
決定係数 $r^2$		0.999495236
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



Ag 243.779 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	1.079	0.098405507
0.1	1.079	0.098405507
0.5	1.289	0.490248055
1.0	1.549	0.975386447
5.0	3.639	4.875152758
10.0	6.419	10.062401726
傾き		1.865916895
切片		-1.914918823
決定係数 $r^2$		0.999628200
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	×	×



Ag 224.641 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.9699	-0.108962821
0.1	1.159	0.205498093
0.5	1.149	0.188868748
1.0	1.989	1.585733730
5.0	3.839	4.662162559
10.0	7.089	10.066699690
傾き		1.662934502
切片		-1.721842995
決定係数 $r^2$		0.992761755
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND

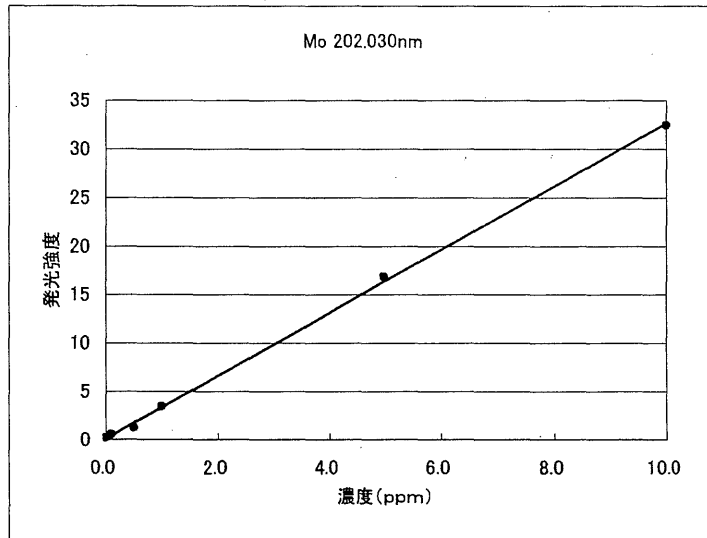


コールド試料1：インコネル酸洗溶液、 コールド試料2：SUS酸洗溶液  
 ND：検出限界以下、 ×：波長干渉(妨害)による分析不可、 Over：オーバースケール

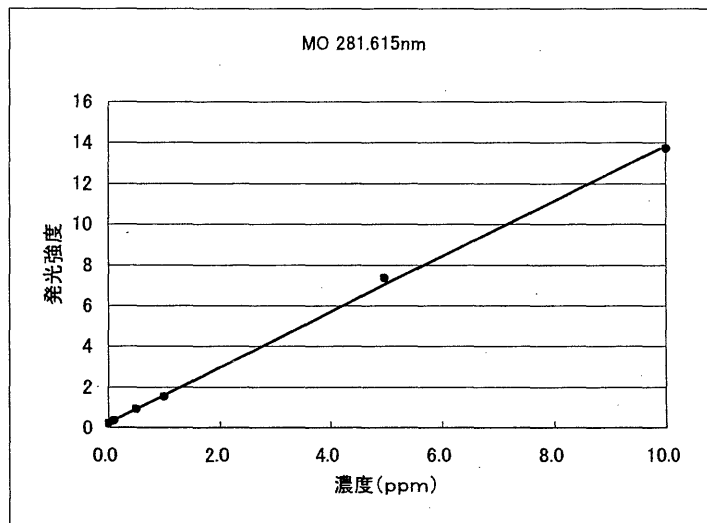


表-9 Mo 検量線及び試料分析結果

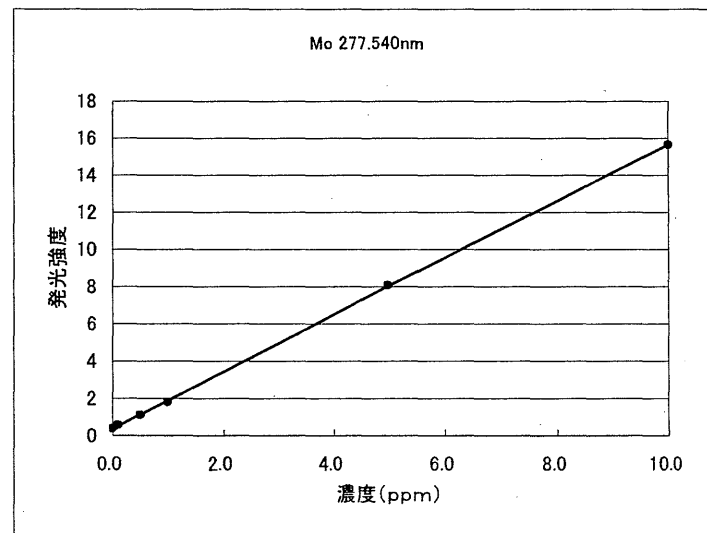
Mo 202.030 nm		
濃度 (ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.1699	0.021934141
0.1	0.5699	0.144834217
0.5	1.1899	0.335329335
1.0	3.429	1.023293238
5.0	16.86	5.149970552
10.0	32.4	9.924638518
傾き		0.307250191
切片		-0.030267667
決定係数 $r^2$		0.999274016
試料名	発光強度	濃度 (ppm)
ホット試料	Over	Over
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	0.5499	0.139



Mo 281.615 nm		
濃度 (ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.1899	-0.029079881
0.1	0.3399	0.080948931
0.5	0.8999	0.491723165
1.0	1.519	0.945848750
5.0	7.349	5.222301930
10.0	13.71	9.888257106
傾き		0.733525417
切片		-0.168376358
決定係数 $r^2$		0.999177003
試料名	発光強度	濃度 (ppm)
ホット試料	Over	Over
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



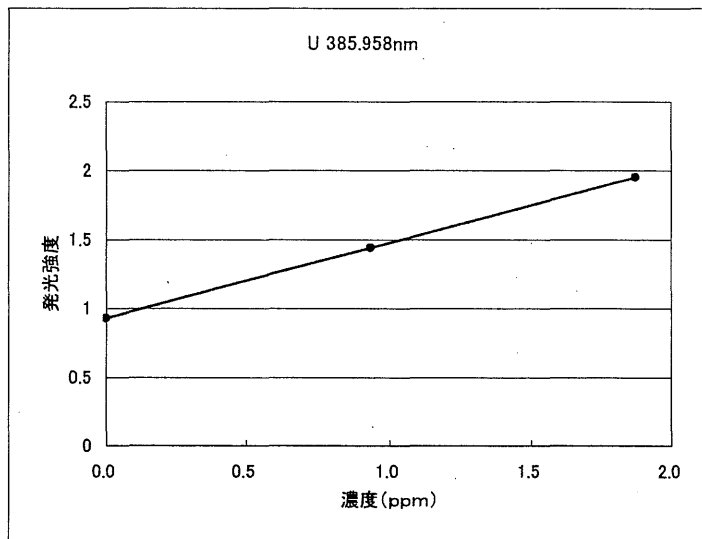
Mo 277.540 nm		
濃度 (ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.3599	0.014428519
0.1	0.5499	0.138455158
0.5	1.079	0.483836708
1.0	1.779	0.940776955
5.0	8.049	5.033656030
10.0	15.64	9.988846630
傾き		0.652771782
切片		-0.220504045
決定係数 $r^2$		0.999916439
試料名	発光強度	濃度 (ppm)
ホット試料	Over	Over
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	0.4899	0.120



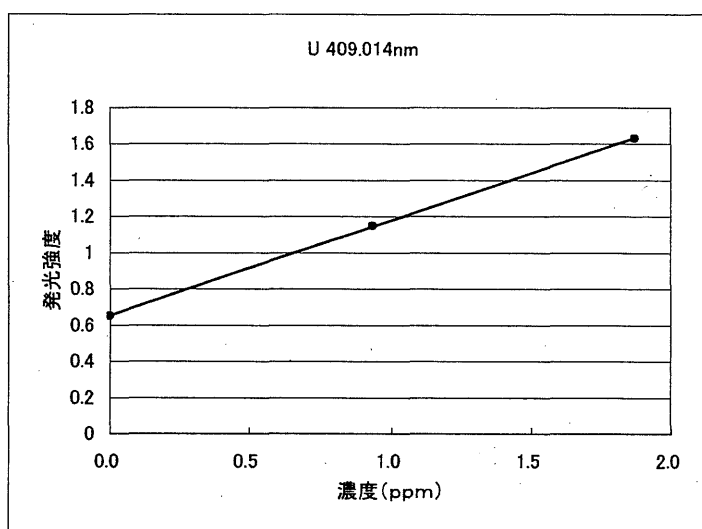
コールド試料1：インコネル酸洗溶液、 コールド試料2：SUS酸洗溶液  
 ND：検出限界以下、 ×：波長干渉（妨害）による分析不可、 Over：オーバースケール

表-10 U 検量線及び試料分析結果

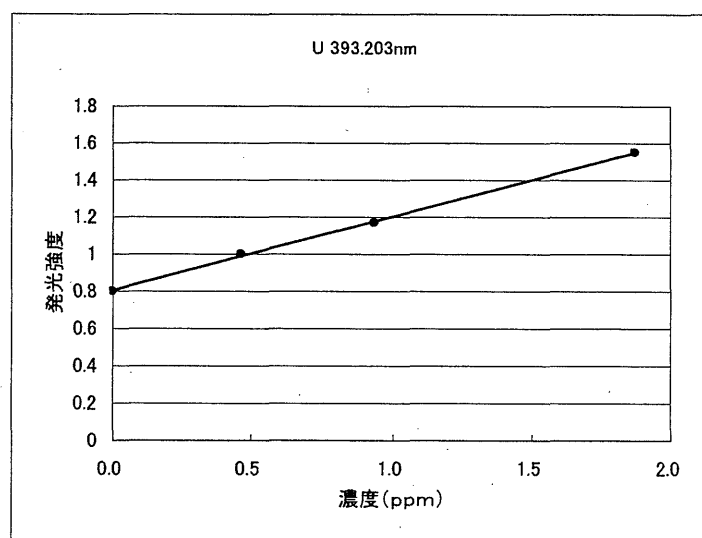
U 367.007 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.9299	0.000275486
0.4675		-1.706046316
0.935	1.439	0.934449514
1.87	1.949	1.870275000
傾き		1.834951932
切片		-1.706046316
決定係数 $r^2$		0.999999740
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	×	×
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND



U 409.014 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.6499	-0.005960542
0.4675		-1.247058343
0.935	1.149	0.947158264
1.87	1.629	1.863802278
傾き		1.909675028
切片		-1.247058343
決定係数 $r^2$		0.999873166
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	2.4590	2.806
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND

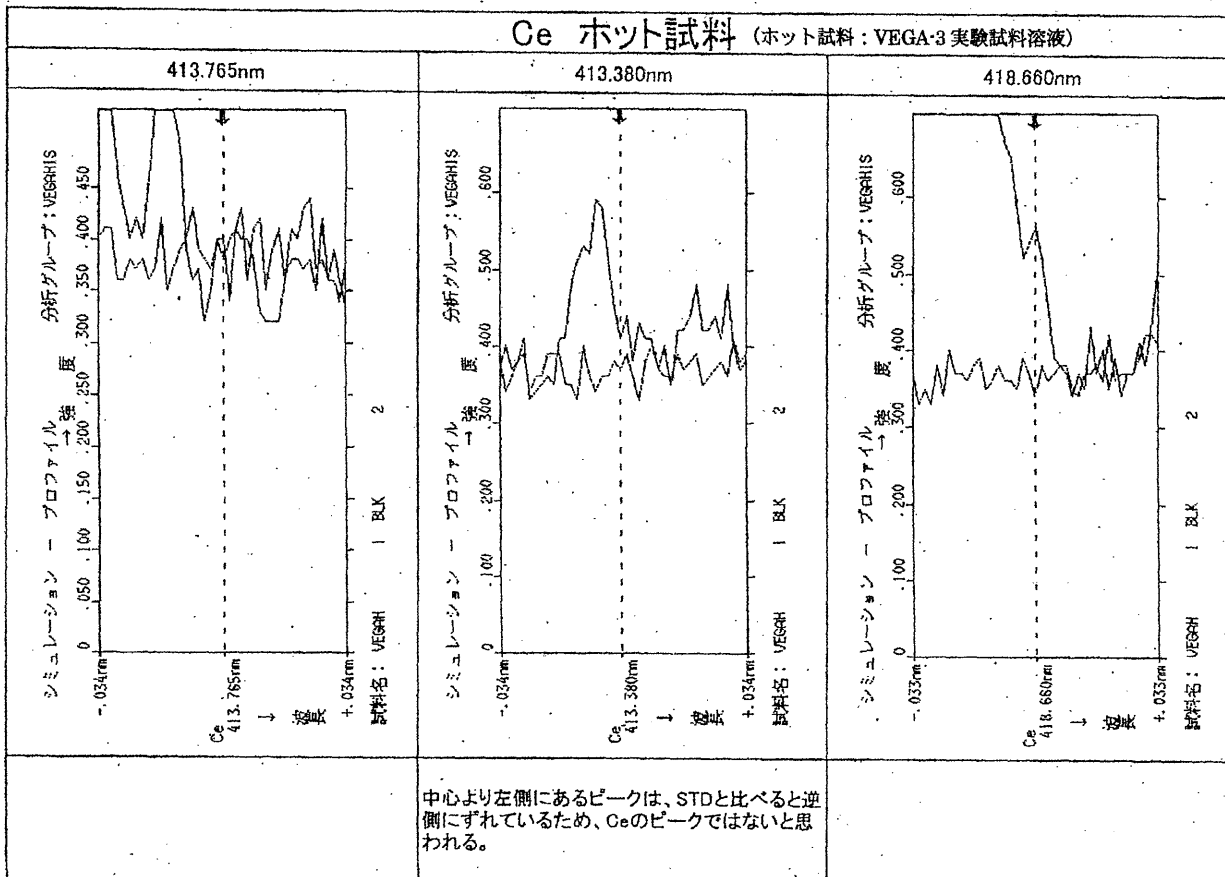
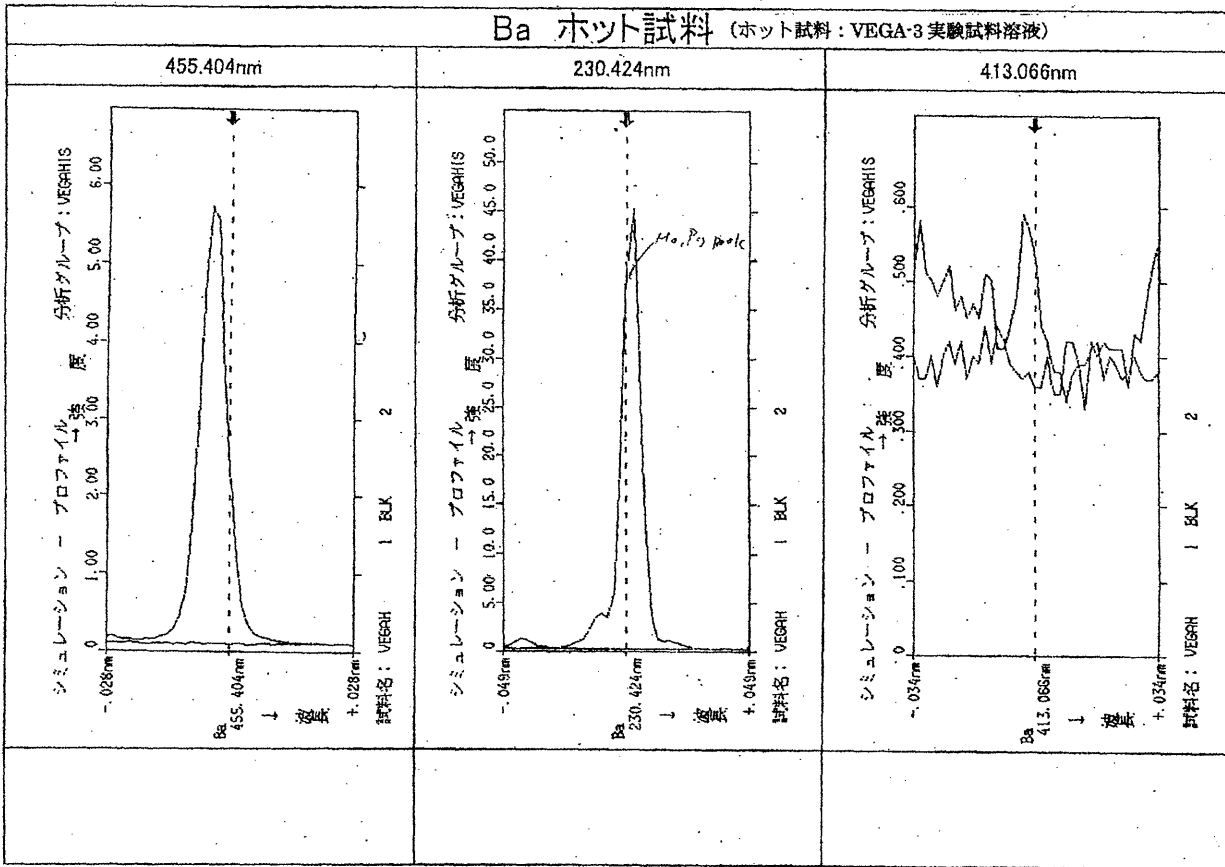


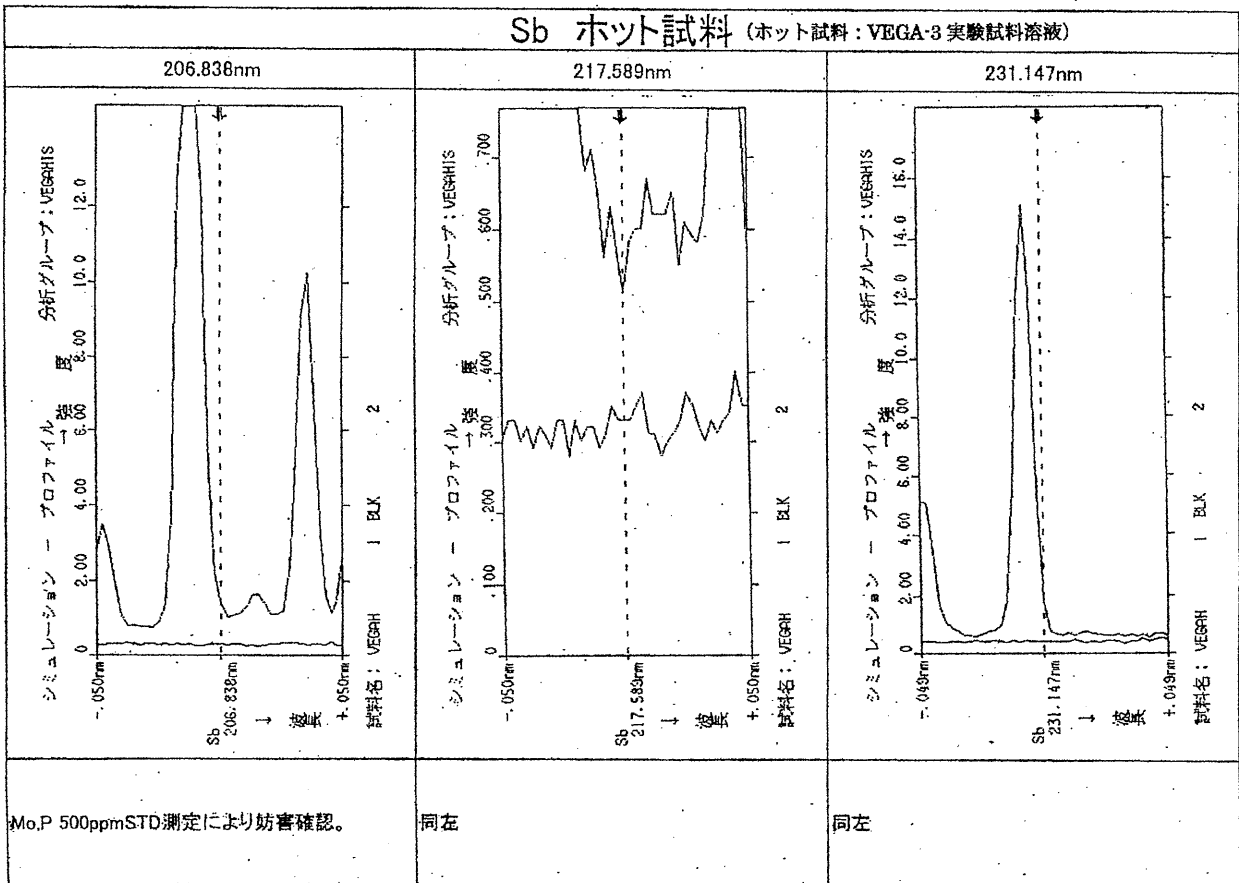
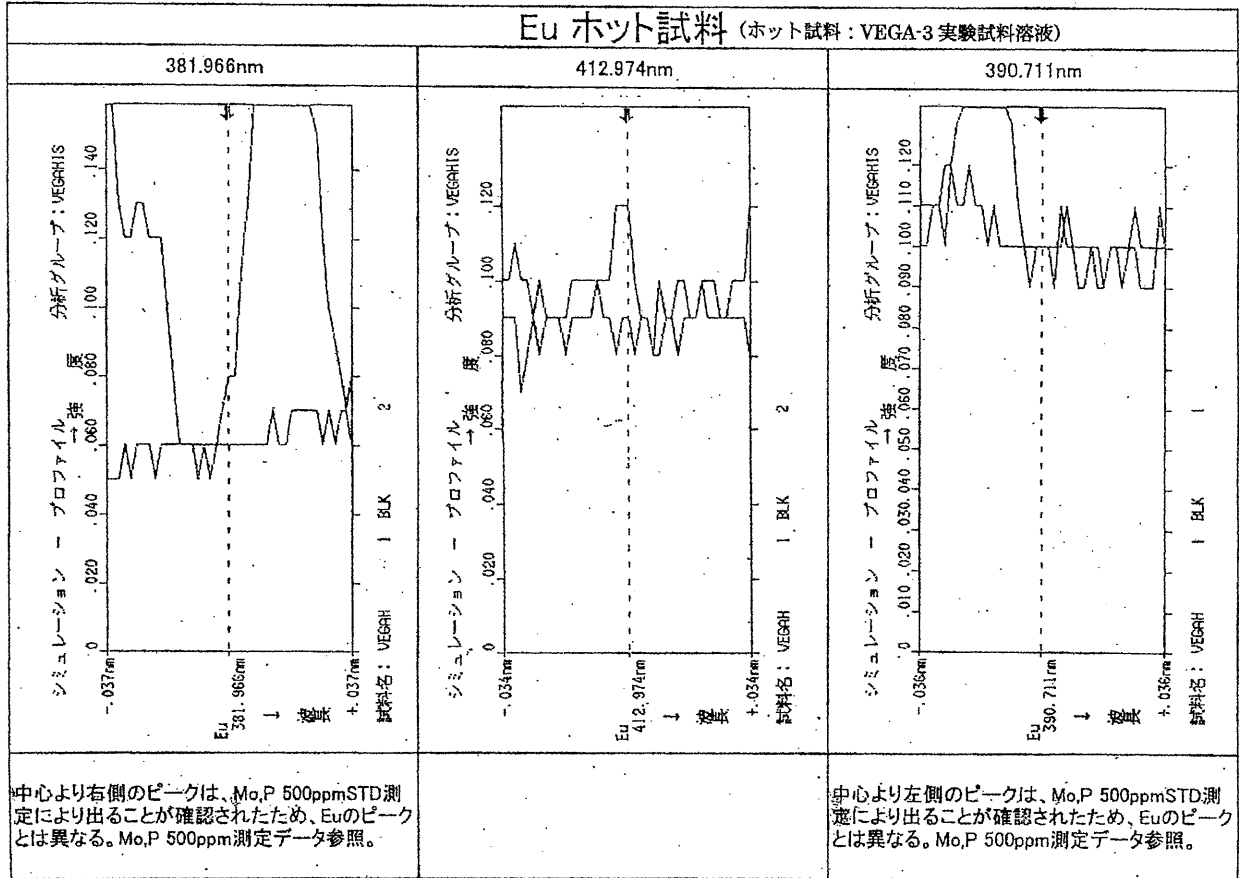
U 393.203 nm		
濃度(ppm)	発光強度	回帰直線
0.0	0.7999	-0.008741535
0.4675	0.999	0.491157128
0.935	1.169	0.917991747
1.87	1.549	1.872092661
傾き		2.510791878
切片		-2.017123959
決定係数 $r^2$		0.999513831
試料名	発光強度	濃度(ppm)
ホット試料	1.6190	1.265
コールド試料1	ND	ND
コールド試料2	ND	ND

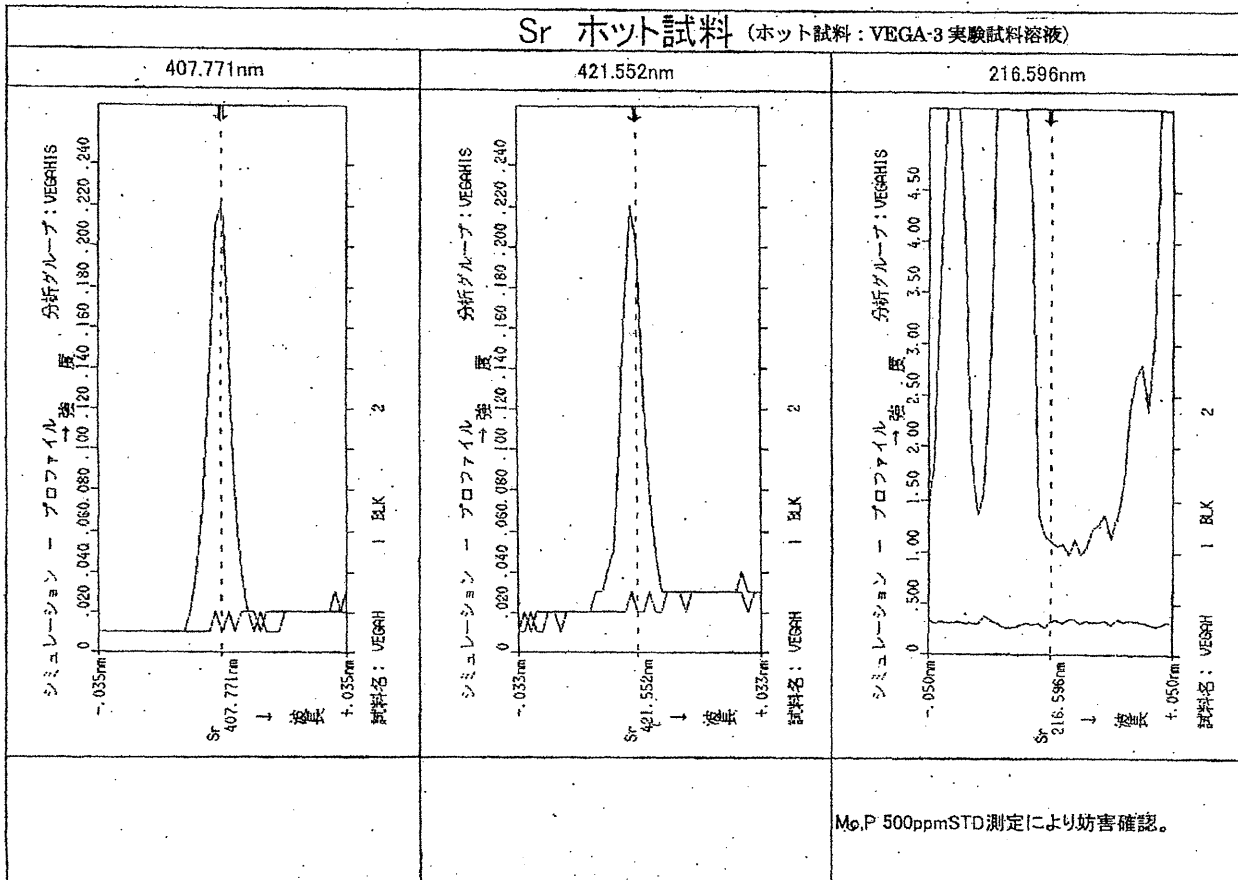
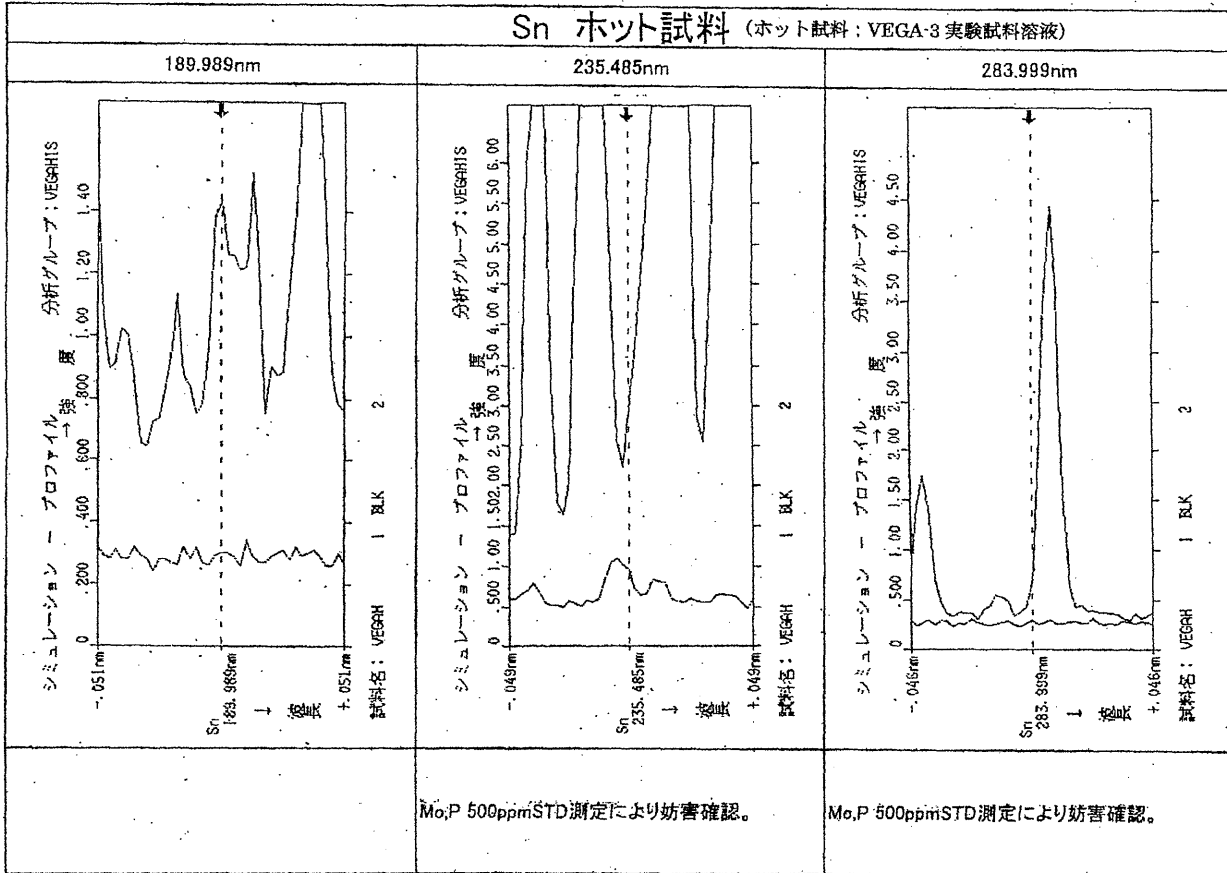


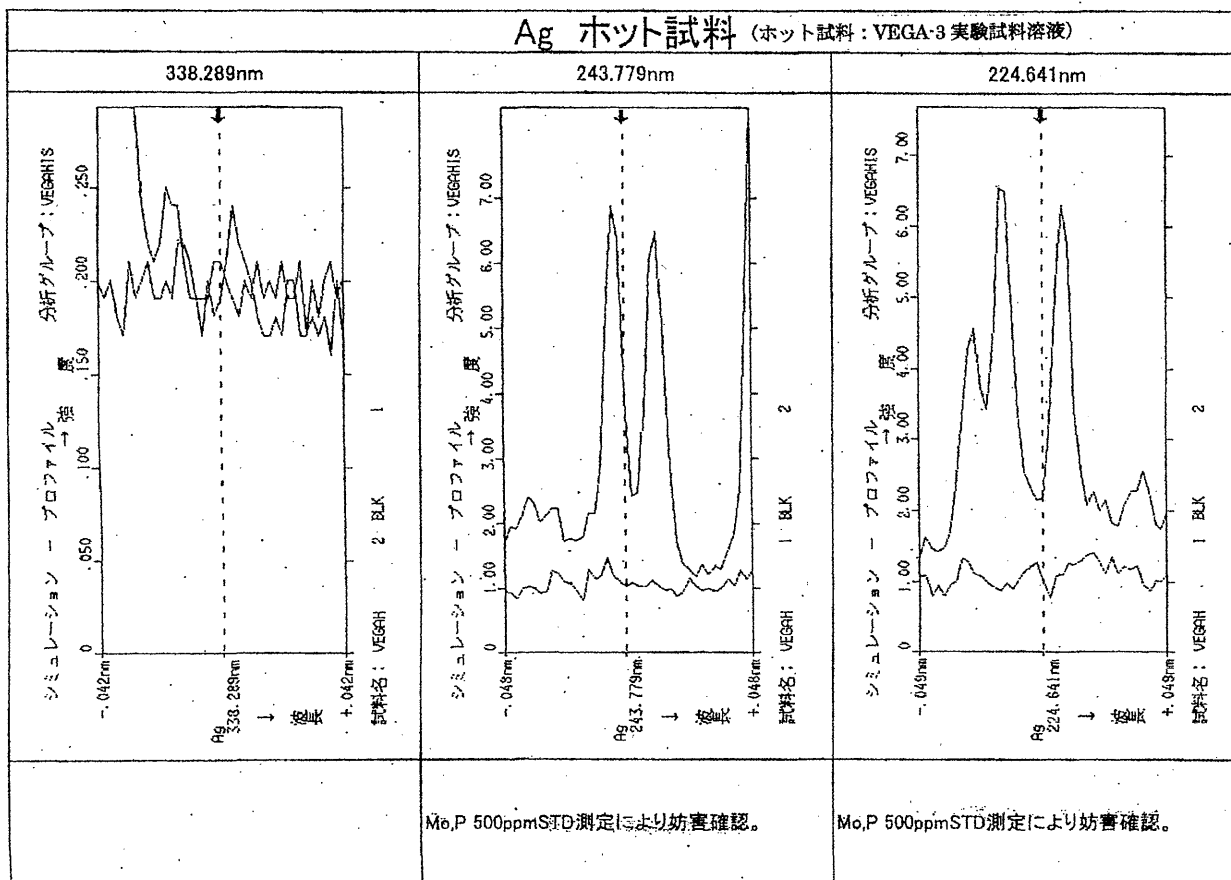
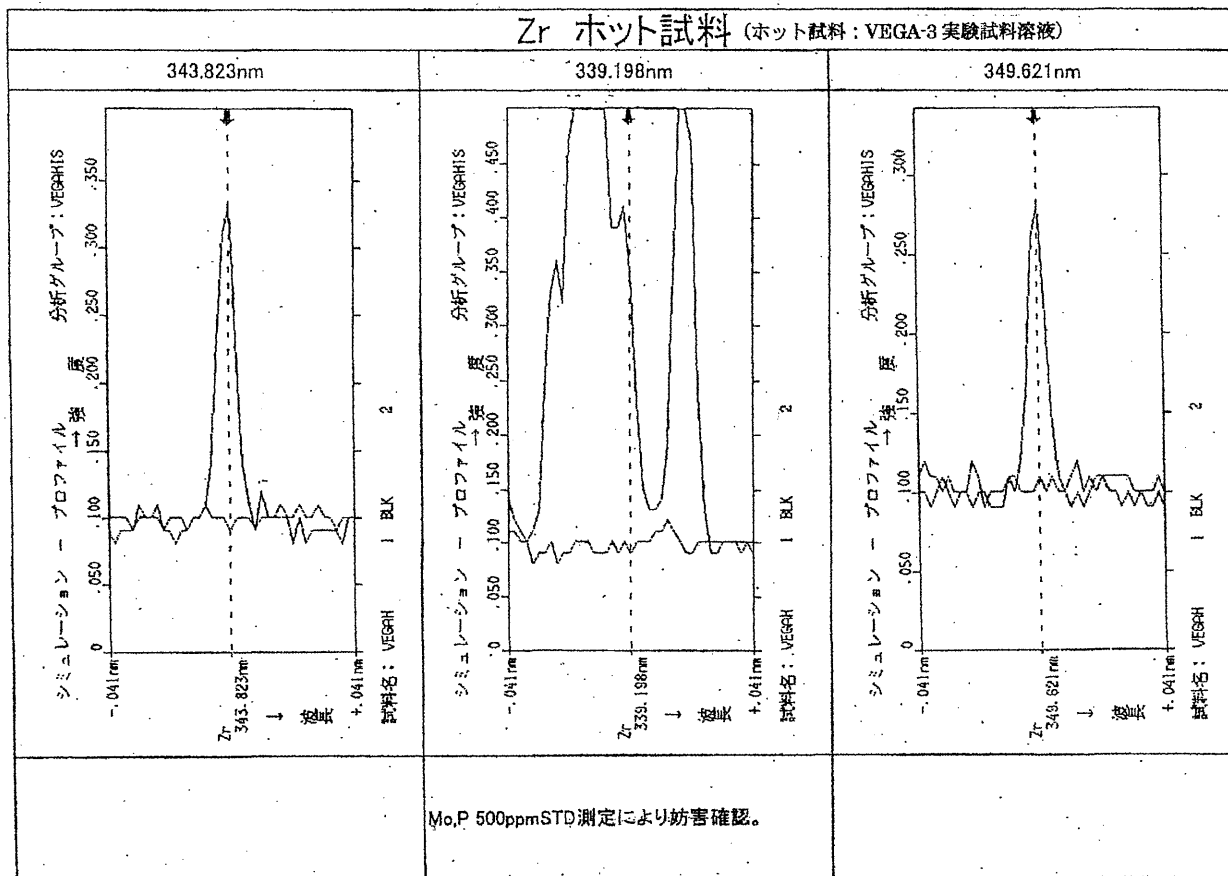
コールド試料1：インコネル酸洗溶液、 コールド試料2：SUS酸洗溶液  
 ND：検出限界以下、 ×：波長干渉（妨害）による分析不可、 Over：オーバースケール

付録2 ホット試料の発光波形

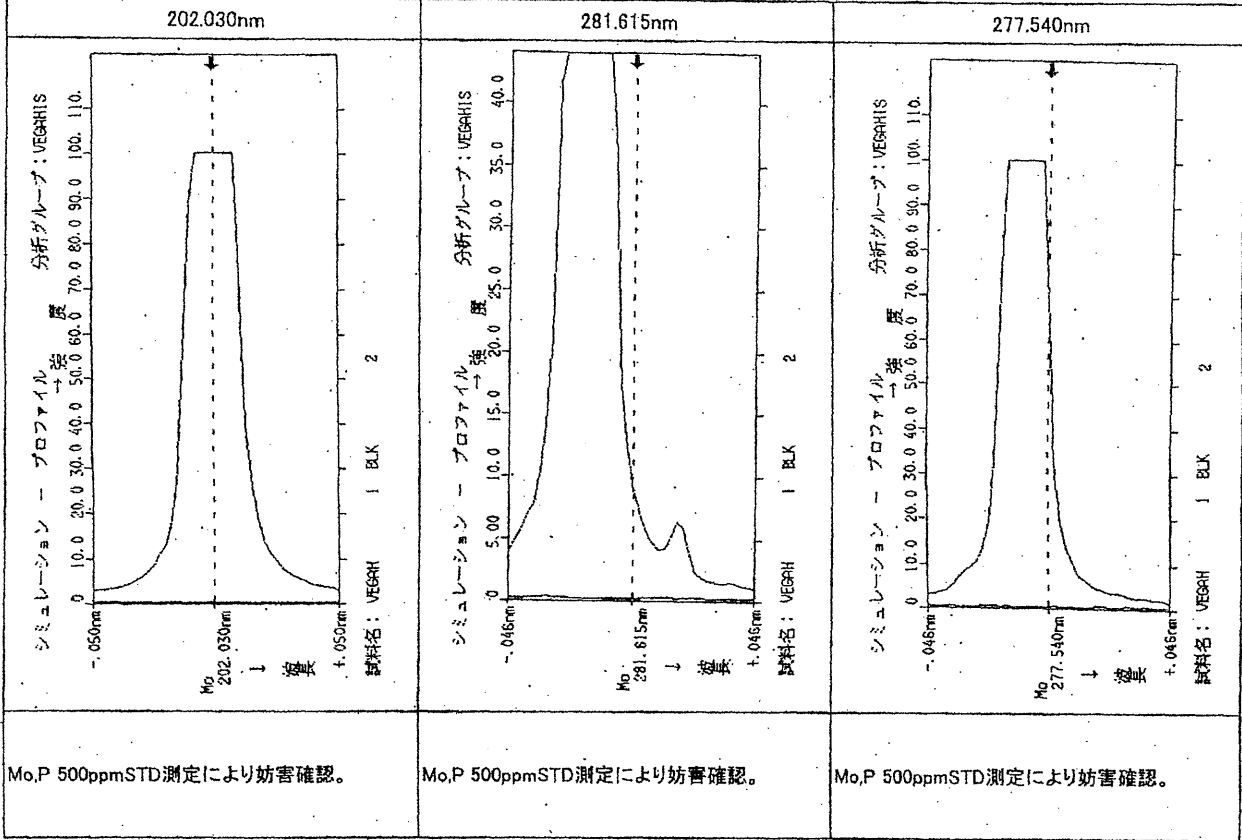




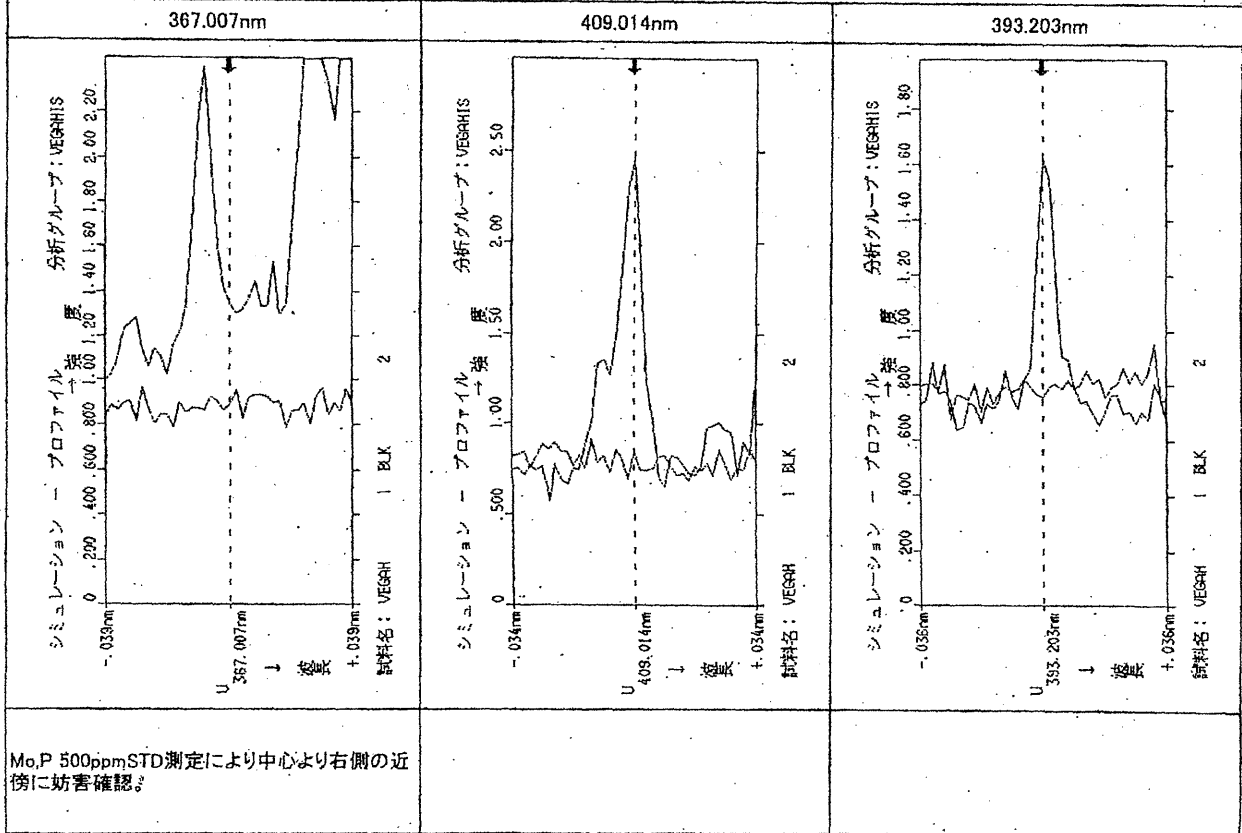




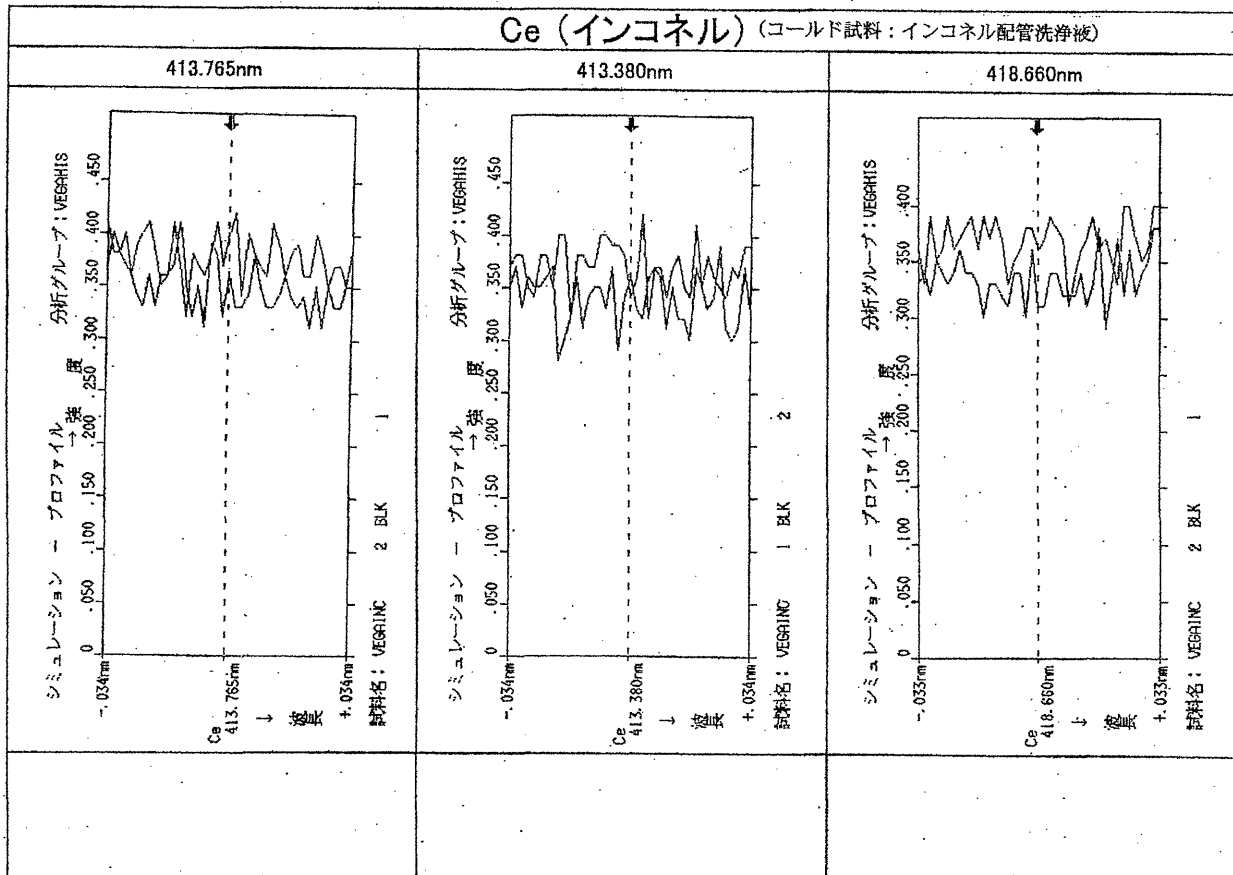
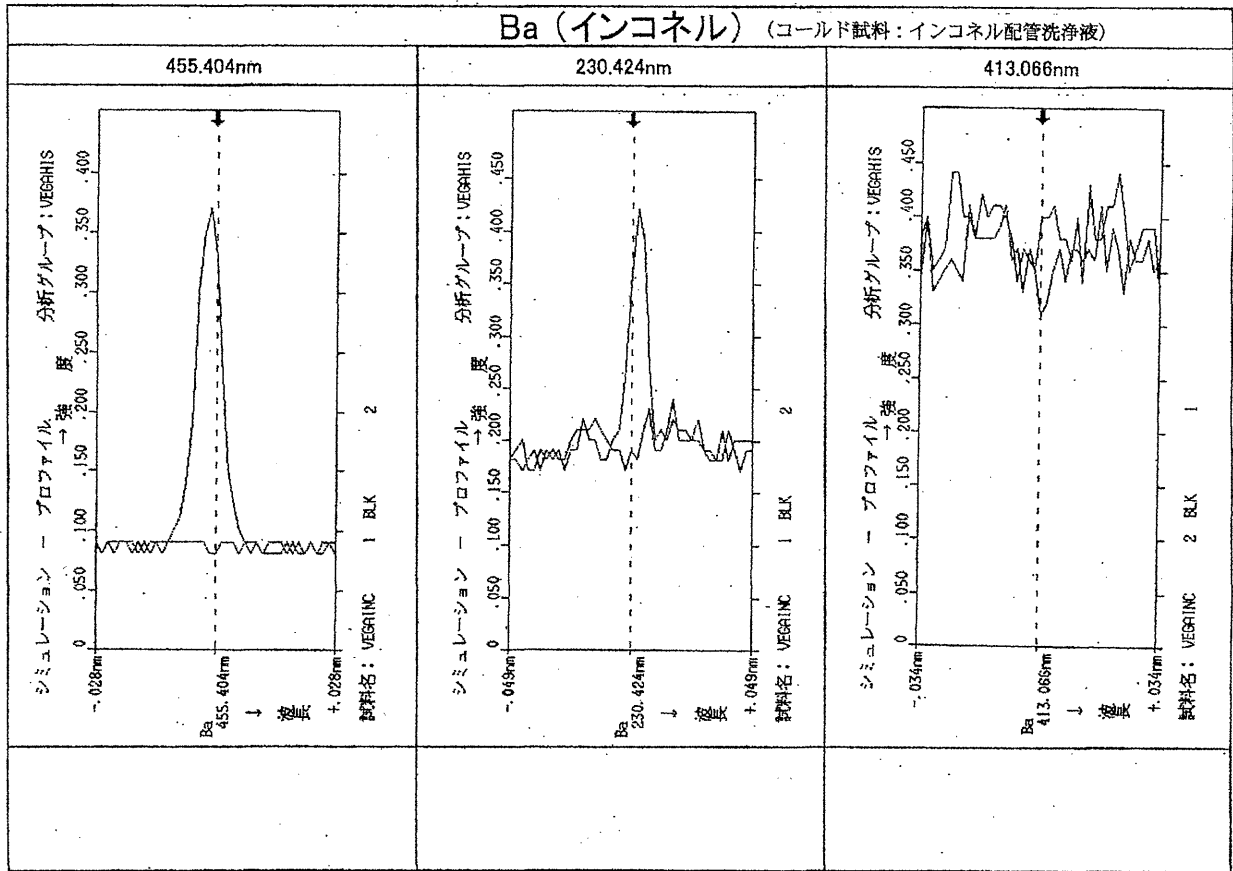
Mo ホット試料 (ホット試料: VEGA-3 実験試料溶液)



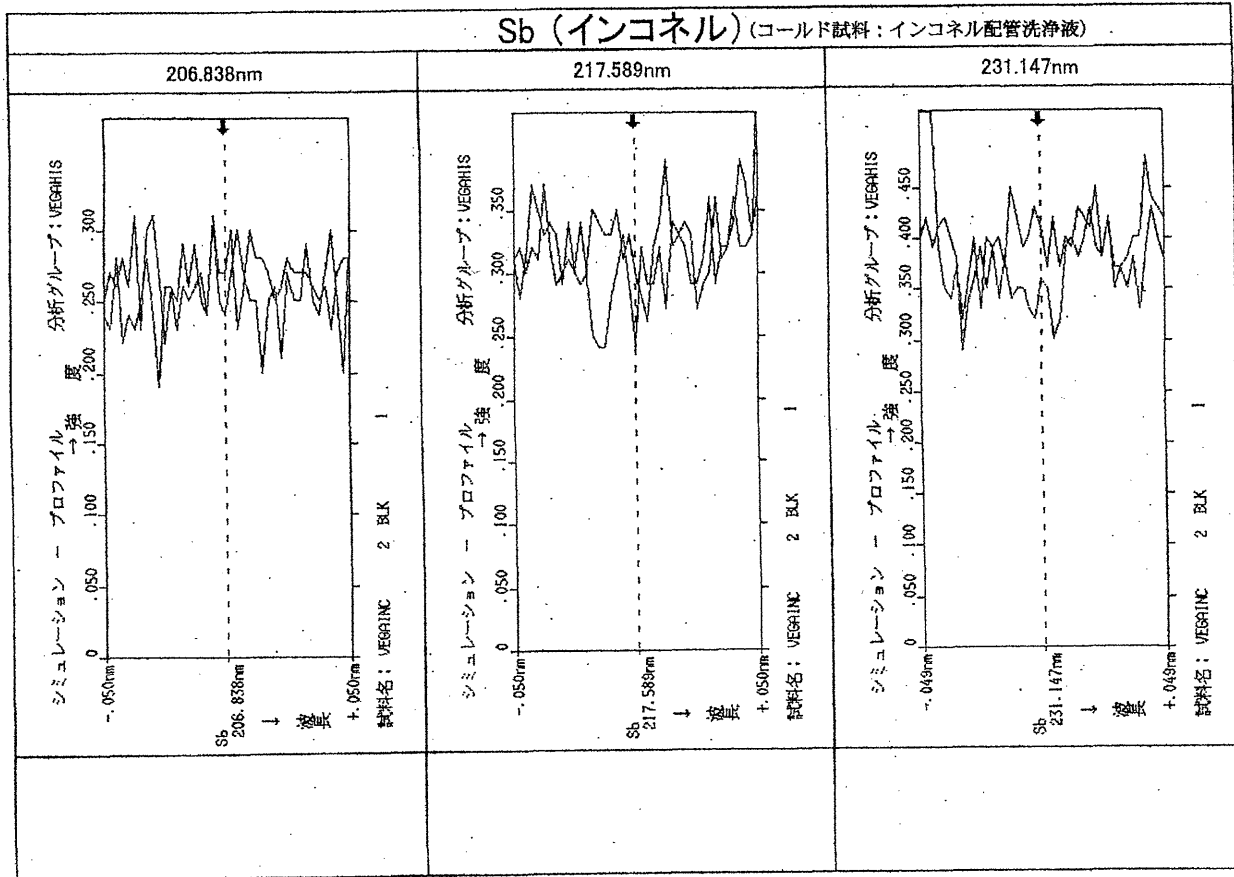
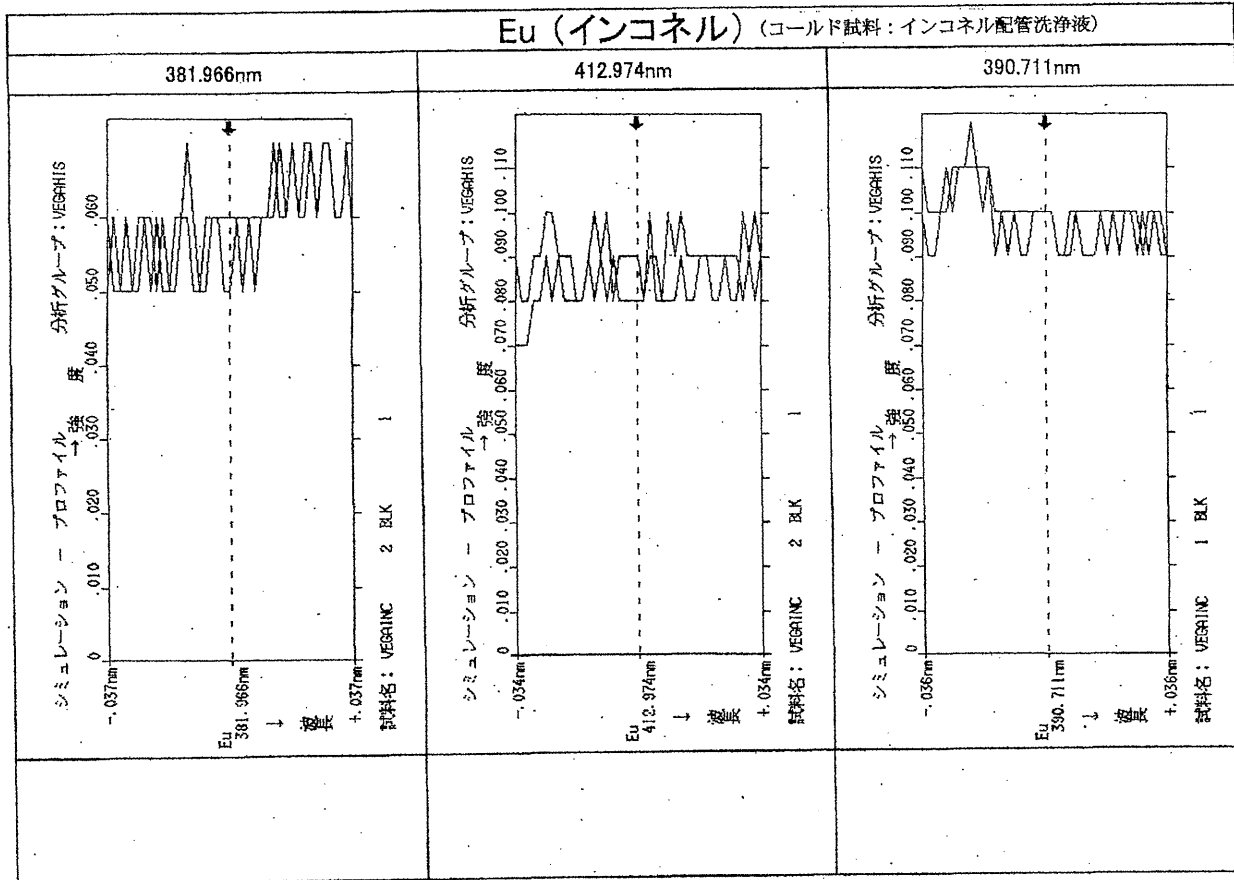
U ホット試料 (ホット試料: VEGA-3 実験試料溶液)

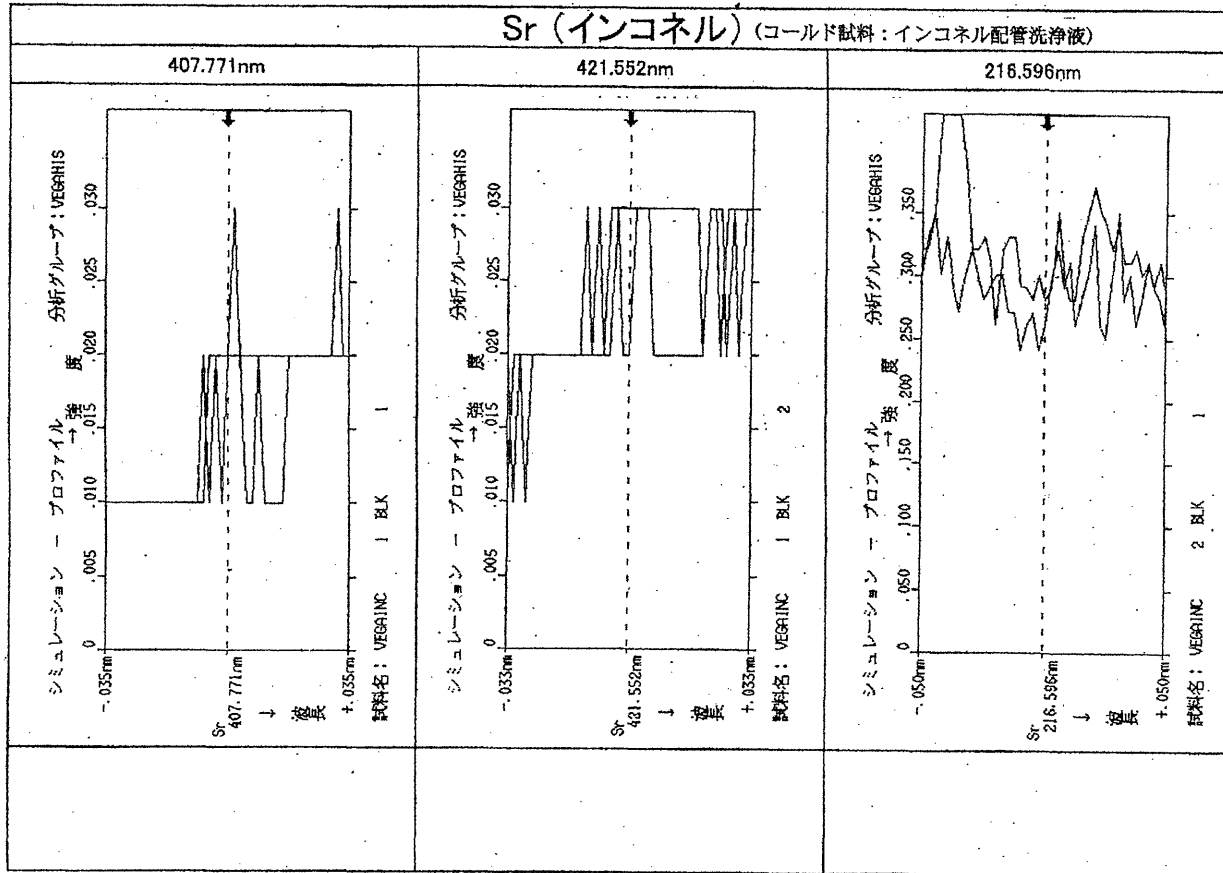
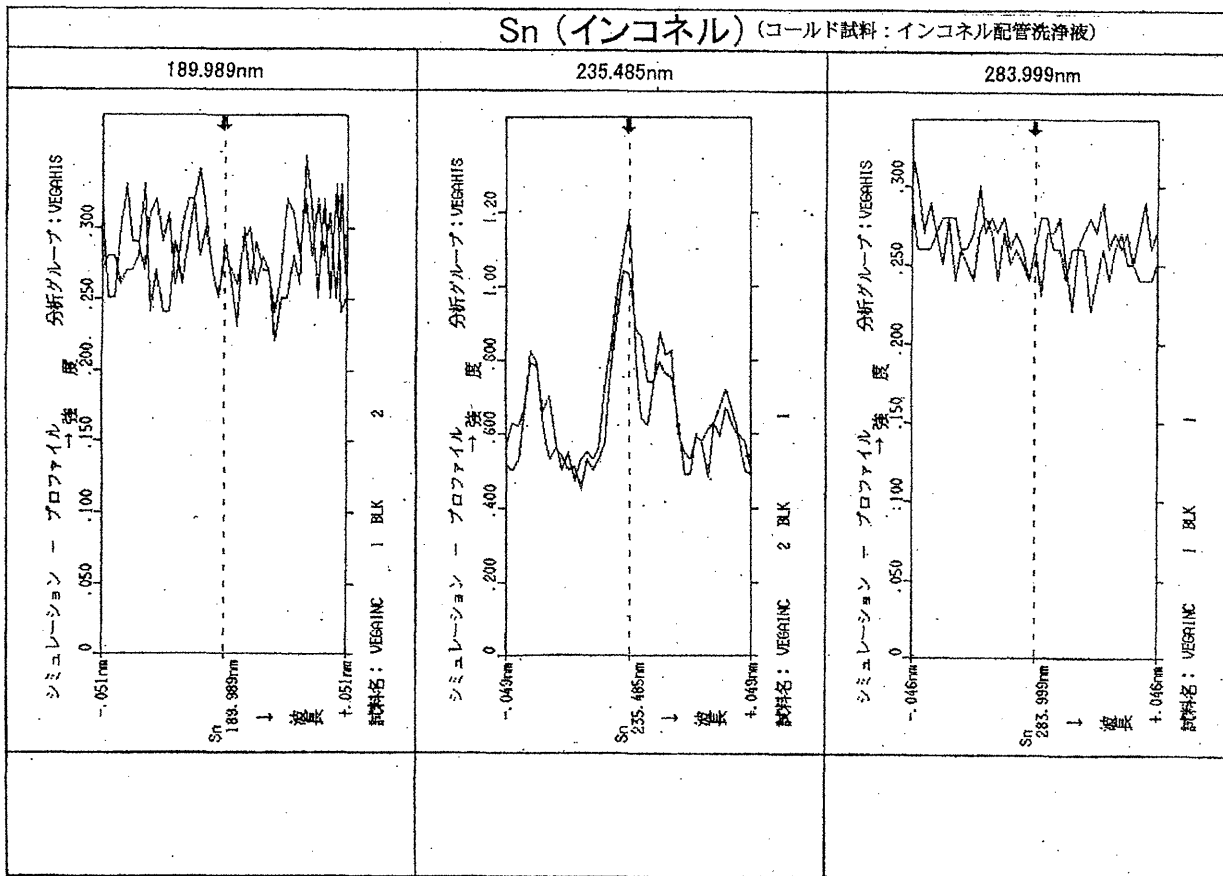


付録3 コールド試料の発光波形

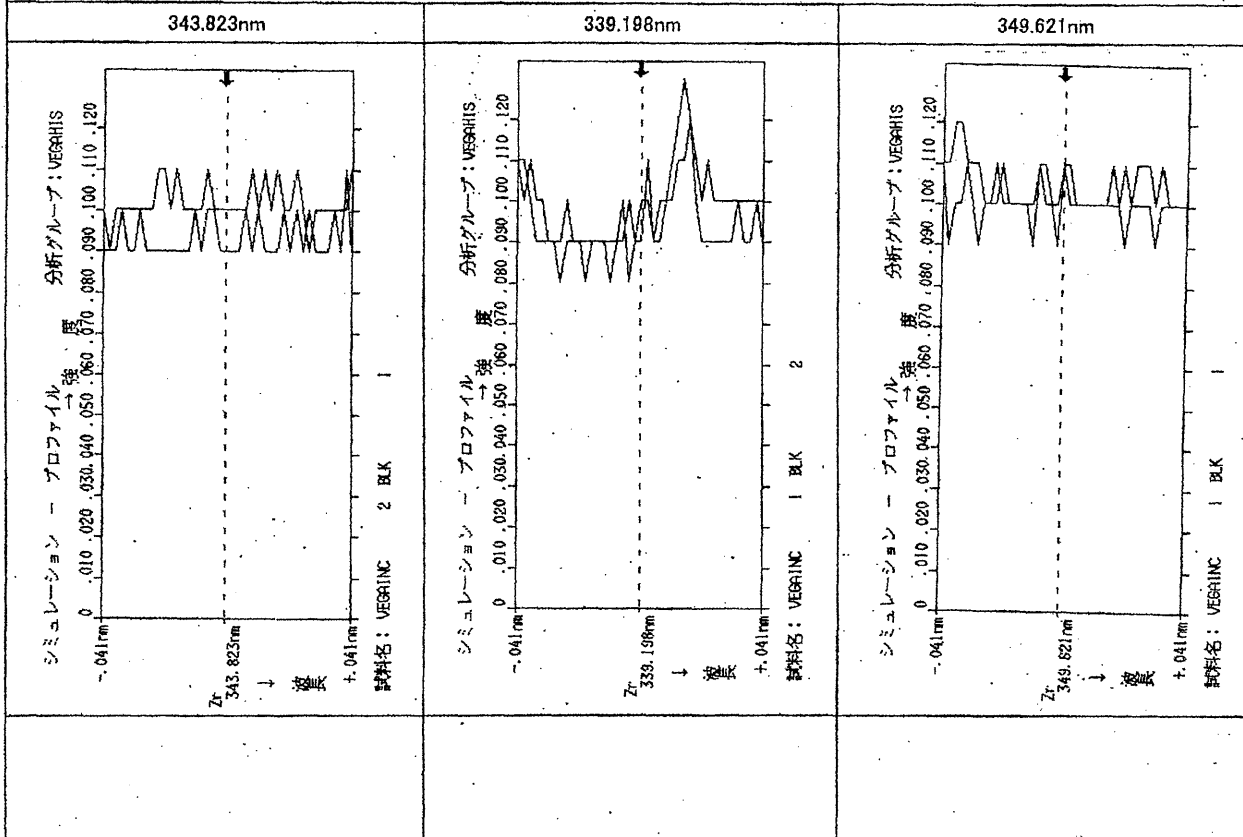




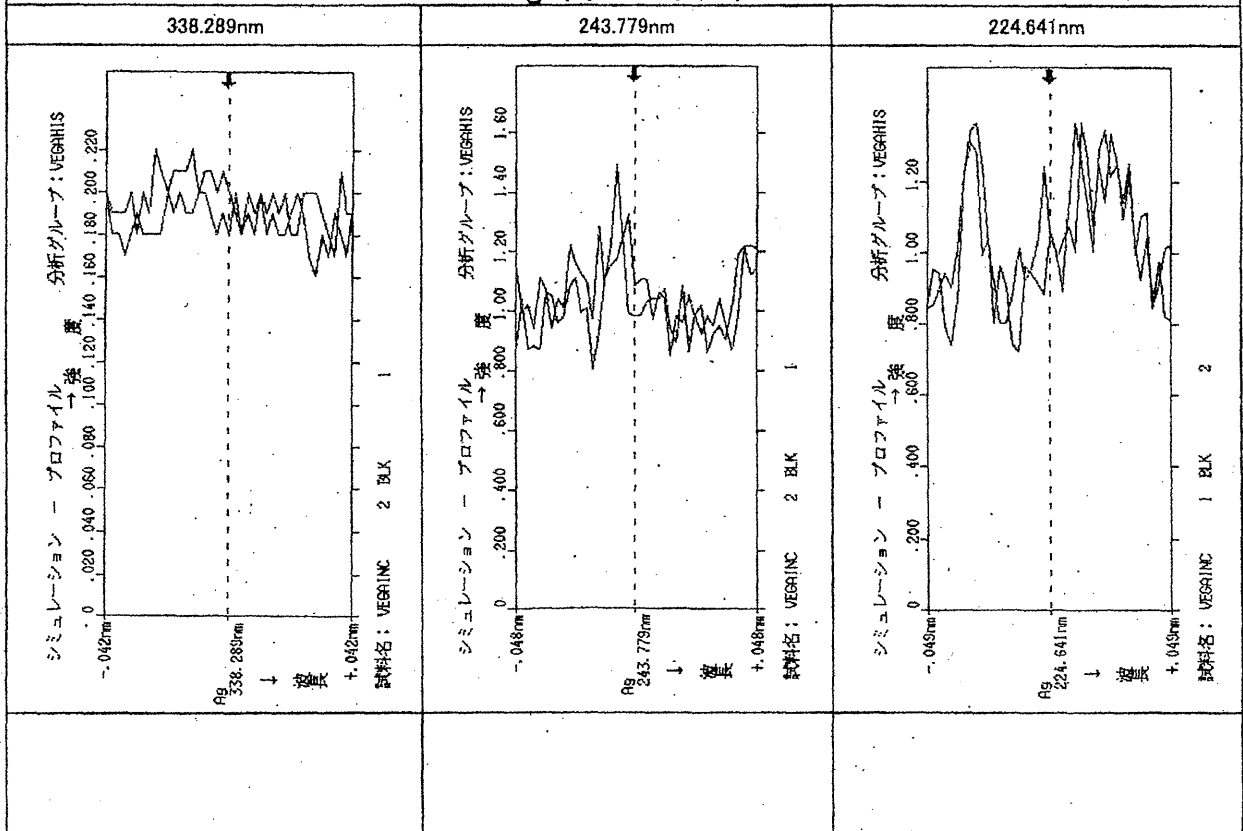


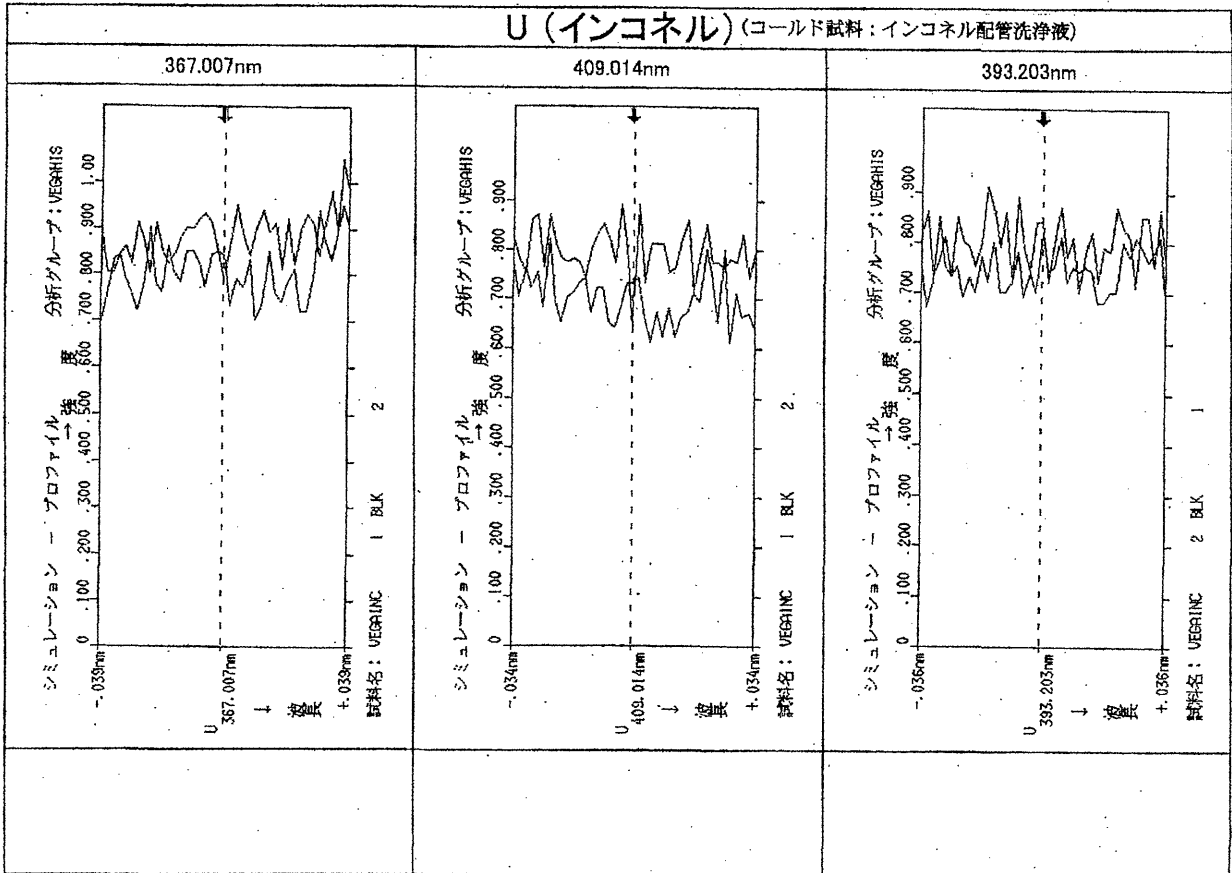
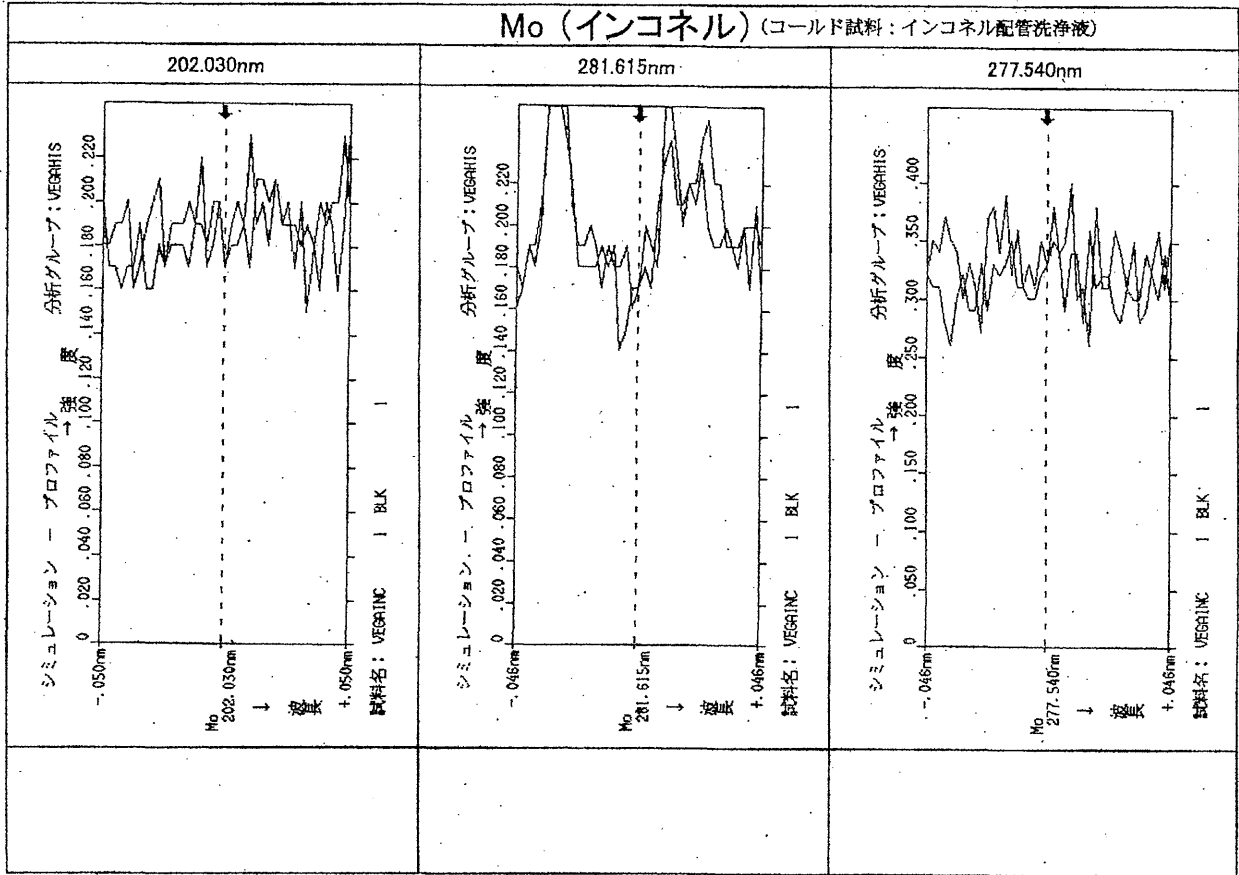


Zr (インコネル) (コールド試料: インコネル配管洗浄液)

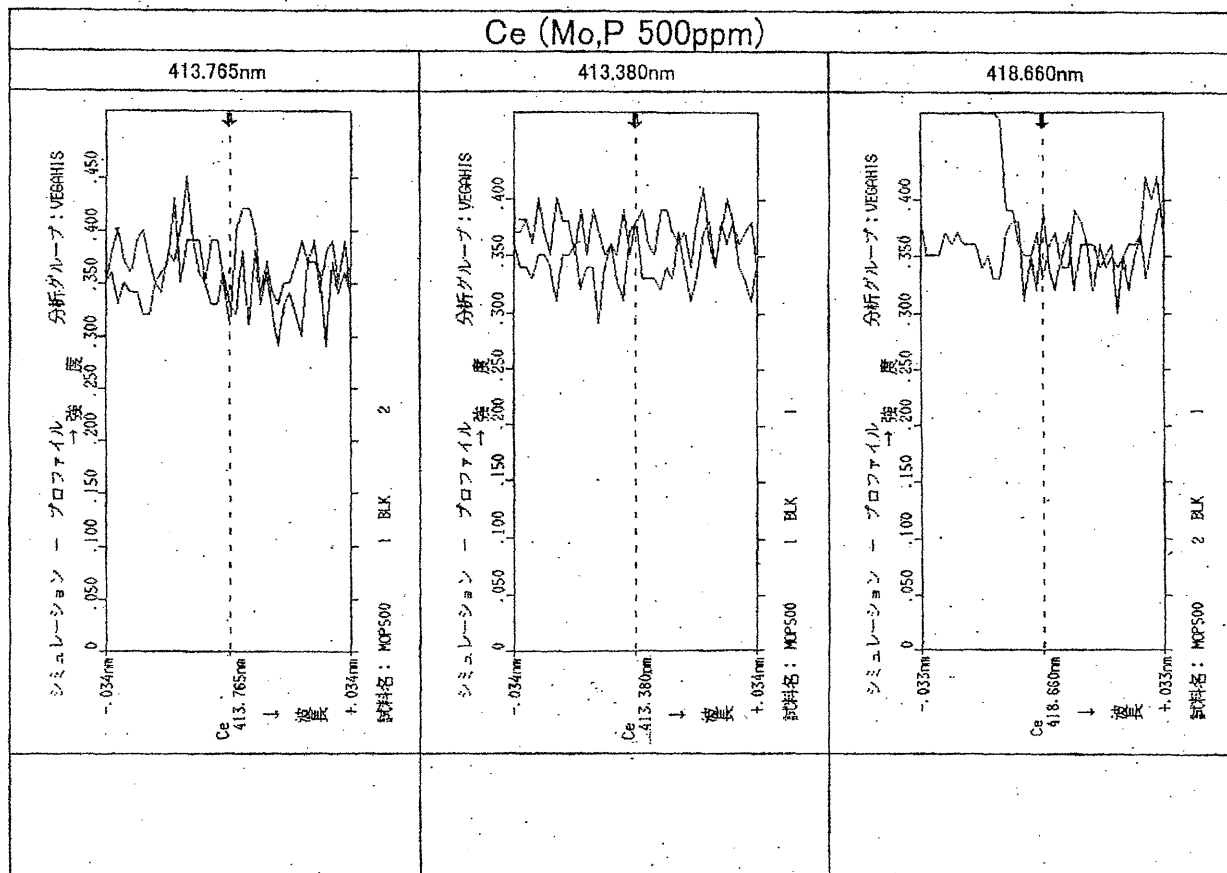
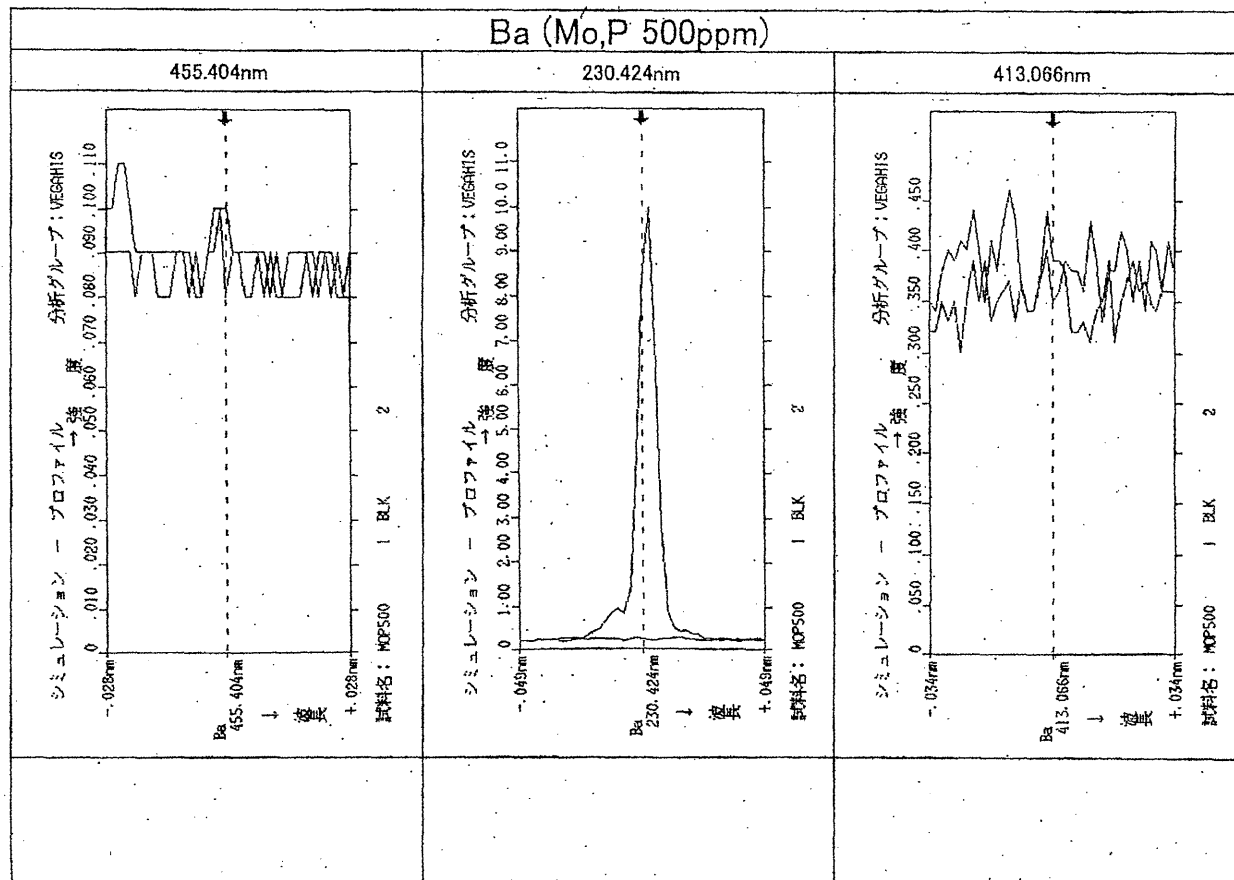


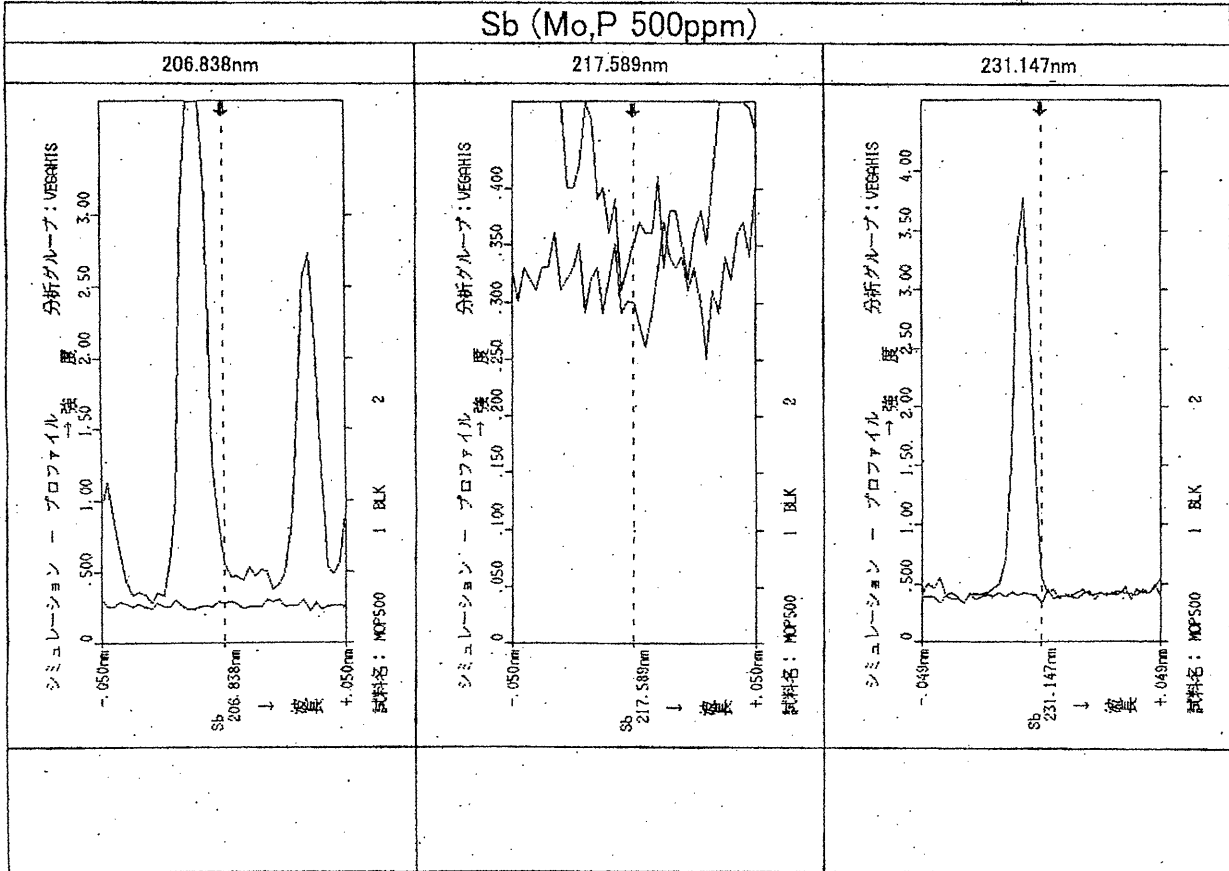
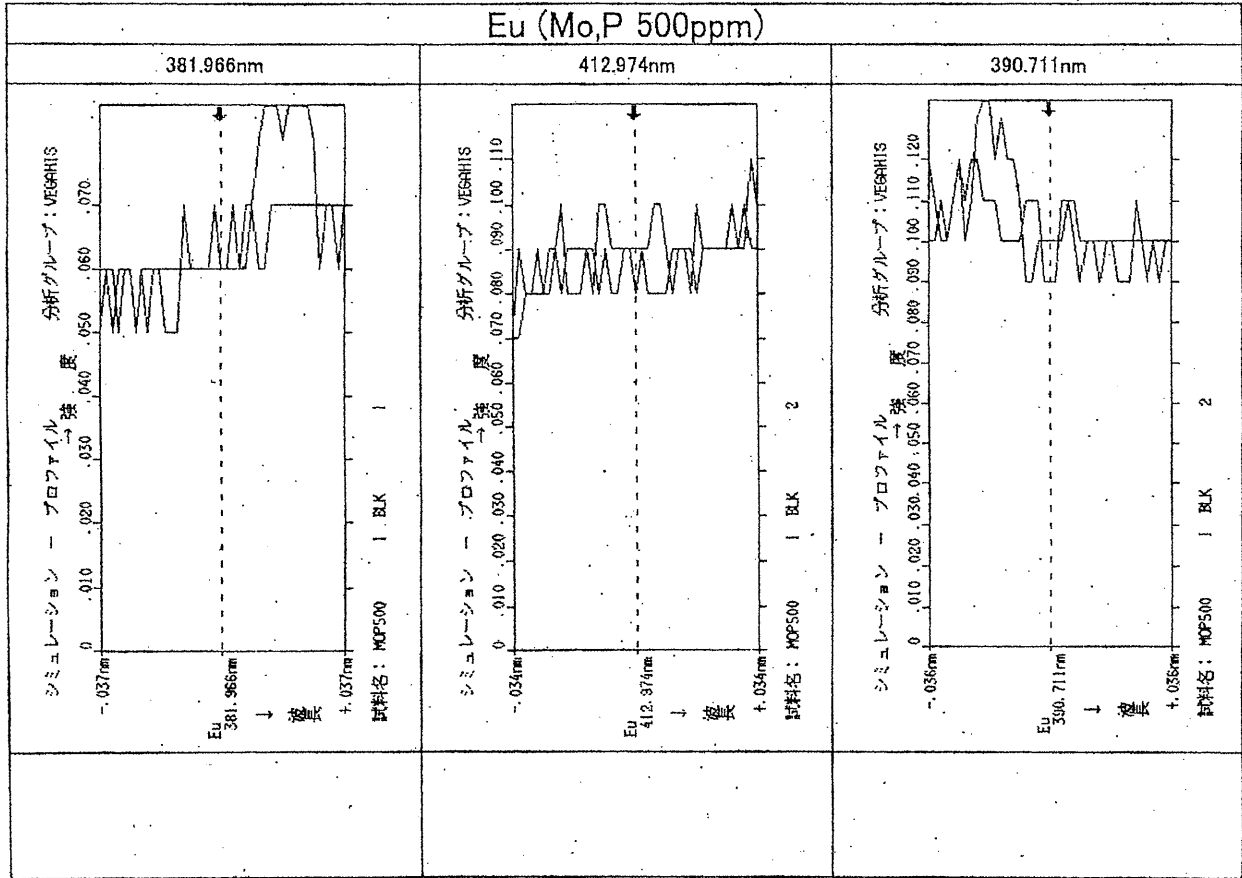
Ag (インコネル) (コールド試料: インコネル配管洗浄液)

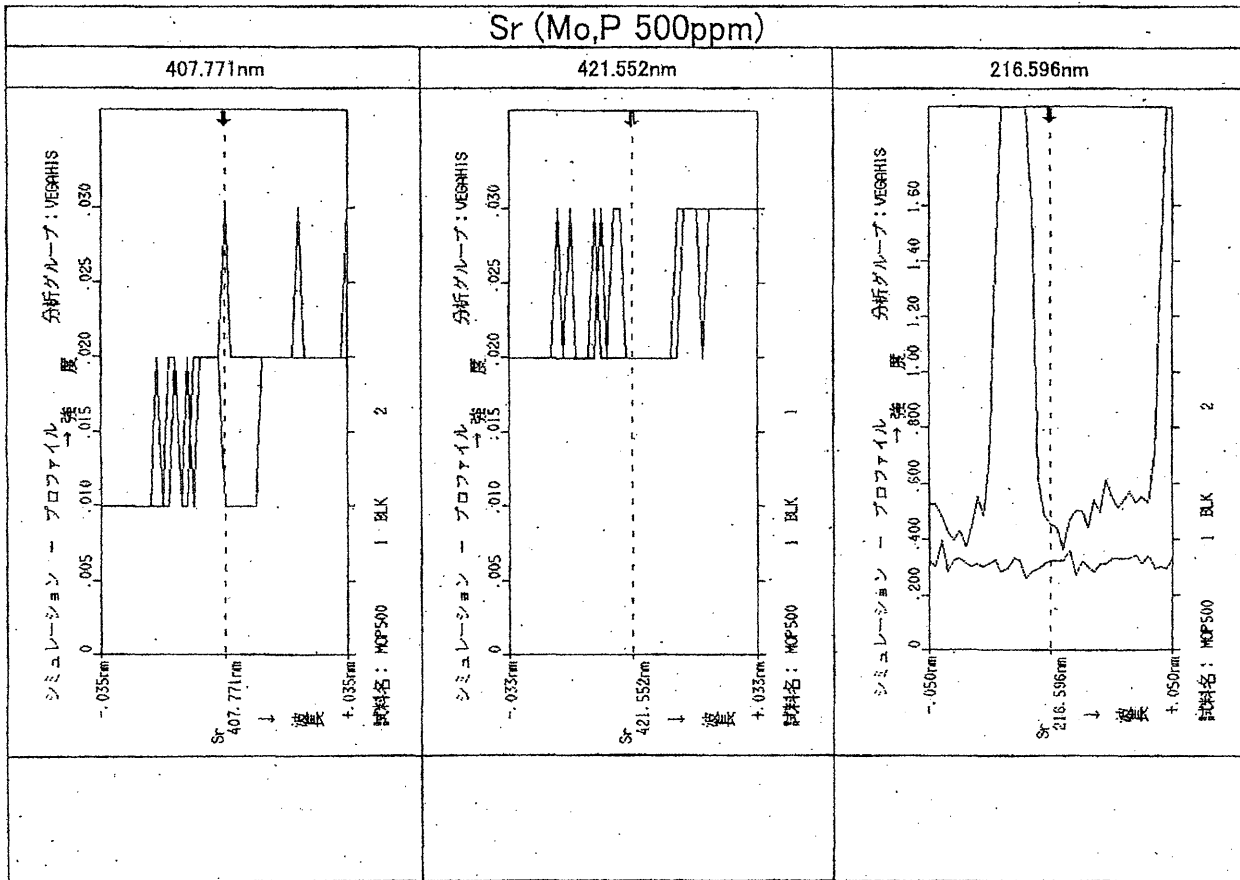
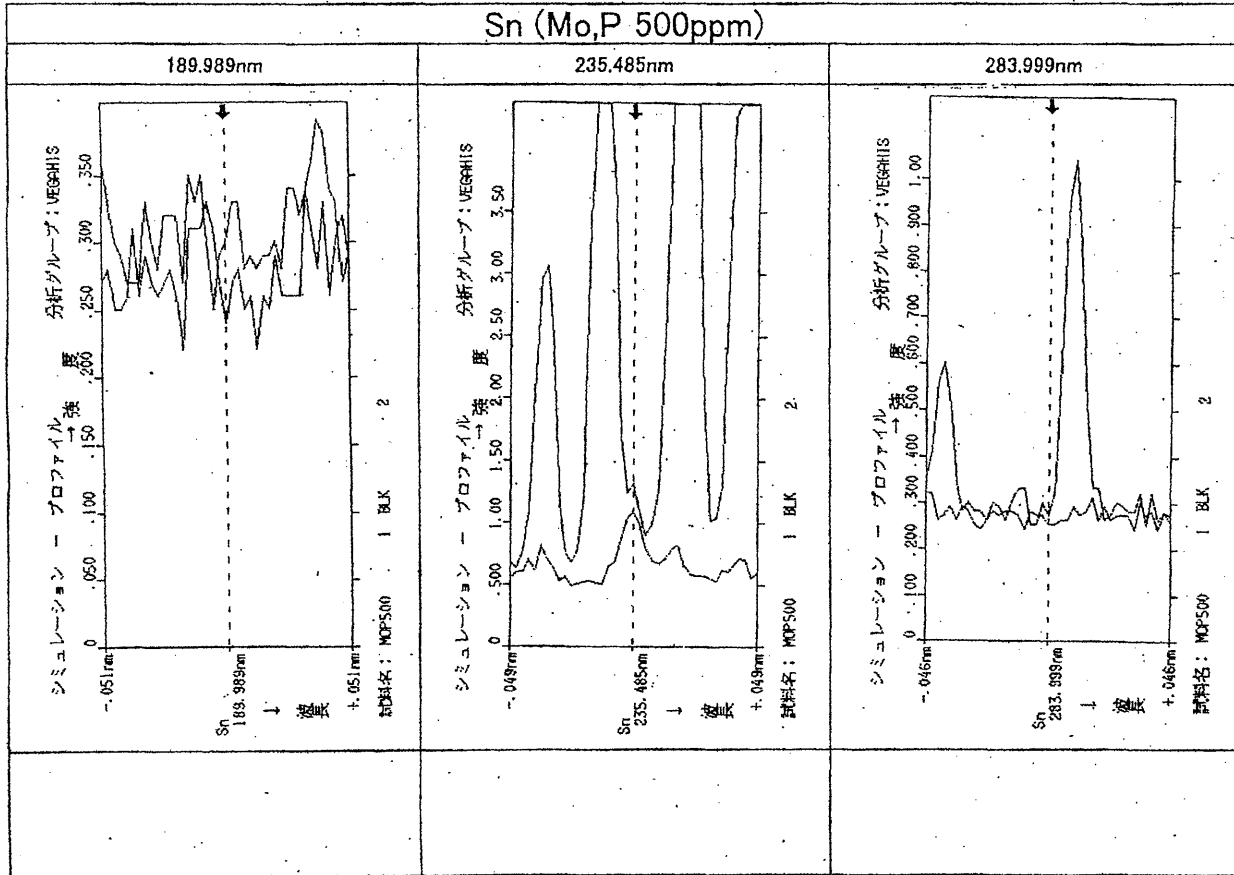


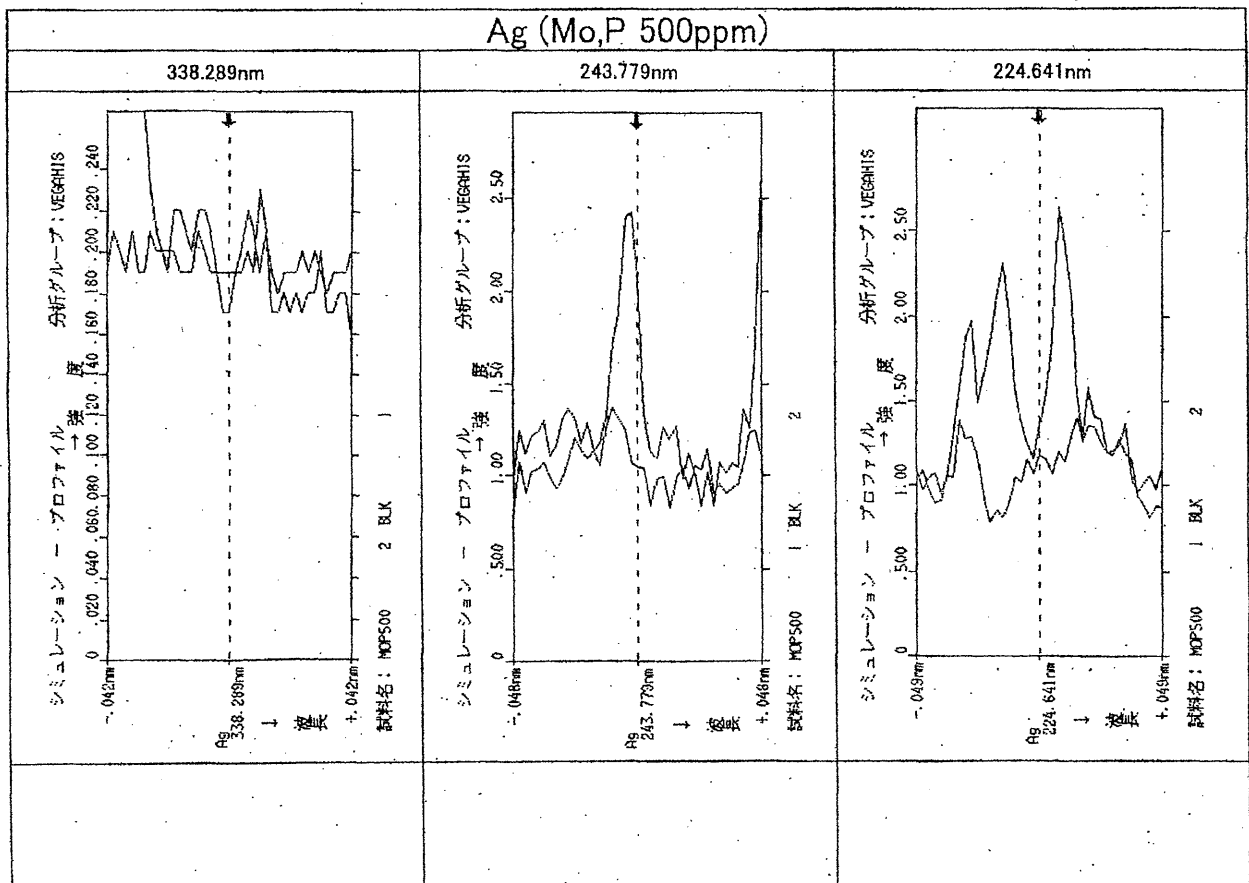
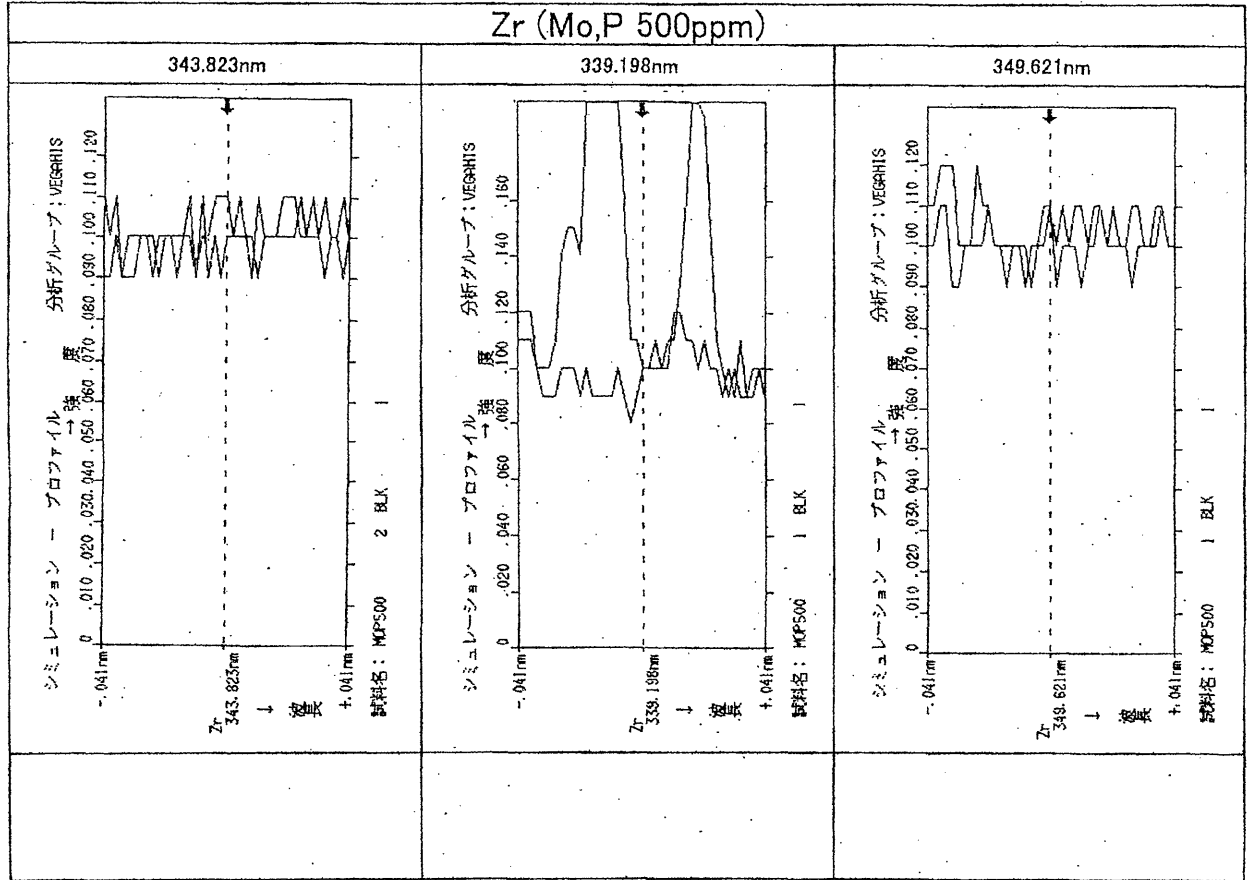


付録4 MoとPの混合溶液の発光波形

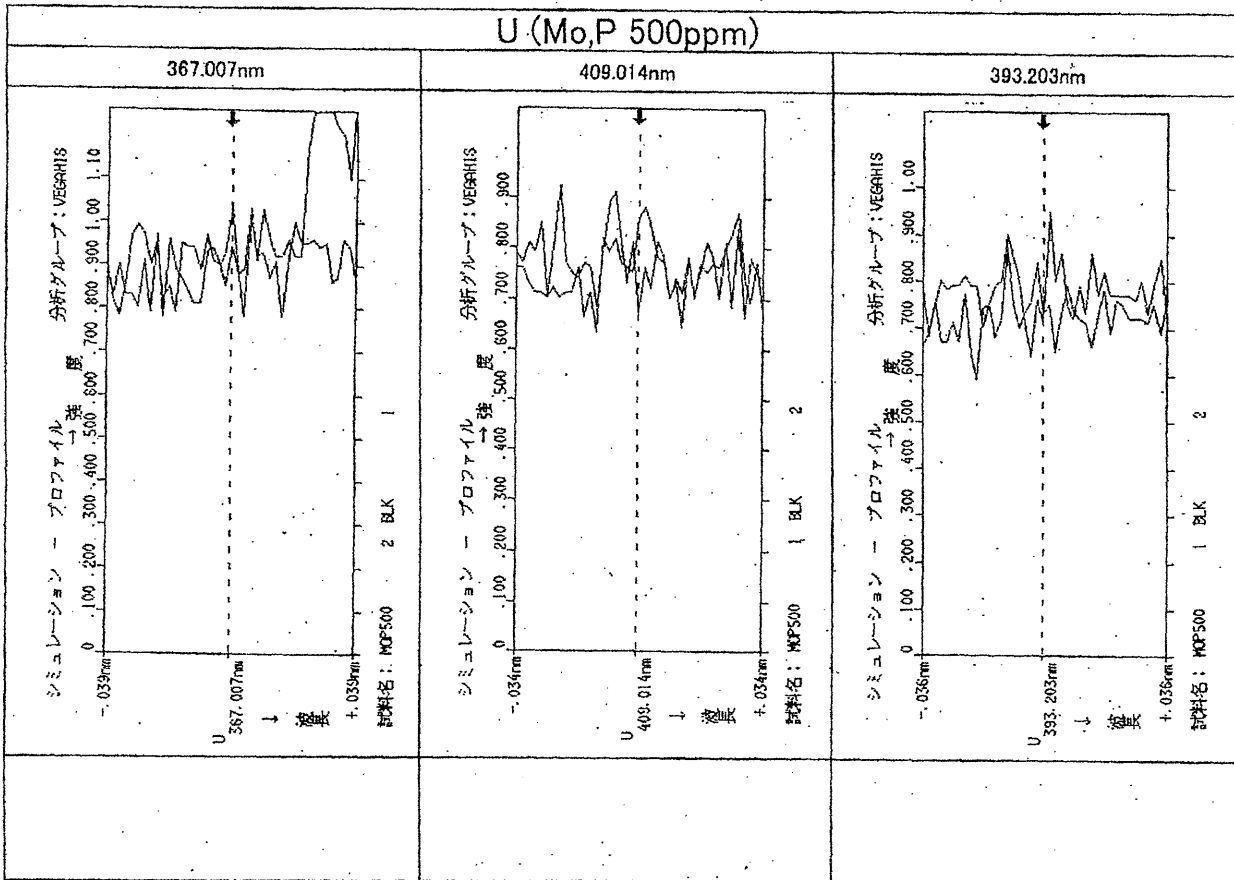
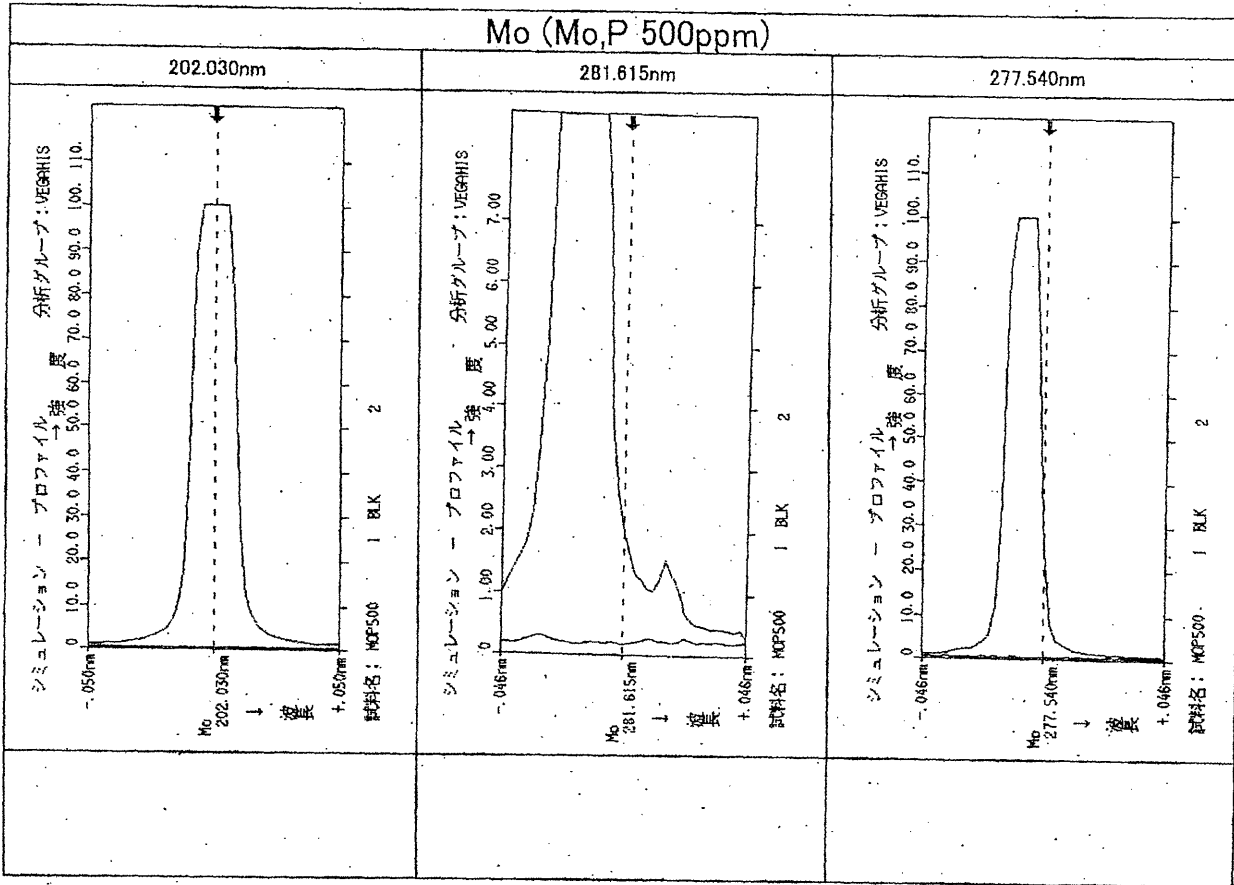






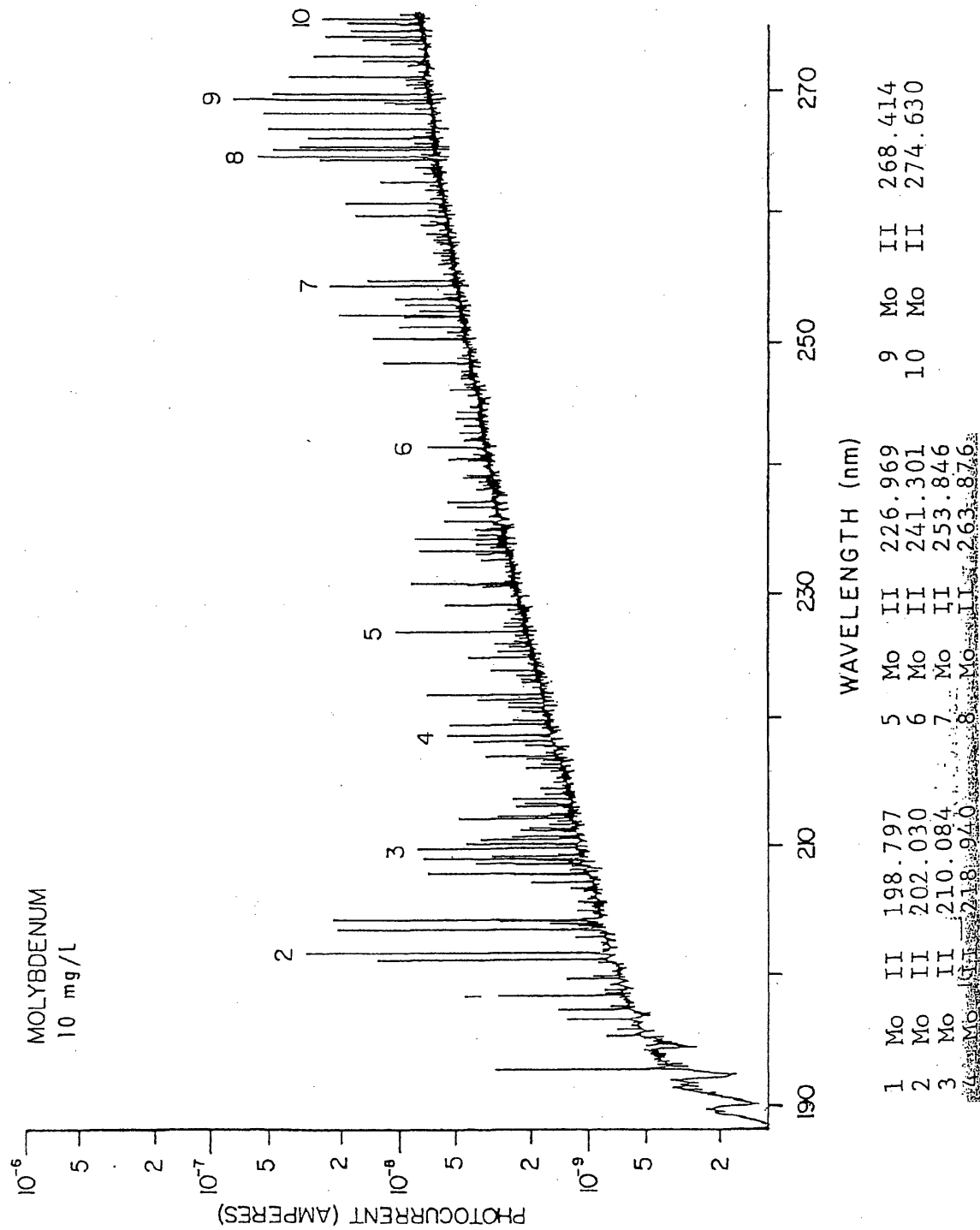




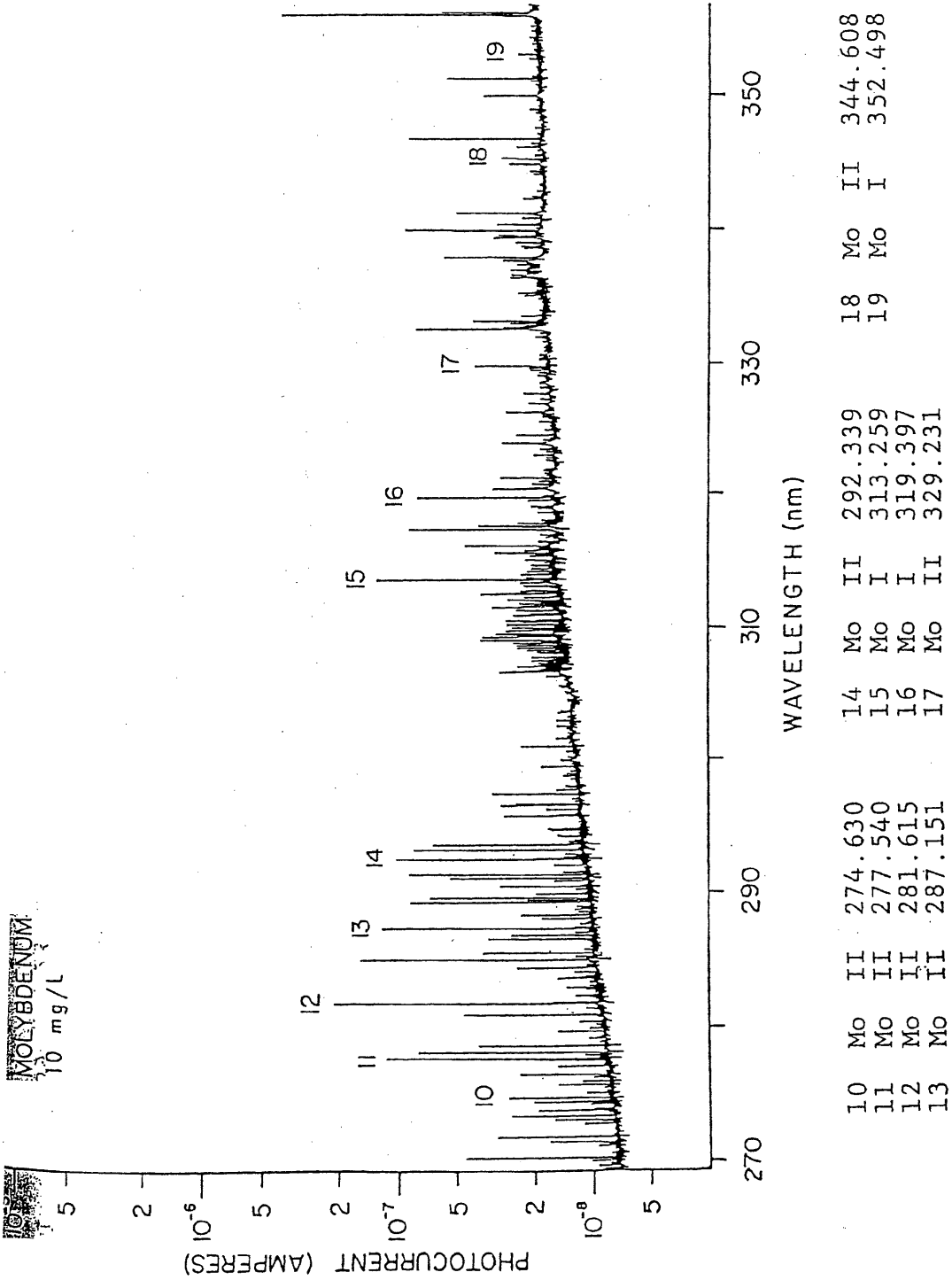


付録5 Moの発光プロフィール

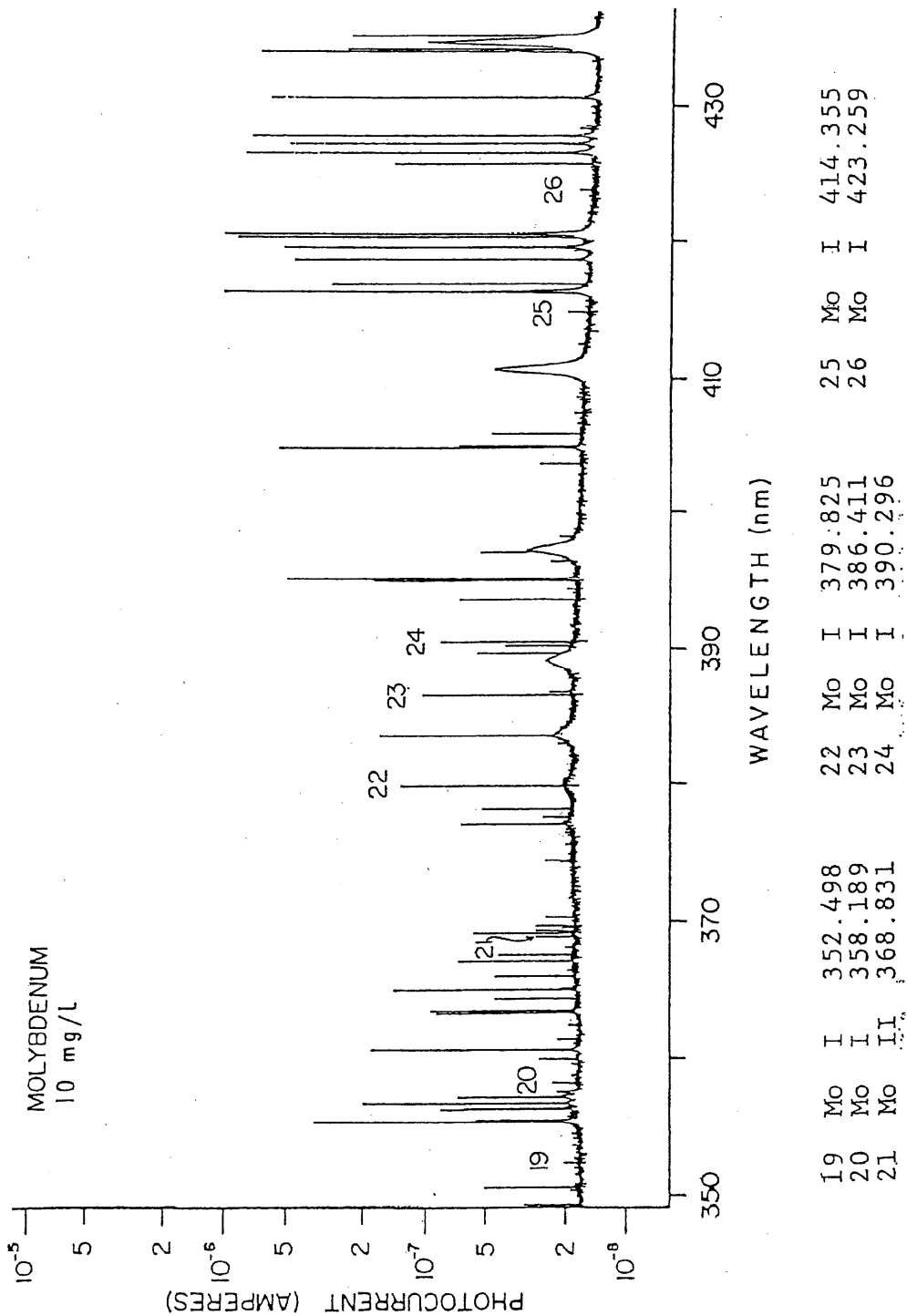
Mo

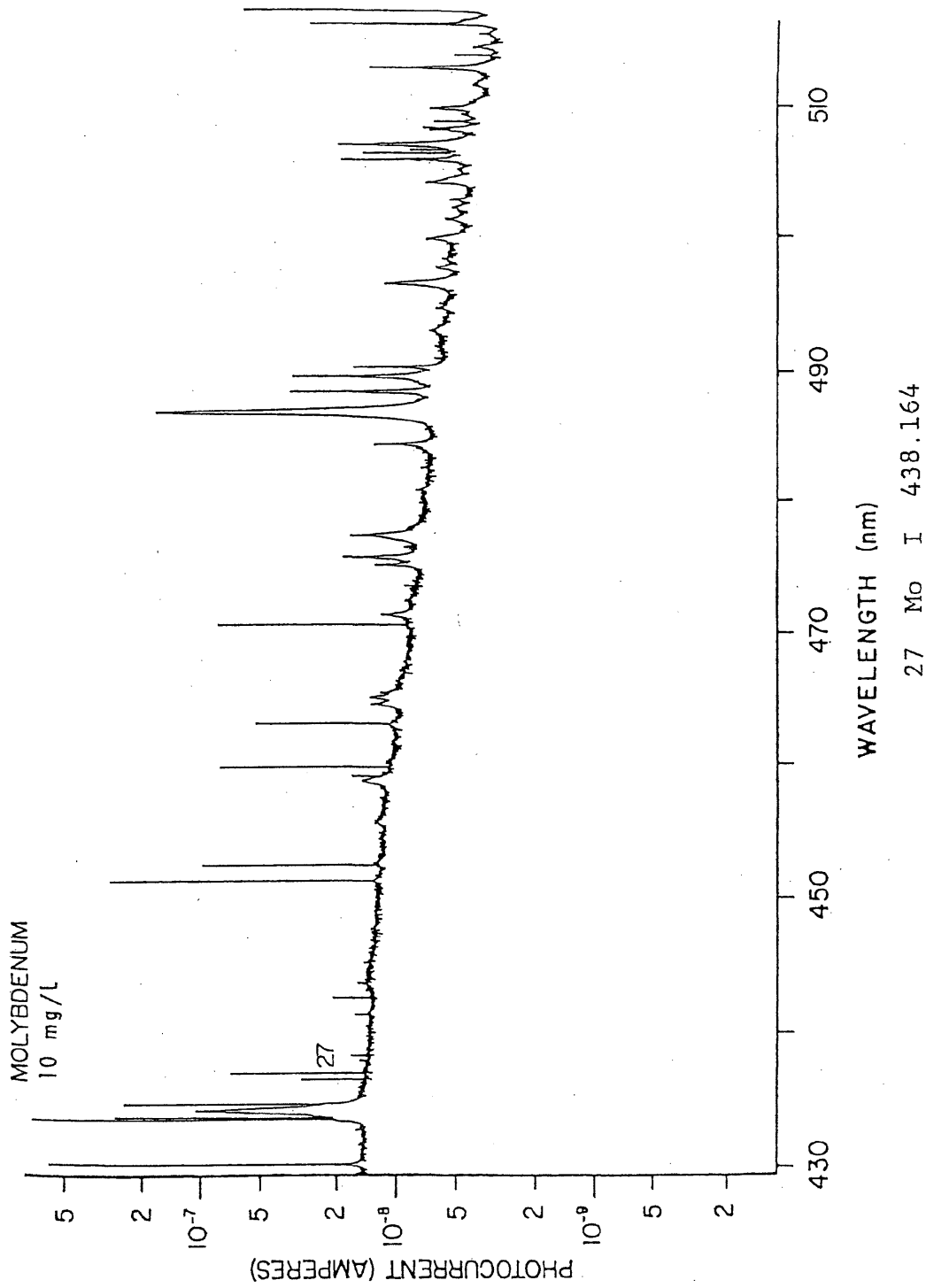


Mo



Mo





Mo

This is a blank page.

# 国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	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
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N	m·kg/s <sup>2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光度	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>
放射能	ベクレル	Bq	s <sup>-1</sup>
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV = 1.60218 × 10<sup>-19</sup> J  
1 u = 1.66054 × 10<sup>-27</sup> kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バ	b
バール	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å = 0.1 nm = 10<sup>-10</sup> m  
1 b = 100 fm<sup>2</sup> = 10<sup>-28</sup> m<sup>2</sup>  
1 bar = 0.1 MPa = 10<sup>5</sup> Pa  
1 Gal = 1 cm/s<sup>2</sup> = 10<sup>-2</sup> m/s<sup>2</sup>  
1 Ci = 3.7 × 10<sup>10</sup> Bq  
1 R = 2.58 × 10<sup>-4</sup> C/kg  
1 rad = 1 cGy = 10<sup>-2</sup> Gy  
1 rem = 1 cSv = 10<sup>-2</sup> Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 <sup>18</sup>	エクサ	E
10 <sup>15</sup>	ペタ	P
10 <sup>12</sup>	テラ	T
10 <sup>9</sup>	ギガ	G
10 <sup>6</sup>	メガ	M
10 <sup>3</sup>	キロ	k
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h
10 <sup>1</sup>	デカ	da
10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>-18</sup>	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局 1985年刊行による。ただし, 1 eV および 1 uの値は CODATA の1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barn および「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

## 換算表

力	N (=10 <sup>5</sup> dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s (N·s/m<sup>2</sup>) = 10 P (ポアズ) (g/(cm·s))

動粘度 1 m<sup>2</sup>/s = 10<sup>4</sup> St (ストークス) (cm<sup>2</sup>/s)

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm <sup>2</sup>	atm	mmHg (Torr)	lbf/in <sup>2</sup> (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 <sup>3</sup>	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 <sup>-4</sup>	1.35951 × 10 <sup>-3</sup>	1.31579 × 10 <sup>-3</sup>	1	1.93368 × 10 <sup>-2</sup>
	6.89476 × 10 <sup>-3</sup>	7.03070 × 10 <sup>-2</sup>	6.80460 × 10 <sup>-2</sup>	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 <sup>7</sup> erg)	kgf·m	kW·h	cal (計量法)	Btu	ft·lbf	eV	1 cal = 4.18605 J (計量法) = 4.184 J (熱化学) = 4.1855 J (15 °C) = 4.1868 J (国際蒸気表)
	1	0.101972	2.77778 × 10 <sup>-7</sup>	0.238889	9.47813 × 10 <sup>-4</sup>	0.737562	6.24150 × 10 <sup>18</sup>	
	9.80665	1	2.72407 × 10 <sup>-6</sup>	2.34270	9.29487 × 10 <sup>-3</sup>	7.23301	6.12082 × 10 <sup>19</sup>	
	3.6 × 10 <sup>6</sup>	3.67098 × 10 <sup>5</sup>	1	8.59999 × 10 <sup>5</sup>	3412.13	2.65522 × 10 <sup>6</sup>	2.24694 × 10 <sup>25</sup>	
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 <sup>-6</sup>	1	3.96759 × 10 <sup>-3</sup>	3.08747	2.61272 × 10 <sup>19</sup>	仕事率 1 PS (仏馬力)
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 <sup>-4</sup>	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 <sup>21</sup>	= 75 kgf·m/s
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 <sup>-7</sup>	0.323890	1.28506 × 10 <sup>-3</sup>	1	8.46233 × 10 <sup>18</sup>	= 735.499 W
	1.60218 × 10 <sup>-19</sup>	1.63377 × 10 <sup>-20</sup>	4.45050 × 10 <sup>-26</sup>	3.82743 × 10 <sup>-20</sup>	1.51857 × 10 <sup>-22</sup>	1.18171 × 10 <sup>-19</sup>	1	

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 <sup>-11</sup>
	3.7 × 10 <sup>10</sup>	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 <sup>-4</sup>	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

放射性物質を含む酸性溶液からのCs分離法の検討及びICP-AESを用いた元素分析



古紙配合率100%  
白色度70%の再生紙を使用しています