

本資料は 年 月 日付けて登録区分、
変更する。 2001. 6. 6

[技術情報室]

セル内操作型ICP発光分光分析装置の開発（I）

1989年9月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

関係者だけに
行わないよう
の旨通知しま

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001



セル内操作型ICP発光分光分析装置の開発 (I)

報告者 青瀬 晋一, 菅沼 隆
大内 義房, 大西 紘一

要 旨

核燃料再処理により発生する高レベル放射性廃液や不溶解性残渣等の高レベル放射性物質の分析は、ホットセル内でマニプレータを使用した遠隔分析操作を必要とする。

近年、分析技術・装置の進歩にはめざましいものがあるが、遠隔操作を必要とする分析装置については、その特異性のため独自の開発が必要である。

市販されている高周波誘導結合プラズマ (ICP) 発光分光分析装置は、ほとんどの金属元素を短時間 (数10秒) のうちに、しかも、同時に多くの元素 (20元素以上) を分析できる優れた装置である。したがって、この装置をホットセル内で使用可能なものとすれば、分析作業の省力化、効率化等に大きなメリットが期待できる。

そこで、このセル内操作型ICP発光分光分析装置を開発するため、装置機器構成の検討を行い、ホットセル内でのマニプレータ操作を必要とする発光ユニットの改造及び放射線の影響確認試験を実施した。その結果、以下の主な成果、結果を得ることができた。

- (1) マニプレータによる操作・保守が可能な発光ユニットを製作した。
 - 発光ユニットを構成する各部品 (トーチ, チャンバー等) は全てマニプレータによる単独交換が可能となった。
 - 光ファイバーとプラズマとの光軸調整がマニプレータで実施可能となった。
- (2) 改造発光ユニット, 光ファイバー等を用いた分析性能は、今回のコールド試験条件下では、Mn, Mo等の検出下限は1 ppm以下であり、分析精度は、濃度1 ppmのとき5%以下, 10ppmのとき1%以下であった。
- (3) 分析セルを想定した約 2.58×10^{-3} C/kg・hr の γ 線照射下でも、集積線量 4.4×10^2 C/kg の照射後でも同調結合器, センサー等の発光ユニット部品は正常に作動し, 十分な耐放射線性があることが確認できた。

目 次

| | |
|------------------------------------|----|
| 1. はじめに | 1 |
| 2. ICP発光分光分析法 | 2 |
| 2.1 原理 | 2 |
| 2.2 特徴 | 2 |
| 2.3 システム構成 | 4 |
| 3. セル内操作型 ICP発光分光分析装置の機器構成の検討 | 7 |
| 3.1 セル内とセル外設置機器の検討 | 7 |
| 3.2 セル内操作型 ICP発光分光分析装置の設置構成 | 11 |
| 4. 開発課題の抽出 | 13 |
| 4.1 発光ユニットの開発課題 | 13 |
| 4.2 イグナイターの開発課題 | 15 |
| 5. セル内操作型発光ユニットの製作 | 17 |
| 5.1 高周波伝送系（高周波コイル，同調結合器，同軸ケーブル）の改造 | 17 |
| 5.2 試料導入，励起系（トーチ，チャンバー，ネブライザー）の改造 | 30 |
| 5.3 光軸系の改造 | 33 |
| 5.4 発光ユニットカバー等の改造 | 35 |
| 5.5 セル内操作型発光ユニット | 44 |
| 5.6 セル内操作型 ICP発光分光分析装置の性能確認試験 | 47 |
| 6. 放射線の影響確認試験 | 56 |
| 6.1 放射線照射下での影響確認試験 | 56 |
| 6.2 放射線照射後の影響確認試験 | 60 |
| 7. まとめ | 75 |
| 8. 今後の開発課題 | 76 |
| 9. 参考文献 | 78 |

1. は じ め に

将来の再処理施設等の高レベル放射性物質取り扱い施設では、被ばくの低減化、廃棄物発生量の低減化の他に施設稼働率・運転効率の向上、コスト低減化等の安全性や信頼性を確保した上での合理化、経済性が要求される。したがって、これら施設における分析についても、分析作業の省力化・迅速化及び廃棄物発生量の低減化等が要求される。

さらに、動燃事業団のような実用化に向けての各種プロジェクトのR&Dを実施しているところでは、従来では、分析不可能であった項目も分析可能とするような分析方法の確立が要求される。

従来、分析ホットセルで使用されている比色分析、滴定分析等は、多種多様な分析試薬の使用や抽出操作等の複雑な分析操作を必要とするため、分析作業時間が長く、そのわりに分析可能元素が少なく、また、分析試薬等の廃棄物発生量も多いという欠点があった。一方、高周波誘導結合プラズマ（ICP）[※]発光分光分析法は、分析操作が簡単であり、かつ、分析時間も短く、多くのほとんどの金属元素を同時に、広い濃度範囲にわたり分析することが可能であり、特に湿式分析法で不可能であった希土類元素の分析もできるという利点を有している。さらに、ICP発光分光分析法は、各元素特有の発光スペクトル線の光強度を測定するうえで、ホットセル内で大きな妨害要因となる高放射線の影響を受けずに安定した測定ができ、廃液量も少なくすむ利点を有している。したがって、これら多くの利点を有するICP発光分光分析装置を、セル内分析装置として確立すれば、前述した、将来の要求に合致した大きなメリットが得られる。

今回は、このセル内操作型ICP発光分光分析装置の開発のため、ホットセル内でのマニプレータによる操作・保守が可能なセル内操作型発光ユニットの改造及び放射線の影響確認試験を実施したので報告する。

※ I C P …… Inductively Coupled Plasma

2. ICP 発光分光分析法

2.1 原理

原子核を取り巻いている電子は、量子化されたエネルギー準位を有している。今、外部よりエネルギーを与えると、電子のエネルギー準位は、高いエネルギー準位 (E_2) に移るが、 $10^{-7} \sim 10^{-8}$ sec. 程度の短い時間のうちに低いエネルギー準位 (E_1) に移る。このとき、Bohr の量子条件 (式-1) に相当する波長 λ の光が放出される。

$$\Delta E = E_2 - E_1 = hc/\lambda \quad \dots\dots\dots (式-1)$$

$$\left(\begin{array}{l} h : \text{プランク定数} \\ c : \text{光速} \\ \lambda : \text{波長} \end{array} \right.$$

このようなエネルギー準位は原子に固有であるので、原子のスペクトル線の波長も原子に固有な値を持つ。したがって、この原子スペクトルの波長や強度を測定して、元素の同定や定量が可能となる。

ICP 発光分光分析法は、試料を高温 (約 6000~8000 K) の高周波誘導結合プラズマ中に導入し、元素に熱的エネルギーを与えることによって発光させ、その光を分光器により元素特有のスペクトル線に分け、その波長や強度を測定して、元素の同定や定量を行うものである。

2.2 特徴

従来の発光分析法であるフレイム発光法、すなわち炎光分析法は、最高励起温度は約 3000 K あり、可視部に発光線をもつアルカリ、アルカリ土類 (Na, K, Ca 等) の分析には適するが、紫外領域に発光線をもつ多くの金属元素には有効ではない。また、アークやスパークを励起源に用いる方法も、感度や精度及びマトリックス効果などに問題を残す。これらの問題を解決し、近年の微量分析法の主流となってきたのが、高温の誘導結合プラズマや直流プラズマを励起源とするプラズマ発光分光分析法である。特に、高周波誘導結合プラズマ (ICP) は、現在の発光分析法における最も優れた光源として評価されており、全世界に、普及している。この ICP 発光分光分析法の一般的な特徴については、以下の項目が挙げられる。

(1) ほとんどの元素について超微量レベルの分析ができる。

これは、図-1に示すように、プラズマがドーナツ構造（プラズマの中心部は、周囲に比べて温度が低く、かつ電子密度が小さくなっている構造）となっているため、プラズマ中への試料導入効率がよく、さらにプラズマ温度が高い（6000～8000 K）ためであり、アルゴン ICP 発光分光分析法では、N, O, F, Cl, Br, といった非金属元素を除く、すべての分析ができると一般にいられている。

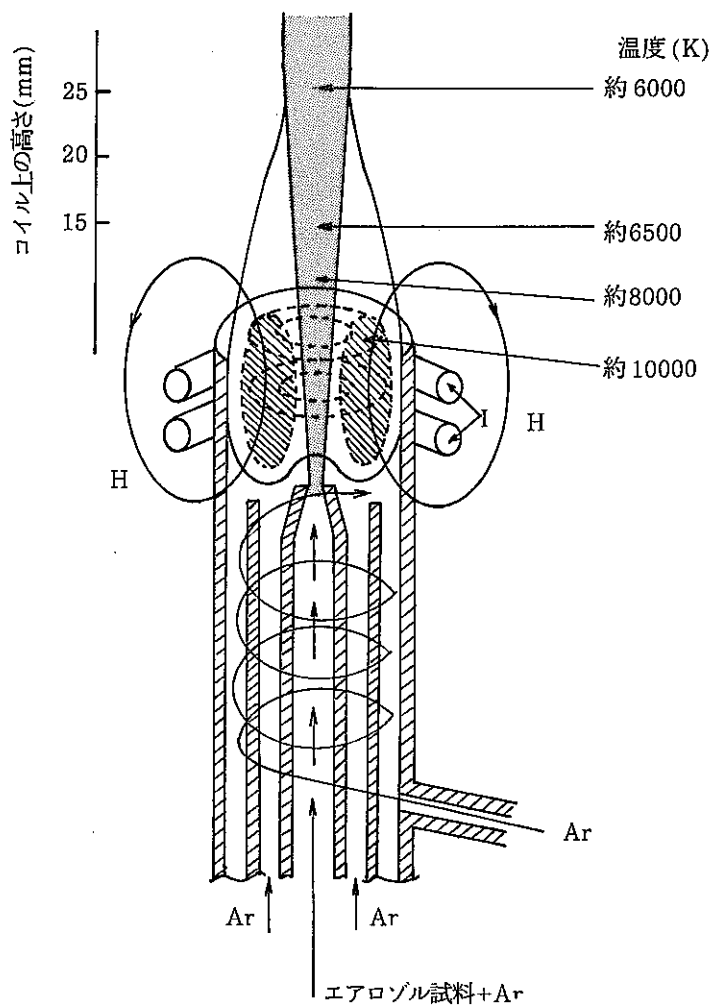


図-1 ICPの概略図

(2) 短時間及び長時間の分析精度がよい。

これは、ICPの点灯状態はきわめて安定で、適切な条件・環境で運転すれば、4～5時間の点灯でも1～2%の安定性が得られるといわれている。

(3) 検量線の直線範囲（ダイナミックレンジ）が4～5桁と広い。

これは、試料ミストとそれから生成する原子やイオンは、プラズマ中心部のドーナツの穴の部分を通過するが、周囲（ドーナツの環に当たる領域）の温度が高いため構拡散がなくなり、その結果、自己吸収がなくなり、スペクトル線の広がりが少なく、発光強度と試料濃度の直線性がよくなると考えられている。このことは、高濃度の主成分から、低濃度の微量成分までを希釈せずに同時に測定できるメリットを与える。

(4) 多元素同時分析が可能である。

これは、ダイナミックレンジが広いことのほか、高周波コイル上の15～20mmの観測高さで、ほとんどの元素がほぼ最高感度を与えるからである。

(5) 化学干渉やイオン化干渉などの元素間の妨害がほとんどない。

これは、プラズマ温度が高く、かつ電子密度が大きいためである。

以上が、ICP発光分光分析法の一般的な特徴であるが、これをセル内分析に適用した場合、容易な分析操作で、短時間（約10～20秒）のうちに、多くの元素が同時に、分析できるため、廃棄物（分析廃液等）発生量の低減、分析作業効率（分析時間、分析者等）の低減等の大きなメリットが考えられる。

2.3 システム構成

ICP発光分光分析装置は、図-2に示すように、大きく分類して、(1)発光部、(2)集光系、(3)分光部、(4)測光部、(5)データ処理部から構成されている。

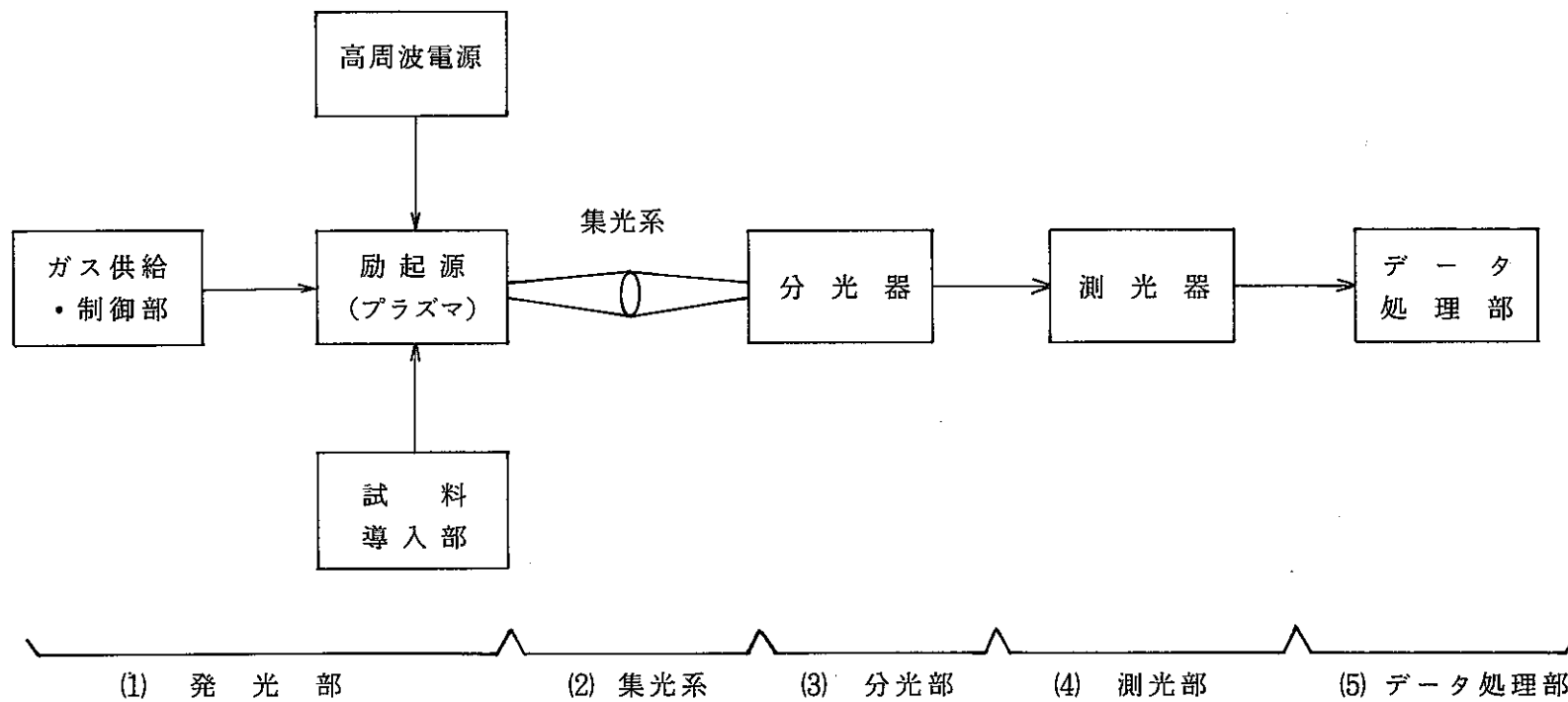


図-2 ICP 発光分光分析装置の構成

発光部は、励起源、高周波電源、試料導入部、ガス供給・制御部から成っている。まず、励起源部のトーチにアルゴンガスを流し、誘導コイルに高周波電力をかけてトーチ上にプラズマを生成させる。これに試料導入部から試料を導入すると、測定対象元素の原子またはイオンが励起され発光する。この発光を集光して分光器に導くものが集光系であり、分光器に入った光は、通常回折格子を使用したポリクロメータまたは、モノクロメータによって分光される。分光された光は、検出器（通常、光電子増倍管）により電気信号に変換される。この信号は、測光部で処理され、アナログまたはデジタル表示される。そしてこれらを計算処理するのがデータ処理部である。

3. セル内操作型 I C P 発光分光分析装置の機器構成の検討

3.1 セル内とセル外設置機器の検討

I C P 発光分光分析装置は、大型分析装置であり、本装置をセル内に設置する場合必ずその遠隔操作性・保守性が問題となってくる。また、装置が使用不能になり廃棄する必要が生じた場合にも、廃棄物量が少なくなるように、できる限り装置構成機器の分離をはかり、セル内に設置する機器は必要最小限のものとする必要がある。

2.3 の図-2 において、(3) 分光部、(4) 測光部、(5) データ処理部は、(2) 集光系に光ファイバーを利用することにより、分離してセル外に設置することが可能である。

したがって(1)の発光部が主な開発対象となる。図-3 に、発光部の概略機器構成を示す。

発光部は、主に、発光ユニット、イグナイター、冷却水循環装置、コントロールユニット等から構成される大型装置である。そこで、この構成部品について、必要最小限のものをセル内に設置するように、以下のように分離検討を行った。

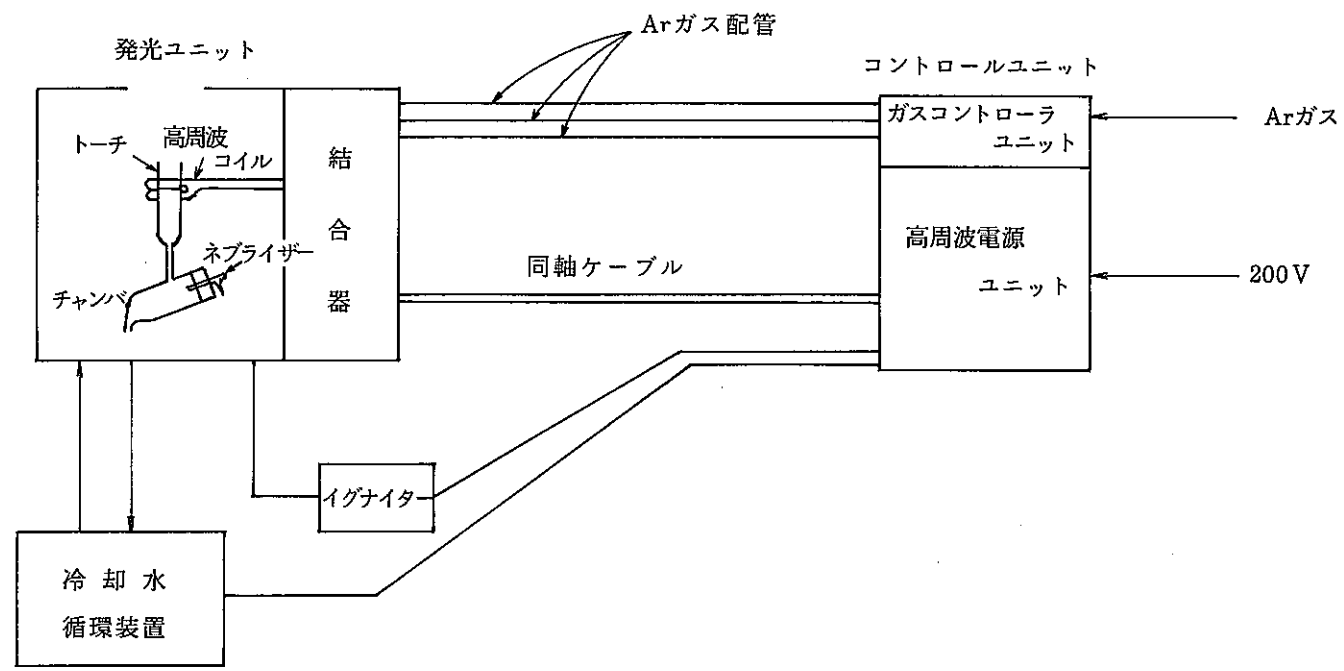


図 - 3 発光部の機器構成

(1) 発光ユニット

図-3に示すように発光ユニットは、トーチ、チャンバー、ネブライザー、高周波コイル、同調結合器で構成されており、試料の導入及び励起発光を行う部分である。ここは、試料（放射性物質）を直接取り扱うところであり、セル内に設置する必要がある。

(2) イグナイター

イグナイターは、図-4に示すようにイグニッションコイル部とテスラーコイル部とで構成されている。これは、高周波プラズマを点灯する際に用いる着火装置であり、イグニッションコイルから出ているケーブル(A)の先端に電圧をかけ、放電発生させプラズマ着火源としている。設置場所としては、ケーブル(A)を延長して、セル外への設置も考えられるが、(i)イグニッションコイル、テスラーコイルとも電圧調整のみの単純なものであり、小さな装置であること。(ii)ケーブル(A)の延長は、イグニッションコイル、テスラーコイルの電圧調整が標準品とは異なるものが必要であり、確実な放電作動が懸念されること。及び、新たな開発課題を提起する可能性があるためコストがかかること等問題があること。これらの理由により、イグナイターは、セル内に設置することとした。

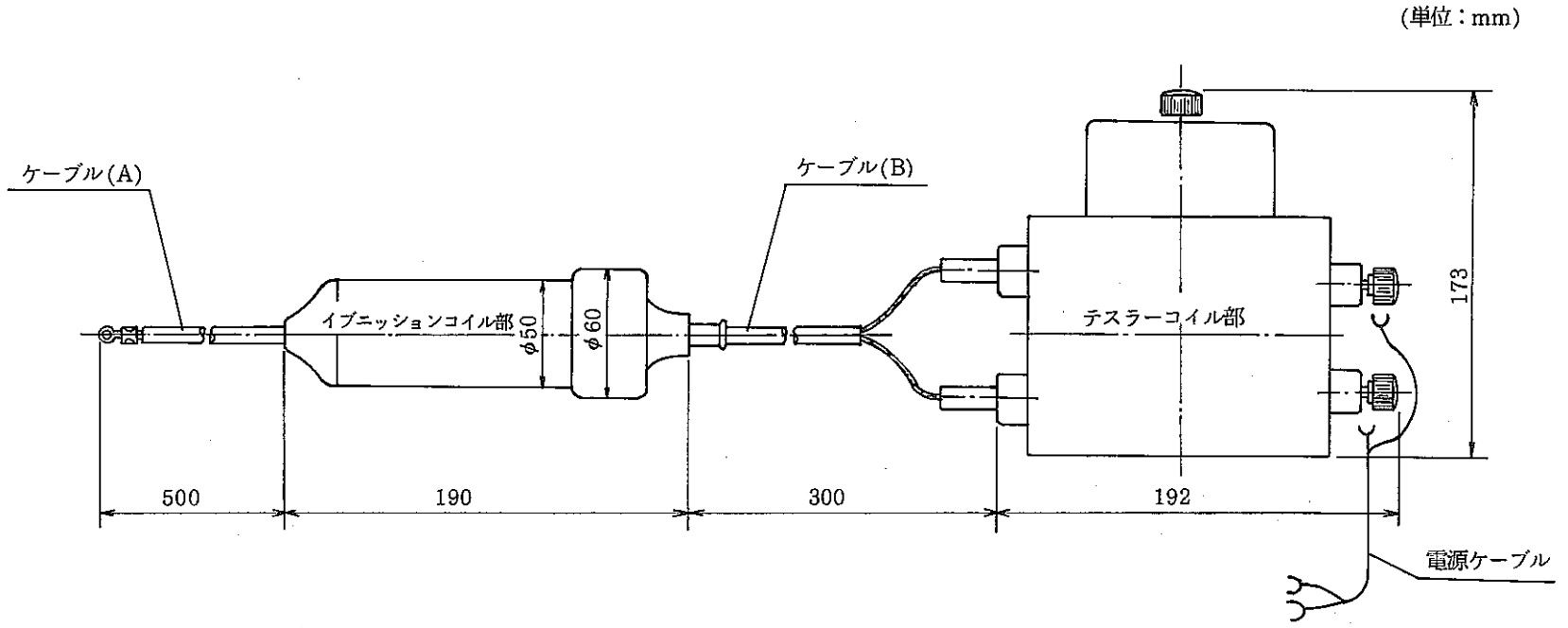


図-4 イグナイター

(3) 冷却水循環装置

図-3に示すように、冷却水循環装置は、発光ユニット内の高周波コイルに水を循環させ、コイルを冷却するものであり、主に冷却水タンクとポンプにより構成されている。この装置は発光ユニット（高周波コイル）に、2本（INとOUT）の冷却水配管で接続されており、ポンプの電源は、コントロールユニットからとっている。したがって2本の冷却水配管を延長化することで、セル外への設置は可能である。しかしその場合、セル内とセル外を水が循環されることになり、万一、循環水が汚染されたとき、セル外へ汚染が拡大するので、セル内設置にする必要がある。

(4) コントロールユニット

図-3に示すように、コントロールユニットは、高周波電源ユニット、ガスコントローラユニットから成っており、プラズマの点灯・消灯操作及び、高周波出力やガス流量制御を行うところである。高周波出力や高周波出力マッチング制御及びガス流量制御は、その負荷端である発光ユニットに近づけて設置（通常約3m以内に設置）した方が制御しやすいが、これは、精密な電子部品を含む大型ユニットであり、耐放射線性や保守性を考えると、セル内への設置は不可能である。したがって高周波電力を伝送する同軸ケーブルやガス配管を延長し、セル外に設置する必要がある。

3.2 セル内操作型ICP発光分光分析装置の設置構成

3.1の検討結果にもとづいたセル内ICP発光分光分析装置の設置構成を図-5に示す。

セル内には、発光ユニット、イグナイター、冷却水循環装置を設置し、セル外のコントロールユニットからの操作により、発光ユニット内にプラズマを点灯させ、目的試料を励起発光させる。発光スペクトルは光ファイバーを通じてセル外の分光器に導き分光し、測光・データ処理するというものである。

- ① キャリアガス配管
- ② プラズマガス配管
- ③ 冷却ガス配管
- ④ 高周波ケーブル(同軸型)
- ⑤ 同調結合信号線(モータ用)
- ⑥ イグナイター線
- ⑦ 冷却センサー線
- ⑧ 冷却水循環装置線

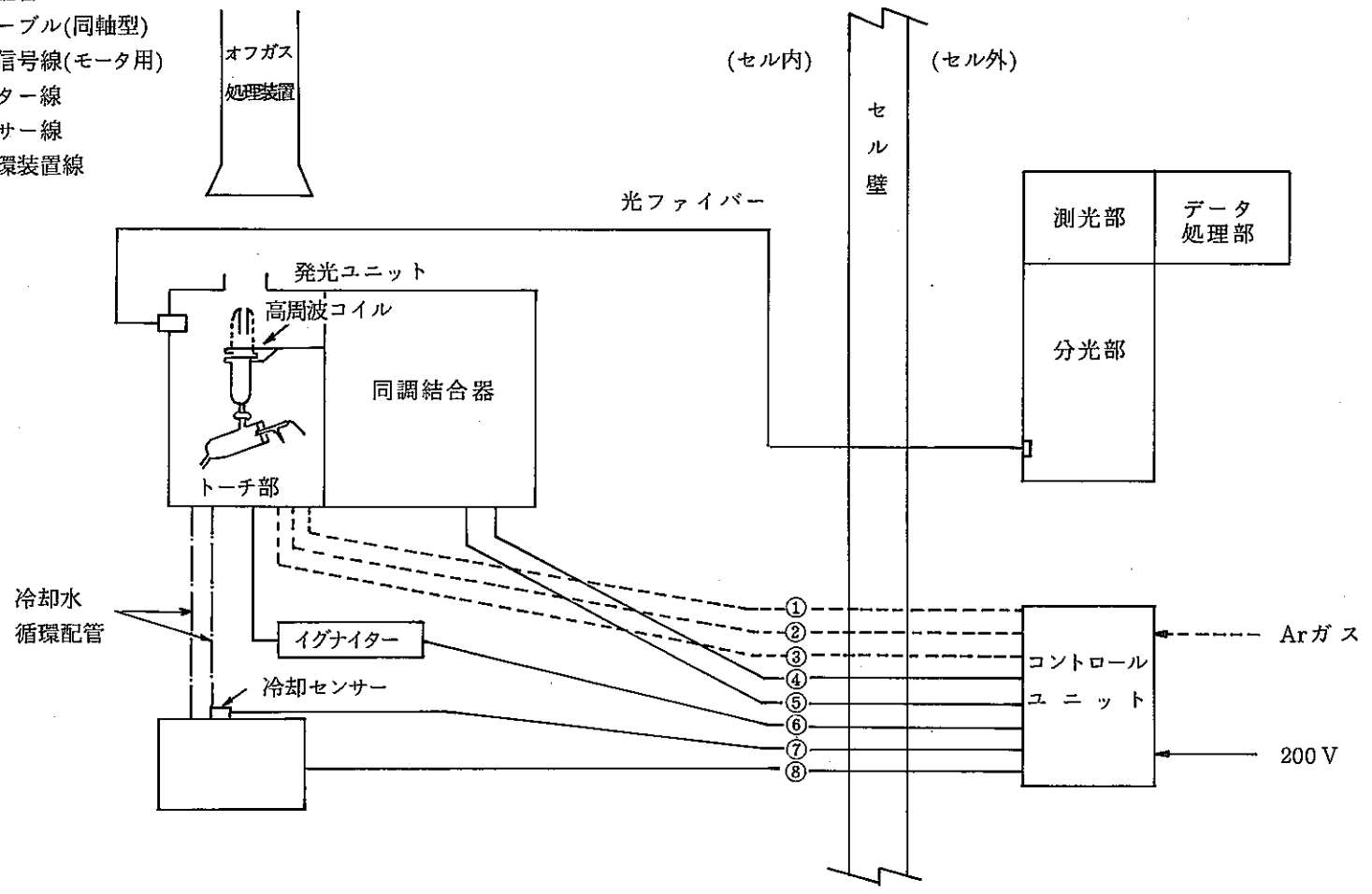


図-5 セル内操作型 I C P 発光分光分析装置構成図

4. 開発課題の抽出

3において、セル内操作型ICP発光分光分析装置を、セル内とセル外設置機器に分割し、装置構成を検討したが、このうちセル外設置機器については、人間の手による操作・保守が可能であるため、開発対象としては、セル内設置機器が主なものとなる。この場合、考慮すべき点として、(1)構成機器・部品は、マニプレータによる遠隔操作による保守が可能となるよう開発すること。(2)セル内設置機器・部品は放射線等が存在する特殊環境下での使用が可能であり、耐久性に優れているものを開発すること。(3)万一、機器等が使用不能になった場合でも交換可能であり、かつ、廃棄物量が少なくなるものを開発すること。(4)セル内とセル外を貫通させるものは、気密・遮蔽がとれるものとする。 (5)経済性に優れたものを開発すること等が挙げられる。これらを考慮し、開発課題を抽出した。また課題抽出にあたっては、(i)発光ユニット、(ii)イグナイター、(iii)冷却水循環装置、(iv)配線・配管類、(v)その他周辺機器の各機器構成要素に分けて検討するのが望ましいが、(iii)~(v)については、1982年に、同種の発光分光分析装置である直流プラズマ(DCP)発光分光分析装置を、セル内操作型に改造した経験・実績があり、それを活かすことが可能と考えられたため、今回は(i)と(ii)について検討した。

4.1 発光ユニットの開発課題

発光ユニットは、各メーカーにより大きさ、部品の接続方法等に多少の差はあるが、基本的には、高さ約700mm、巾約400mm、奥行約500mmのボックス内に高周波コイル、結合器、トーチ、チェンバー、ネブライザー等の部品を図-6のように組み立てたものである。

この発光ユニットをセル内で使用する場合、たとえば、結合器が故障して使用不能になったとき、あるいは、ネブライザー、トーチ等が目づまりや劣化によって交換する必要が生じたとき、不具合箇所が一箇所であるにもかかわらず、また交換頻度が異なるにもかかわらず全体を交換することは、経済的にも、廃棄物発生の観点からも好ましくない。したがって、できる限り構成部品は単独交換が可能となるようにしておく必要がある。しかしこれら部品は、ネジ止め等で取付架台等に固定されており、部品の配置・間隔やマニプレータの爪の大きさ、アクセス方向を考慮すると、遠隔操作での着脱交換は困難である。したがって、これら部品がマニプレータによって着脱交換可能となるよう取付架台等を改造する必要がある。また、光情報の伝送に光ファイバーを利用するため、光ファイバーとプラズマ間の光軸調整をマニプレータで可能となるよう光軸調整機構を検討する必要がある。さらに、発光ユニット内の結合器は、主にコンデンサー等の電気部品で構成されており、放射線の影響を確認しておく必要

がある。以上が、発光ユニットに関する主な課題であるが、この他に、放射線、薬品等の特殊環境を考慮した各 부품の材質検討も重要である。

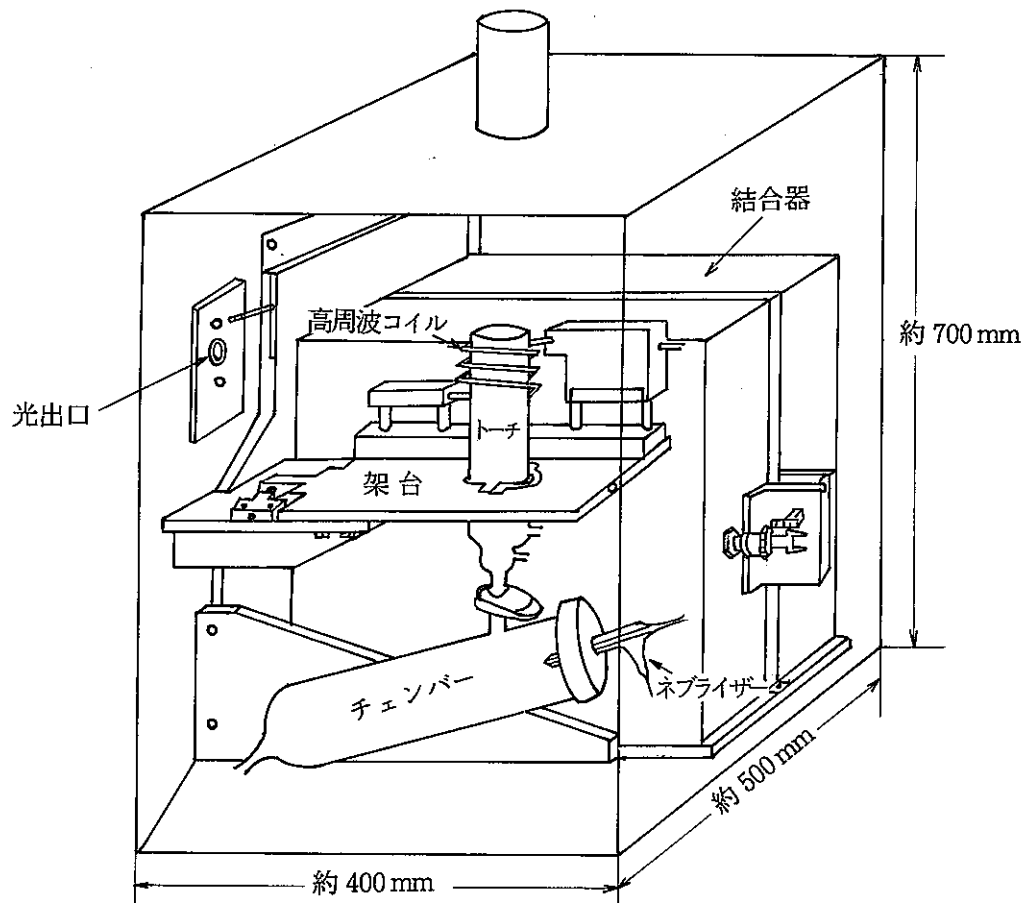


図-6 発光ユニット
(島津製 ICPQ-1000 II 型の例)

4.2 イグナイターの開発課題

イグナイターは、3.1の(2)で述べたように、高周波プラズマを点灯する際に用いる着火装置であり、図-7に示すように、トーチのプラズマガス流路に取り付けられ、その流路内にフィラメント状の放電を発生させる。このイグナイターケーブルの先端は環状になっていて、プラズマガス流路に差し込むようになっているが、この差し込みは、マニプレータでは、不可能なため、これを改良する必要がある。

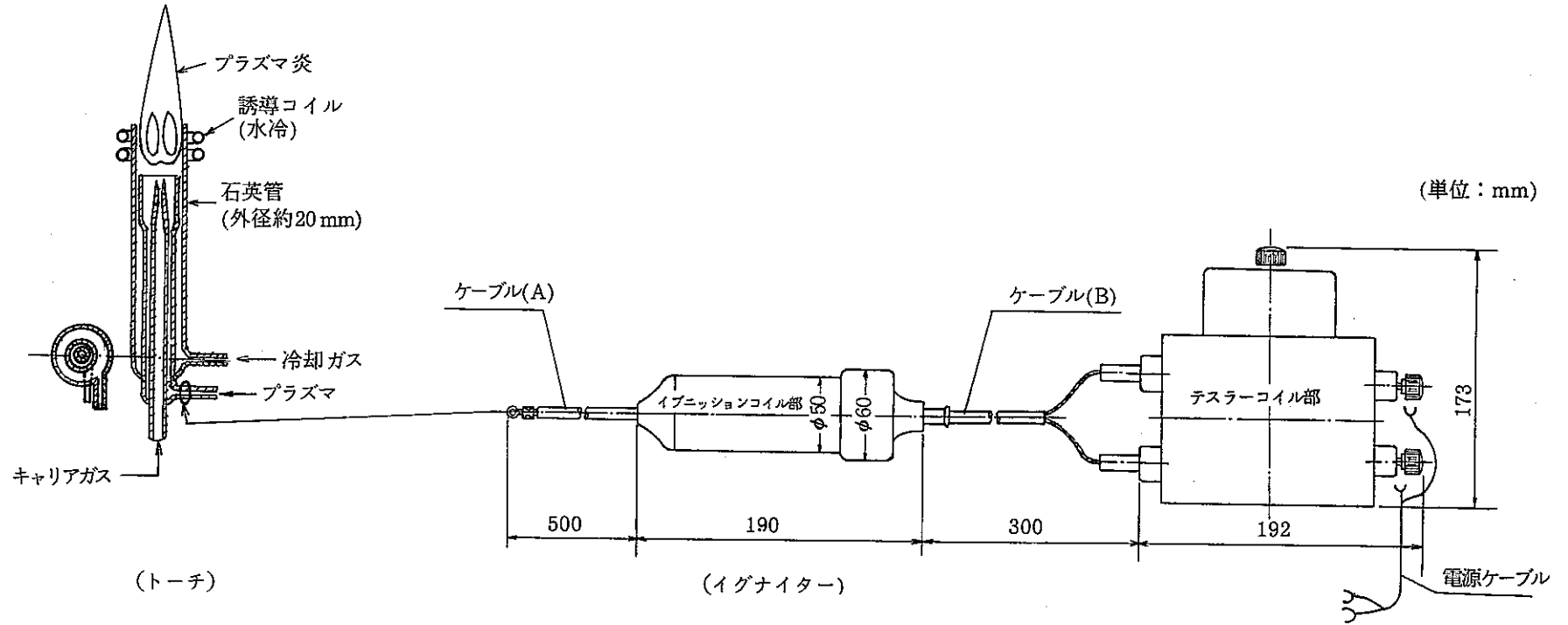


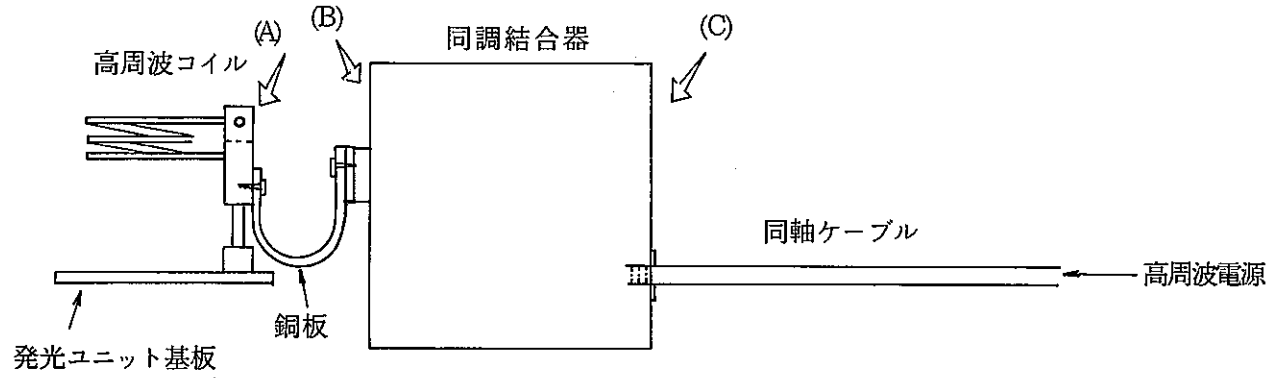
図-7 イグナイター系

5. セル内操作型発光ユニットの製作

セル内操作型発光ユニットを製作する上で、その基本モデルとして島津製作所製 ICP Q-1000 II型の発光ユニットを選定した（図-6参照）。その理由は、3.1の(4)で述べたように、発光ユニットと高周波電源をセル内とセル外に分離して使用するためには、これらを接続する同軸ケーブルは、セル壁での遮蔽・気密を考慮した引きまわしや、マンプレータによる発光ユニットの取り扱いを考えると、少なくとも5 m以上の延長が必要であり、島津製作所ではその延長化の経験を有していたからである。また、この会社は、日本における有数のICP発光分光分析装置の製造メーカーであり、実績・技術力等に優れていたからである。以下、発光ユニットの各構成部品のマンプレータによる遠隔操作に対応した改造について述べる。

5.1 高周波伝送係（高周波コイル，同調結合器，同軸ケーブル）の改造

高周波伝送系は、図-8に示すように、高周波コイル，同調結合器，同軸ケーブルから成っている。



(A) 側からの図

(B) 側からの図

(C) 側からの図

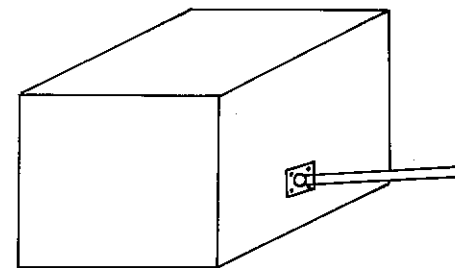
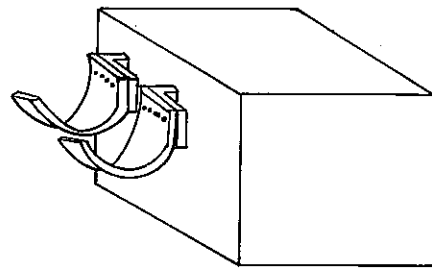
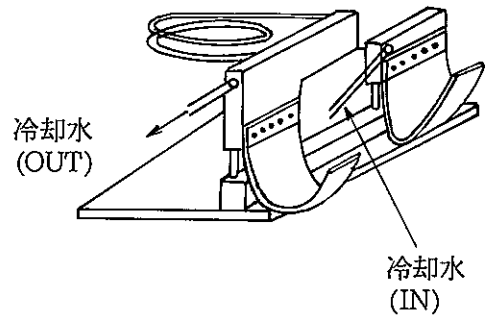


図-8 高周波伝送系

(1) 高周波コイルの改造

高周波コイルは、図-8に示すように、① 同調結合器と2枚の銅板（長さ110mm、巾50mm、厚み0.3mm）でネジ止め連結、② 冷却水配管（INとOUTの2本）と連結、③ 発光ユニット基板とネジ止め連結の3箇所で連結されている。この高周波コイル部をマニプレータによって単独交換が行えるように以下のように改造した。

① 同調結合器との連結

銅板と結合器を図-9のように、引っ掛け構造とした。

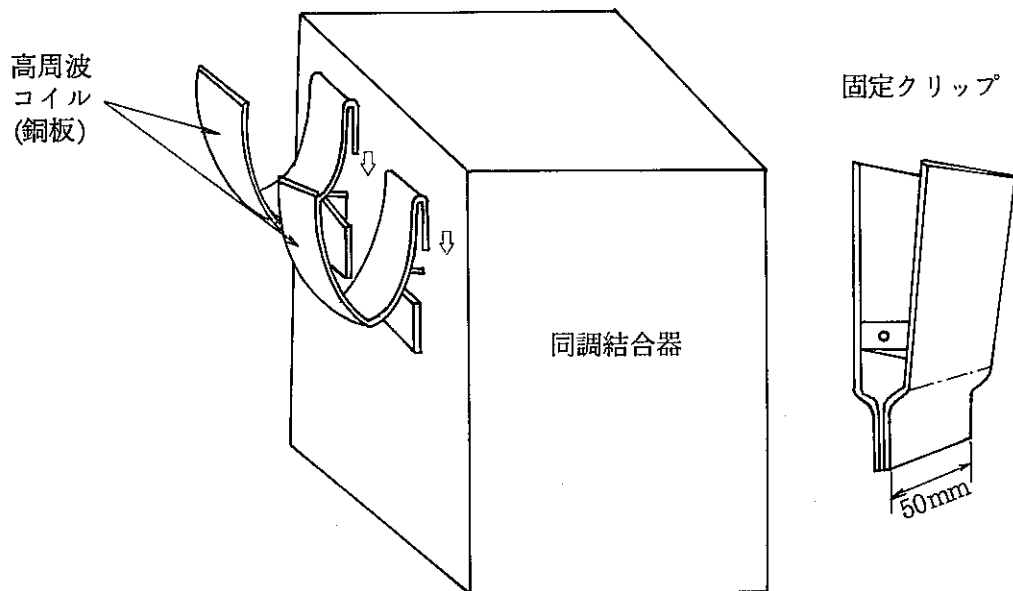


図-9 高周波コイル（銅板）と同調結合器の連結

通常、簡単な接続方法として、ワンタッチコネクタ等の利用が考えられるが、この連結部（銅板）に関しては、高周波の伝送やマッチング（同調）等の性能を維持する上で、材質、長さ、巾、厚み等の全てが変更不可能という欠点があるので、この連結方式として図-9に示す方法とした。なお、連結固定をより確実にするため、図-9に示す特殊固定クリップを製作し、銅板を結合器に引っかけた後、このクリップで固定することとした。

② 冷却水配管との接続

高周波コイルと冷却水配管（タイゴンチューブ）は図-10に示すように、押し込み方式で接続されている。コイルと配管の簡単な接続法としては、クイックコネクタ等の利用が考えられるが、この場合、高周波コイル部と、クイックコネクタを結合するための改造が必要となり、単品交換で経済性を高めようとする方針に反する。したがって、クイックコネクタは、図-11に示すように、冷却水配管の途中に取り付け、遠隔操作対応することとした。

③ 発光ユニット基盤との連結

高周波コイルは図-12のように発光ユニット基盤とネジ止め固定されている。これを図-13のように改造した。

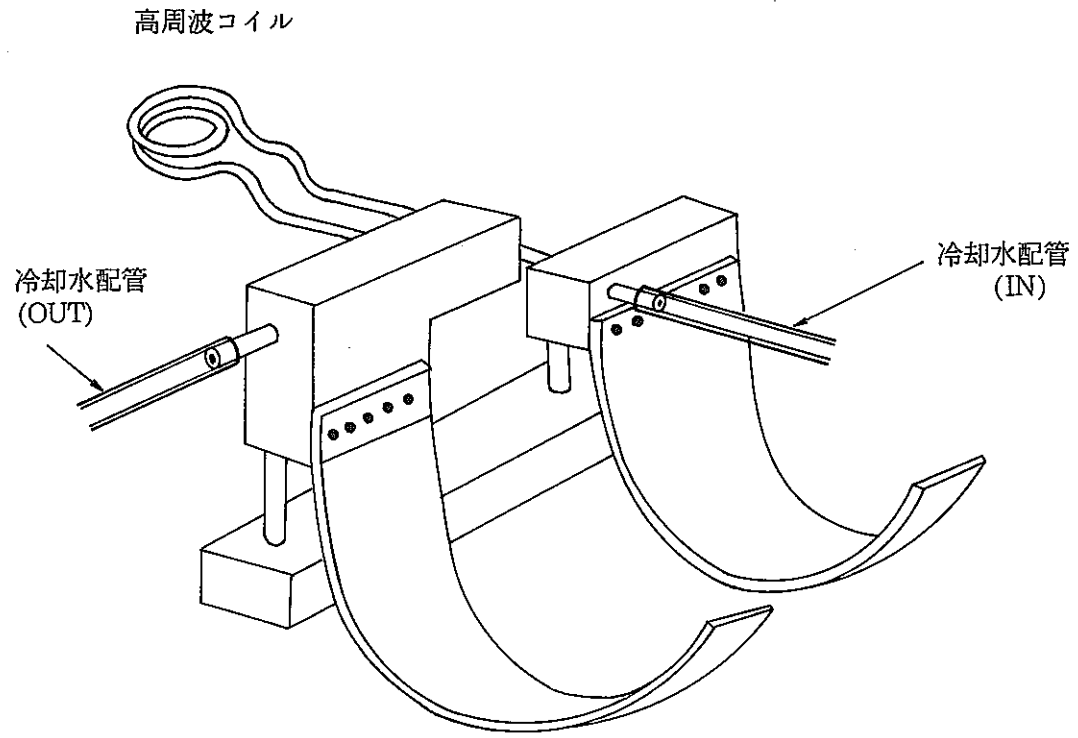


図-10 高周波コイル

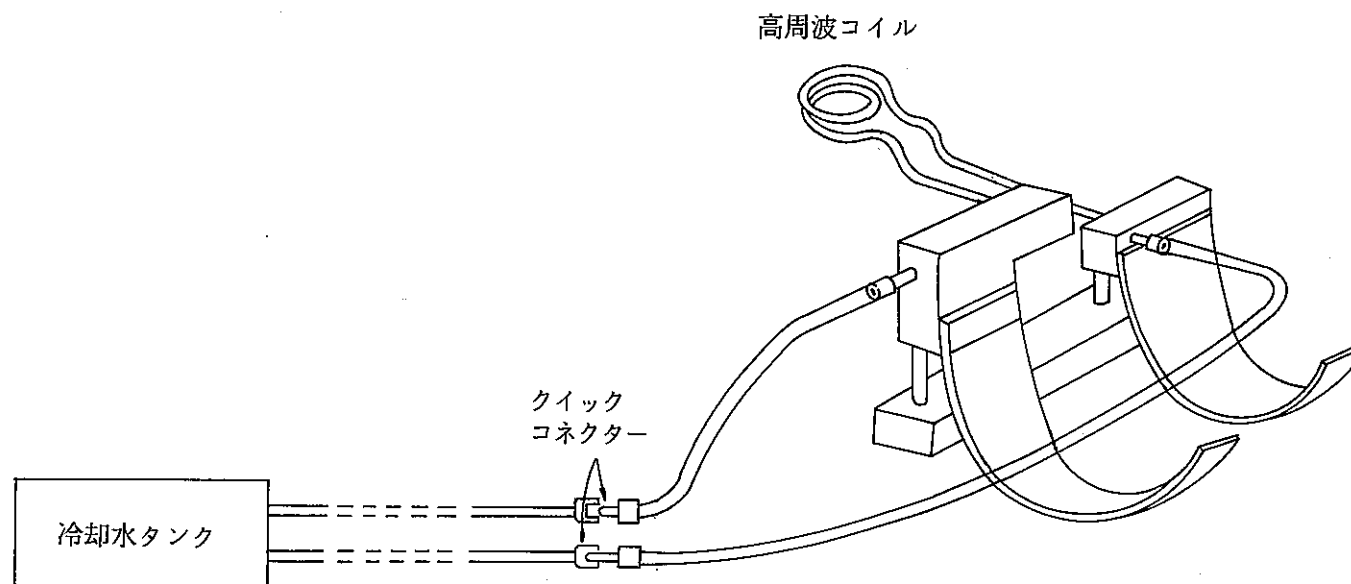


図-11 高周波コイルと冷却水配管系

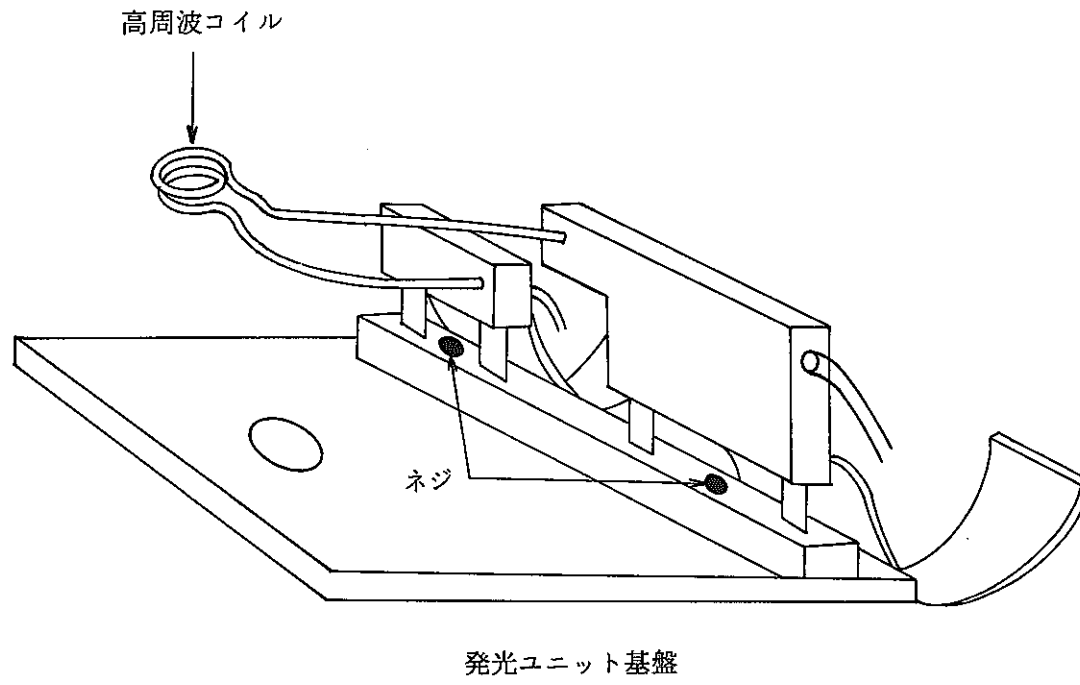


図-12 高周波コイルと発光ユニット基盤

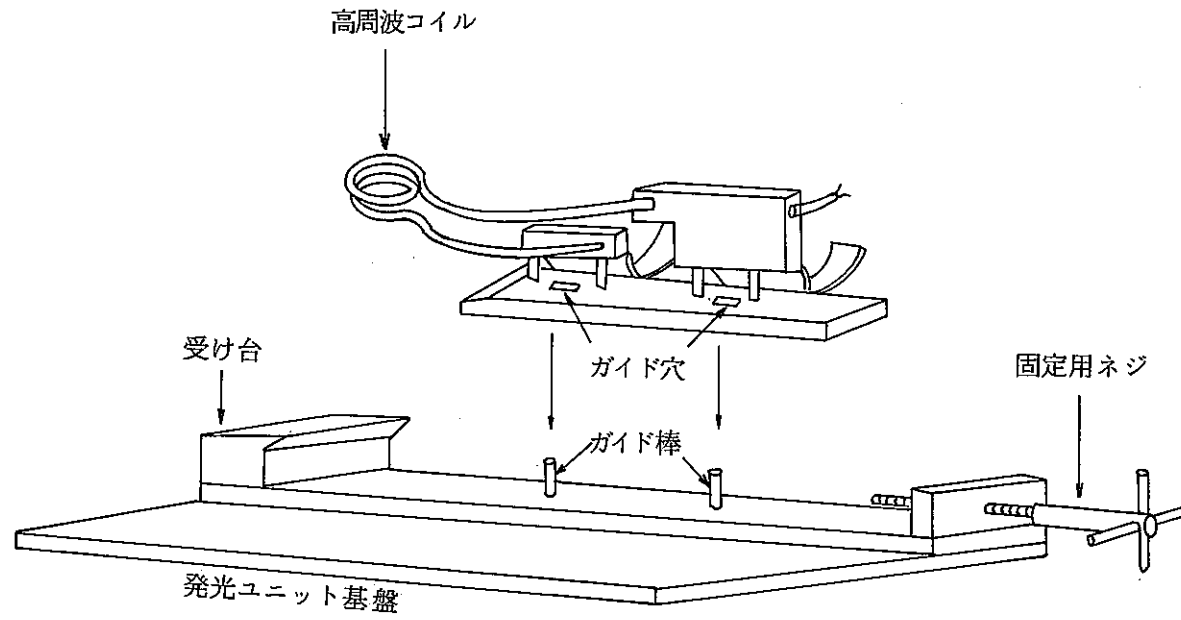


図-13 高周波コイルと発光ユニット基盤の改造

高周波コイル側にガイド穴を作り，これに対応して，発光ユニット基盤側にガイド棒を付けた。また，固定は，発光ユニット基盤側に，マンプレート操作が可能な固定用ネジを付けた。さらに，このネジを回して，固定する際，高周波コイルの上方への浮き上がりが問題となったので，発光ユニット基盤側は，構を切った受け台とし，その構に対応して，高周波コイル側にも構を切った。

以上，遠隔操作に対応可能な高周波コイルを試作したが，それを写真-1に示す。

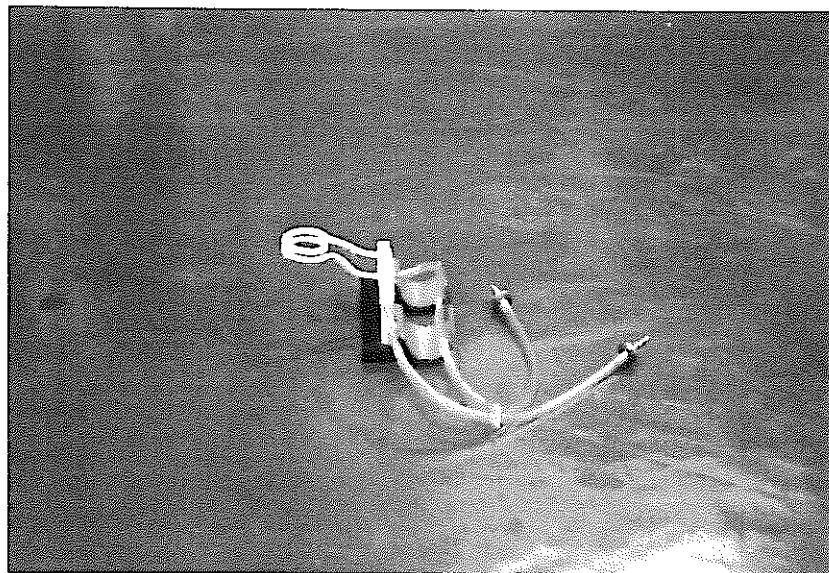


写真-1 高周波コイル

(2) 同調結合器、同軸ケーブルの改造

同調結合器は、① 同軸ケーブル、② 同調（マッチング）用モータケーブル、③ 発光ユニット床面、④ 高周波コイルの4箇所接続箇所を有しているが、このうち④については、5.1の(1)でマニプレータによる接続方法を述べたので、以下①～③の対応を記す。

① 同軸ケーブルとの接続

同調結合器と同軸ケーブルは、図-14に示すように、同軸ケーブルを同調結合器側のケーブル接続部（凸部）に差し込み、回転部（凹部）を回転させることにより接続されている。これをマニプレータによって接続できるように、図-15に示すような、同軸ケーブル接続治具を製作した。これを、同軸ケーブルの回転部に装着することにより、遠隔着脱が可能となっている。

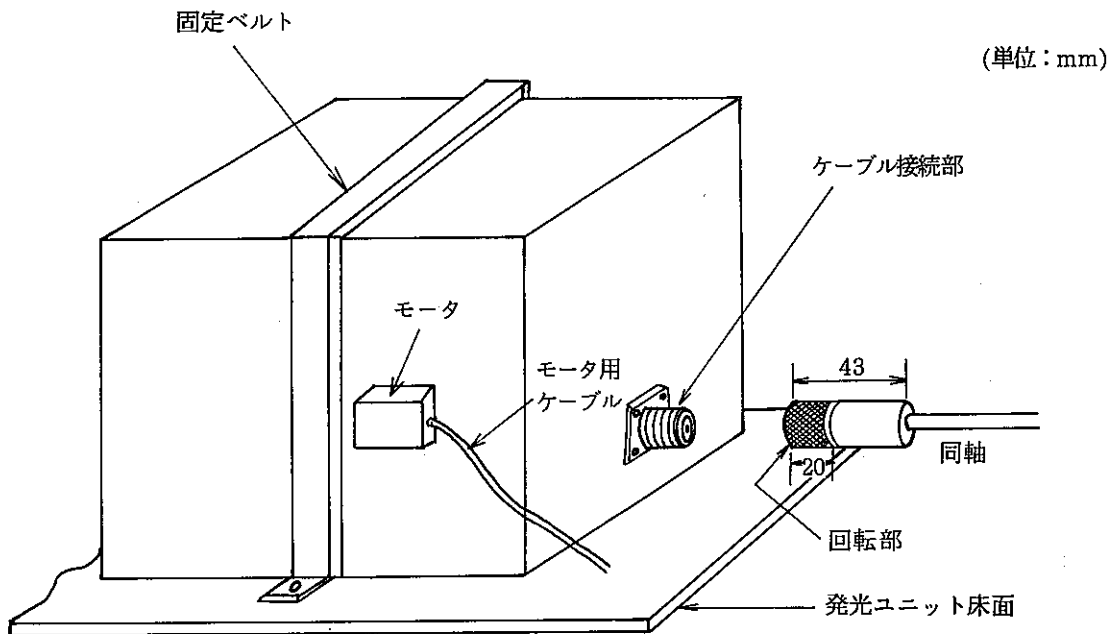


図-14 同調結合器と同軸ケーブルの接続

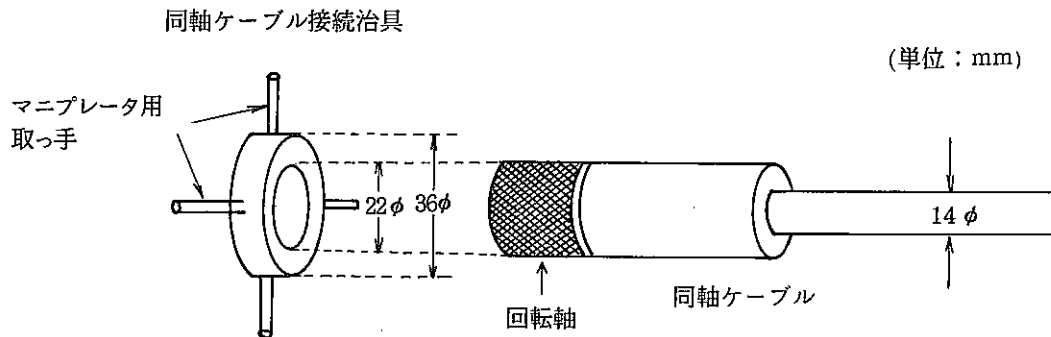


図-15 同軸ケーブル接続治具

② 同調用モータケーブルとの接続

同調結合器には、図-14に示すように、同調（マッチング）のためのモーターが側面に付き、そのモータ駆動用ケーブルは、コントロールユニット（セル外設置ユニット）に接続されている。モーターとそのケーブルとの接続は、モータ部の改造を行うより、ケーブル途中での接続を行う方が簡単のため、今回の改造では、この接続方法を除くこととした。

③ 発光ユニット床面との接続

同調結合器は、図-14に示すように、発光ユニット床面に、固定ベルトにより固定されている。これをマニプレータによって着脱・固定が可能となるように、図-16に示すように、発光ユニット床面に、同調結合器取付台を付けた。ここには、遠隔操作で、同調結合器がセッティングしやすくするため、ガイド板と、固定用ネジが付いており、このネジをマニプレータで絞めつけて確実な固定が行えるようになっている。また、同調結合器には、マニプレータ用の取っ手を付け、簡単に、移動ができるようにした。

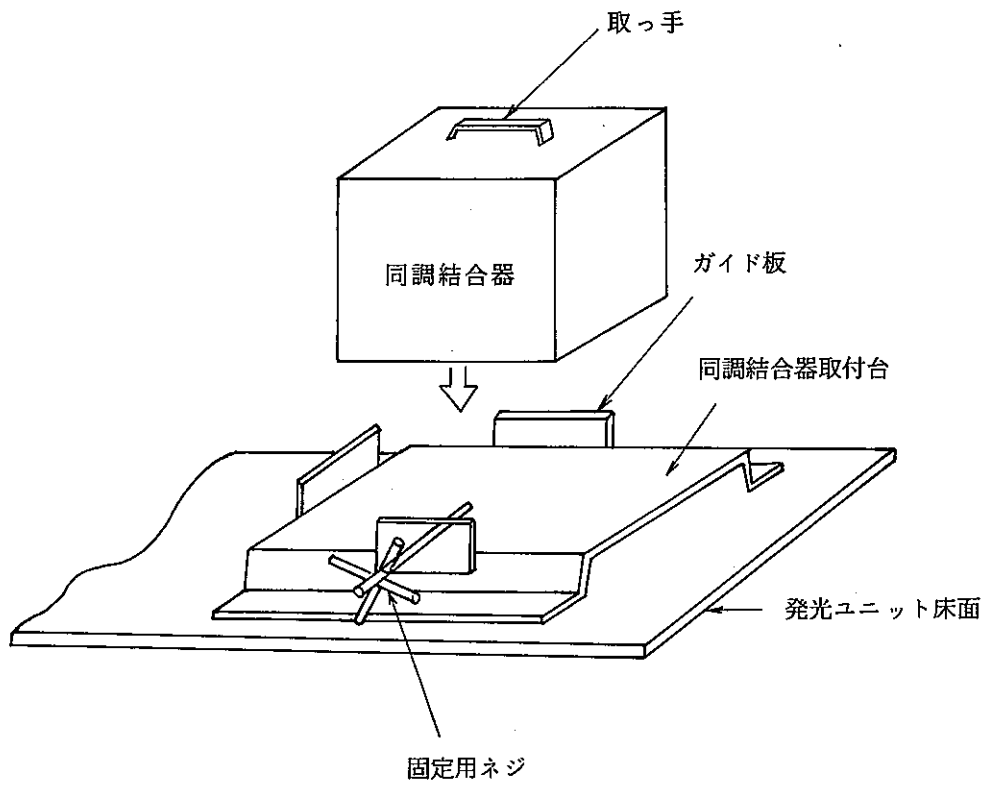


図-16 同調結合器と発光ユニット床面との接続

5.2 試料導入・励起系（トーチ、チャンバー、ネブライザー）の改造

試料導入・励起系は、図-17において、トーチ、チャンバー、ネブライザーより成っている。

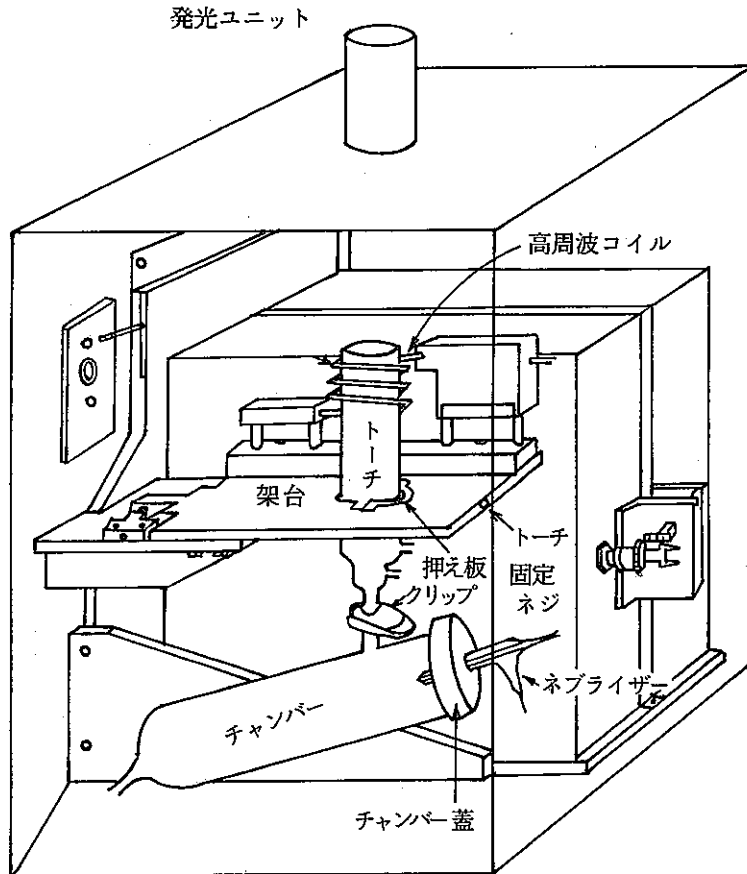
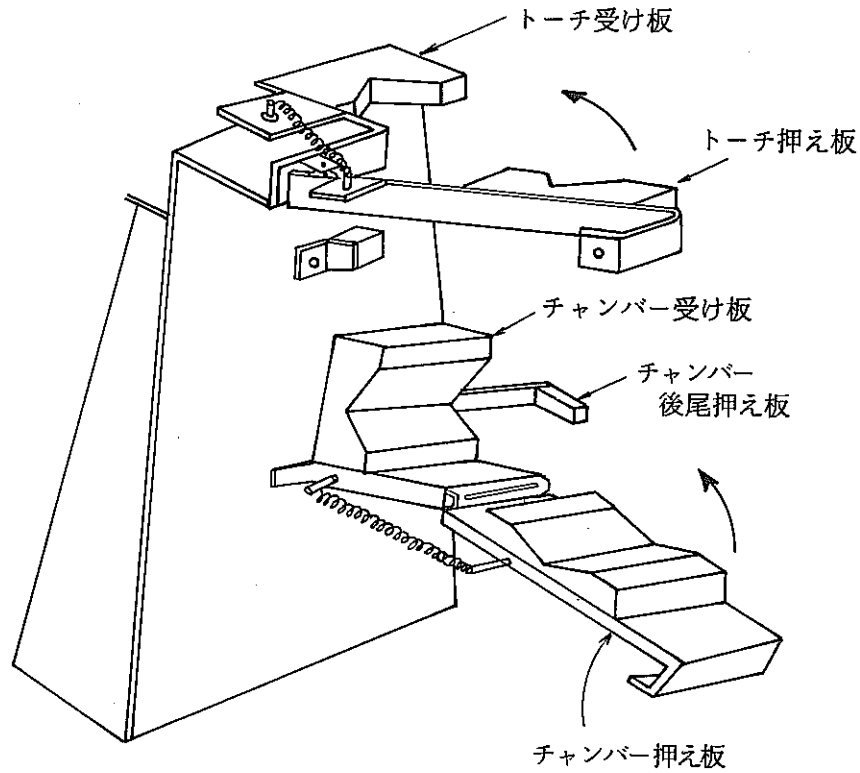


図-17 試料導入・励起系

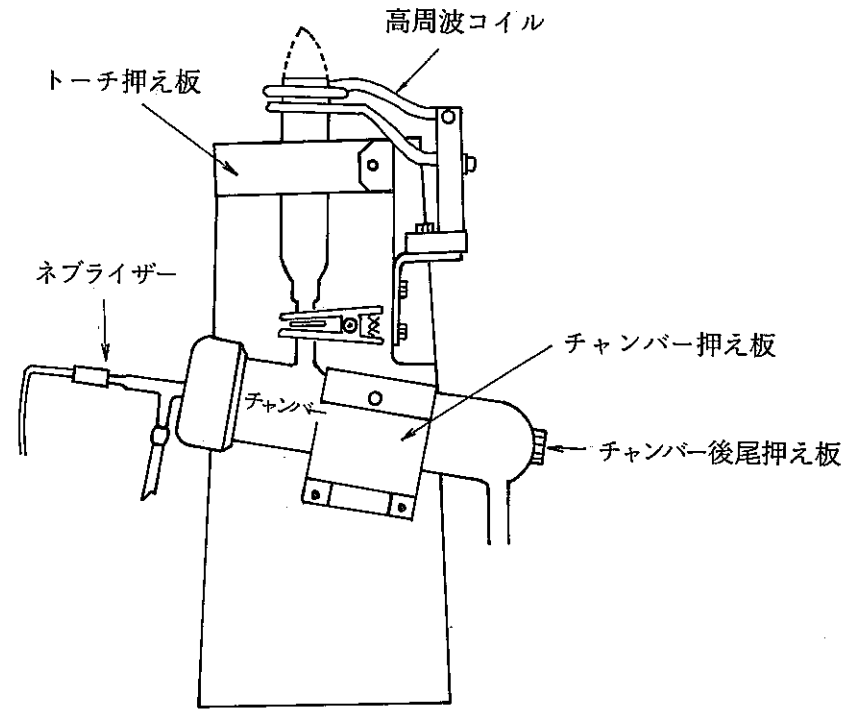
(島津製 ICPQ-1000 II型)

島津製 ICPQ-1000 II型の場合、これらの固定は、トーチ固定ネジを回し、押え板でトーチを架台に固定している。そして、トーチとチャンバーは、クリップを用いて接続し、チャンバーとネブライザーは、チャンバー蓋にネブライザーを差し込み接続している。

この方式の場合、トーチのみが架台に固定されているので、安定性が悪く、たとえば、前後、左右、上下に動いた場合、それに連動して、トーチも動き、トーチと高周波コイルとの間隔（高周波コイルとトーチの中心位置決め調整やトーチ先端と高周波コイルの高さ調整）は、非常に細かな作業を必要とする。これらの調整は、人間の手で、位置を確認しながら行うことは可能であるが、マニプレータでは不可能であり、また、トーチの交換も不可能である。そこで、この試料導入・励起系を、マニプレータによって確実に調整、交換が行えるように、試料導入・励起系取り付け台を製作した。これを図-18に示す。



(試料導入・励起系設置前)



(試料導入・励起系設置後)

図-18 試料導入・励起系取り付け台

図-18において、トーチは、トーチ受け板にセットされた後、バネ式トーチ押え板によって固定される。そして、受け板、押え板とも構がきってあり、固定の確実性を担保している。また同様に、チャンバーも構を切った受け板と押え板によって固定される。さらに、チャンバー固定には、左右の動きを無くすため、後尾押え板を付けており、これらによって、チャンバーは、上下、左右・前後が確実に固定できるようになっている。

5.3 光軸系の改造

通常、実験室内でICP発光分光分析装置を使用する場合、発光ユニット（プラズマ光源）と分光器は、光軸をそろえるため近接して（一体化して）設置され、プラズマによって励起発光された光は、図-19に示すように、集光レンズによって集光され、分光器の入口スリットに導かれ測定される。しかし、セル内分析用としては、光ファイバーを利用しなければならないため、マニプレータ操作が可能な光ファイバー用光軸調整システムを検討する必要がある。

図-20は、このために試作した光軸調整治具の垂直断面図である。

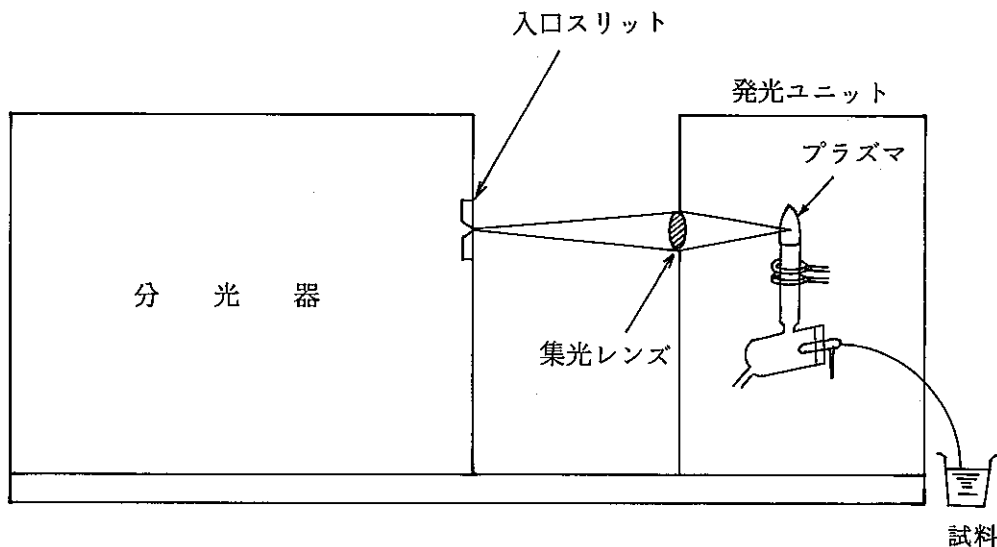


図-19 ICP発光分光分析装置の光軸系

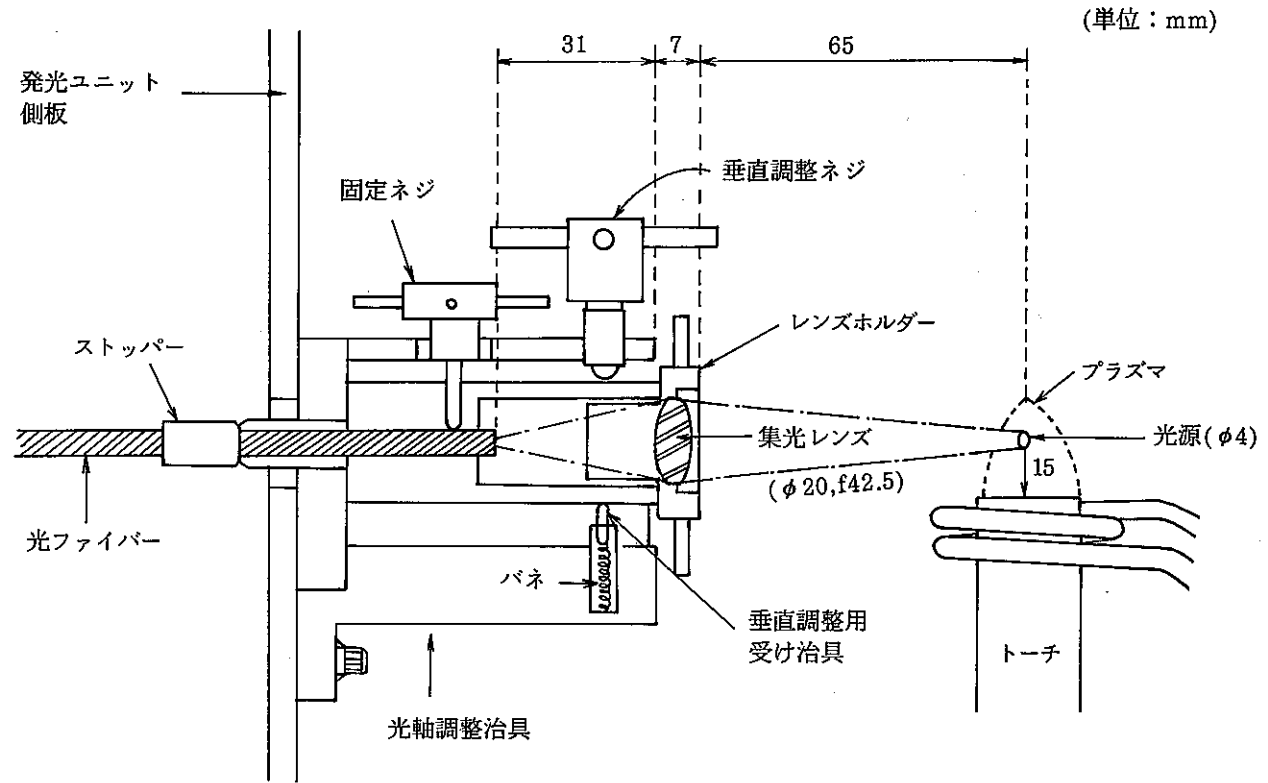


図-20 光軸調整治具垂直断面図

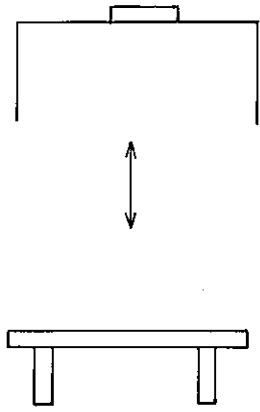
光ファイバーは、固定ネジによって光軸調整治具本体に固定される。また光ファイバーには、ストッパーが付いていて、ここまで光ファイバーを差しこむと、ファイバー先端と集光レンズの距離が決まるようになっている。また、垂直方向の光軸調整は、垂直調整ネジと、バネを組み込んだ垂直調整受け治具によって、ネジを絞めつけたり弱めたりすることで行えるようになっている。そして、水平側も同じ機構になっている。

プラズマ炎の測定ポイントは、このセル内操作型 I C P 発光分光分析装置の場合、トーチ先端からの高さ 15 mm、4 mmφの点をとっている。勿論、各元素等により、その最高励起ポイント（発光強度が最高となる点）は異なるが、多元素を同時に分析する場合は、ある一点に絞って測定しなければならないため、本装置の使用条件（ガス流量、高周波出力等）を考慮して、このポイントを最適ポイントとしている。

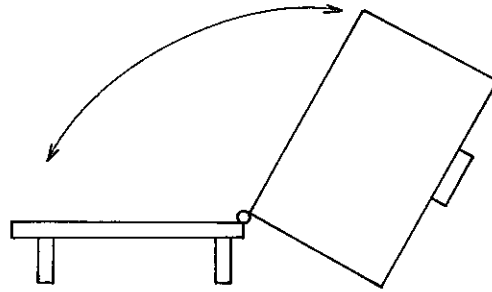
5.4 発光ユニットカバー等の改造

(1) 発光ユニットカバーの製作

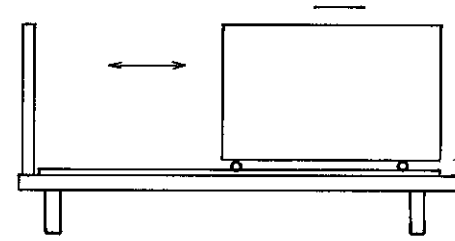
発光ユニットカバーを製作する上で図-21 に示す 3 つのカバー開閉方式を検討した。



① 吊下げ式カバー



② 回転式カバー



③ 可動式カバー

図-21 発光ユニットカバー

① 吊下げ式カバー

最も単純な機構であるが、内部のトーチ、ネブライザ等の交換毎に、大きく（長さ：約760mm、高さ：約400mm、巾：約400mm）、重い（約7kg）カバーを移動するのは非効率的であり、さらに開閉操作中に、カバーを落下させて内部部品を破損させる可能性があるため、実用に合わないと判断した。

② 回転式カバー

回転式カバーは、①の吊り下げ式より小さな力で開閉が可能であるが、やはり落下させたとき、内部部品の破損の恐れや、部品調整のズレ（光軸調整等）の可能性があるので、これも実用にするには難しいと判断した。

③ 可動式カバー

可動式カバーは、開閉を可能とするため、側面を開放系にし、下部に車輪を取り付け、レール上を走行させるようにするものであり、開閉操作も容易であり、また落下の危険性がなくなるという利点がある。

①～③より、発光ユニットカバーは、③の可動式カバーを採用することとして、試作した。図-22にその発光ユニットカバーを示す。

(単位：mm)

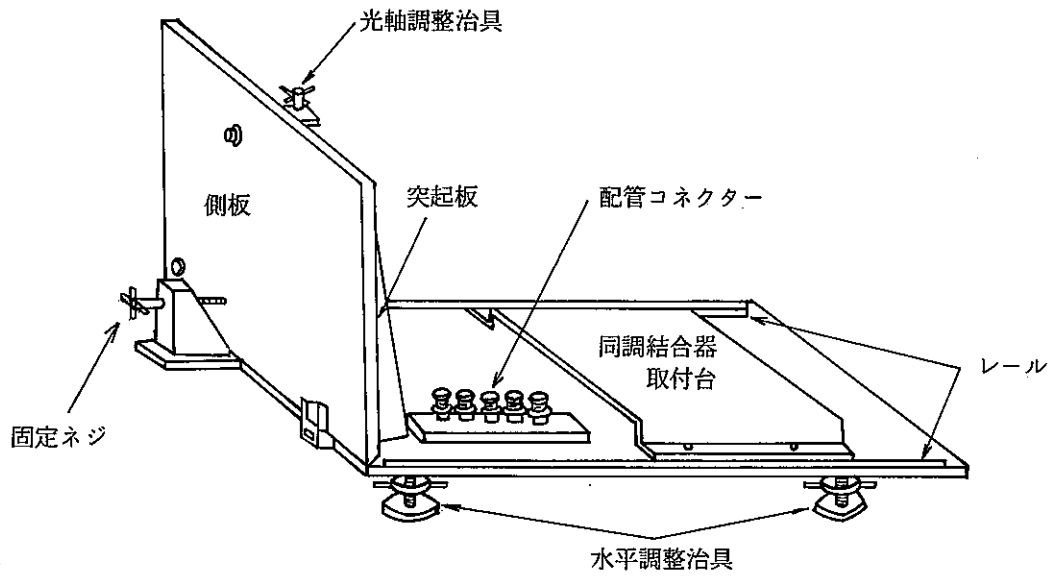
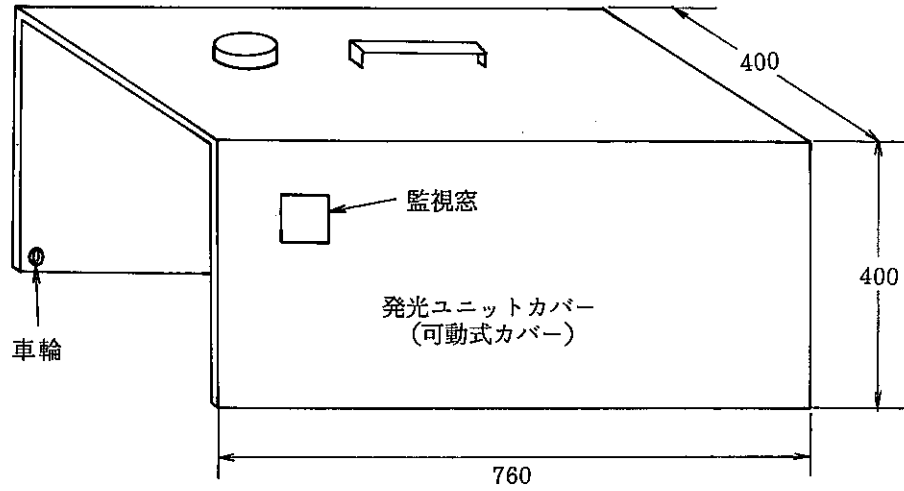


図-22 発光ユニットカバー

発光ユニットカバーは、側板付発光ユニット床面と、可動カバーにより構成されている。側板付発光ユニット床面の側板部には 5.3 で述べた光軸調整治具の他に、突起板があり、固定ネジをマンピレーターで締めつけることによって垂直になると固定されるようになっている。反対にネジをゆるめると、側板は外側に倒れ、内部部品の交換・調整作業スペースが広がるようになっている。分析操作は、側板を垂直に固定し、可動カバーにより内部を密閉して行い、部品の交換等は、側板を外側に倒し、可動カバーを水平移動し、内部スペースを広げて行うことになる。

また、発光ユニット床面には、可動カバー用のレール、同調結合器取り付け台、配管コネクタ部、水平調整治具が取り付けられている。配管コネクタ部は、内部部品（トーチ、ネブライザー、高周波コイル）と発光ユニット外部からの配管とを接続するためのものであり、マンピレーターによる簡単な接続が可能となるクイックコネクタを採用している。コネクタは5つあり、そのうち3つがアルゴンガス配管（キャリアガス、プラズマガス、冷却ガス）用、2つが冷却水配管（高周波コイルの冷却用で I N と O U T）用である。また、水平調整治具は、発光ユニットの水平を調整するために取り付けられている。

(2) 水位調整管

島津製 I C P 発光分光分析装置の場合、図-23 のように、チャンバーからドレンへ行くドレンチューブの途中に、U字型水位調整管が設置される。

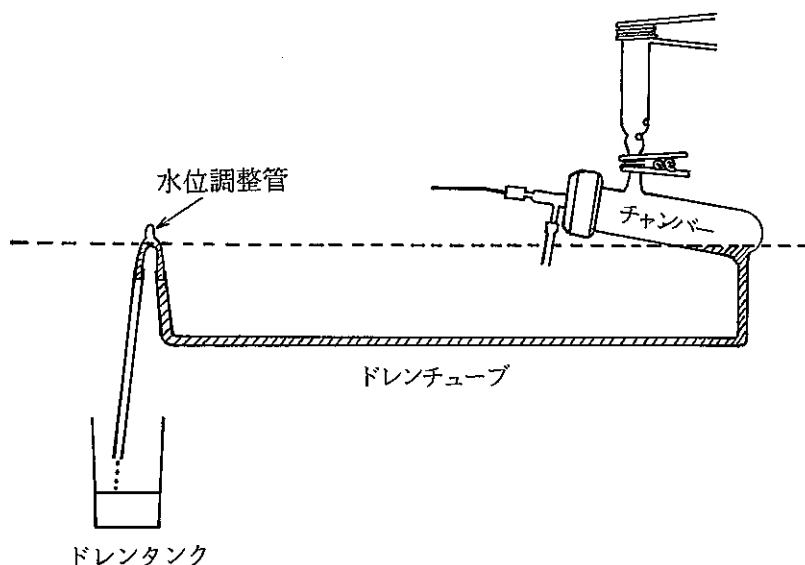


図-23 水位調整管

この水位調整管は、チャンバー内の水位を一定にし、これにより、チャンバー内圧力を一定として、プラズマ中への試料導入効率を一定にするためのものである。もしもこの水位調整管がなければ、チャンバーからドレンへの系が開放系となり、プラズマ側より、ドレン側の方が負圧となって、微細試料粒子は、ドレン側に入っ
て、プラズマ側へ行かなくなり、試料の励起発光ができなくなってしまう。そこで、この水位調整管が付いているのであるが、メーカーによっては、ドレン側の負圧を避けるため、図-24に示すように、ドレンチューブを直接ドレンタンクの廃液中に浸してこれを防ぐ方法をとっている。

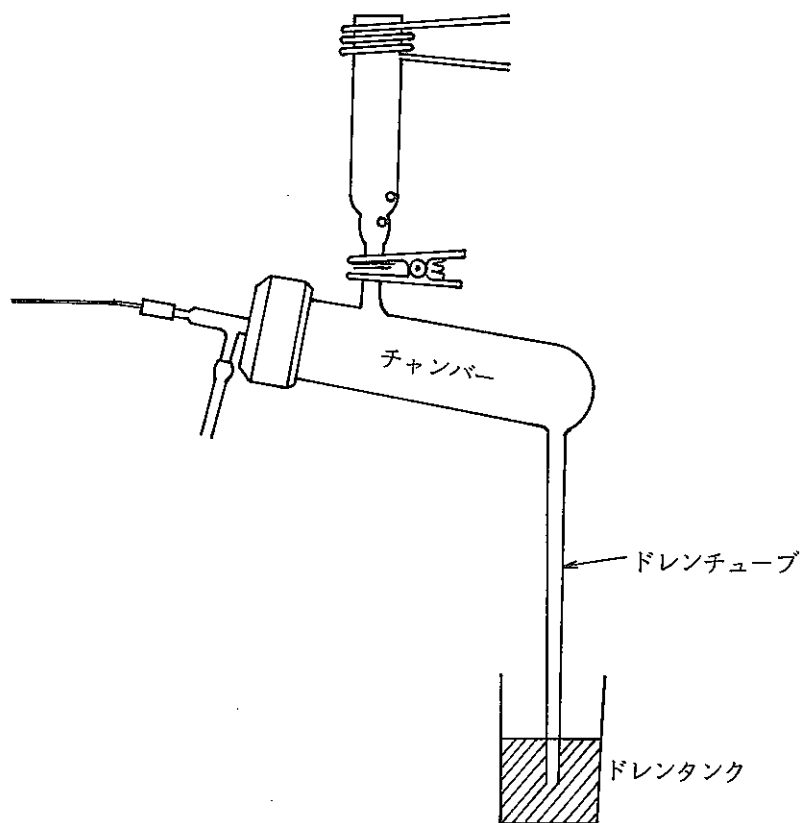


図-24 水位調整

セル内に設置する部品は、可能な限り少なくすることが望ましいため、島津製 ICPQ-1000 II 型を基本モデルとして改造を行っているセル内操作型 ICP 発光分光分析装置について、水位調整管の必要性を検討した。

図-25 に示すように、①水位調整管を取り付けた状態（標準状態）、②水位調整管を取り外した状態（開放状態）、③水位調整管を取り外し、ドレンチューブをドレンタンクの廃液中に浸した状態（チャンバとドレンタンクの液面までの距離 50 cm）、④③と同じで、距離 100 cm の状態で、Mn 10 ppm を 10 回測定した。その結果を、表-1 に示す。

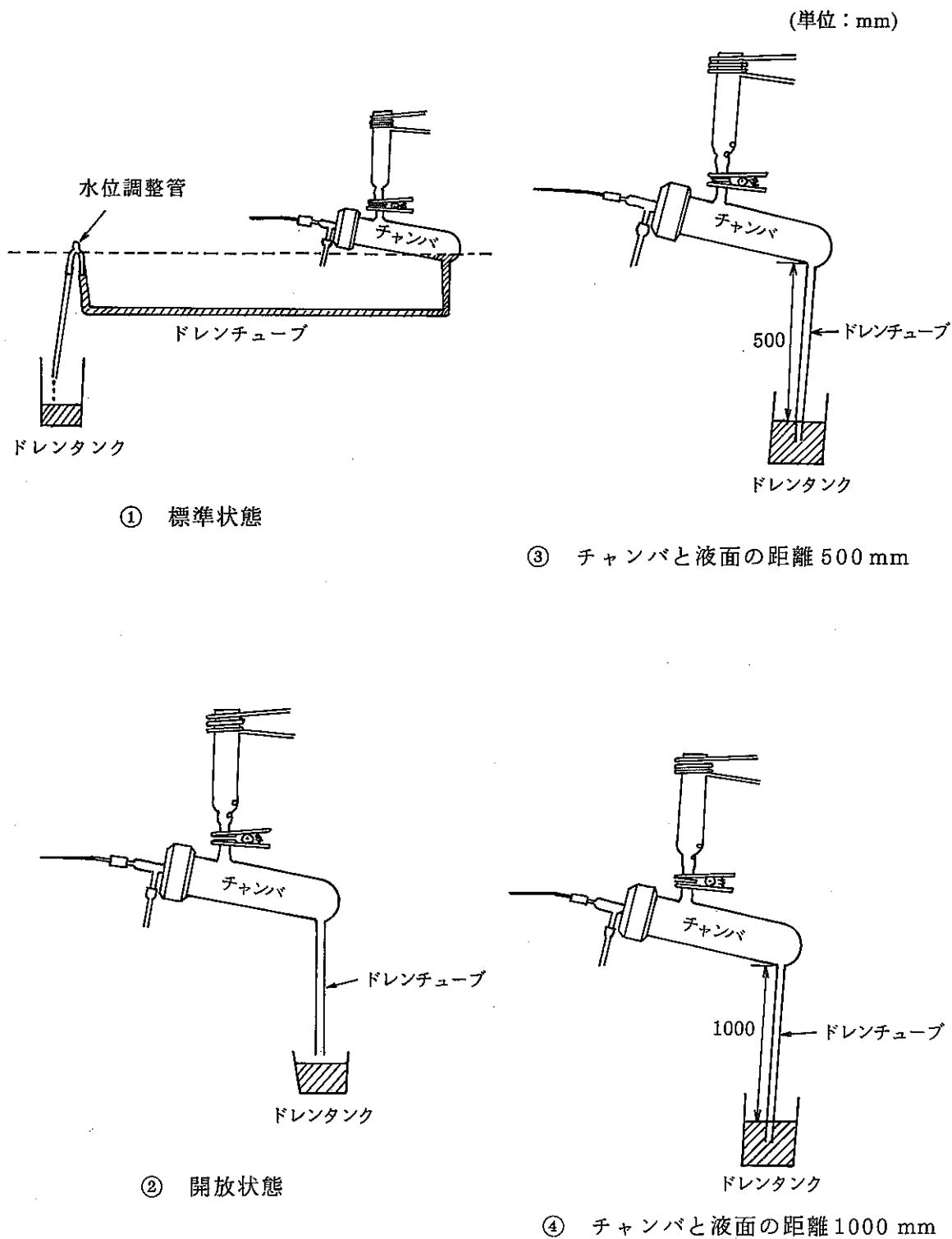


図-25 水位調整管の検討

表-1 水位調整管の必要性検討実験結果

| | ① 標準状態 | ② 開放状態 | ③ チューブ長さ 50 cm | ④ チューブ長さ 100 cm |
|-----------|--------|--------|-------------------|--------------------|
| \bar{x} | 10.2 | 測定不可 | 10.1 | 10.1 |
| σ | 0.063 | - | 0.069 | 0.041 |
| C.V. | 0.62 | - | 0.071 | 0.42 |

n = 10

この結果より、水位調整管のかわりに、ドレンタンク側にチューブを浸すことによって、十分な分析が可能であることがわかる。したがって、セル内操作型 ICP 発光分光分析装置には、水位調整管を取り付けないこととした。

(3) イグナイター

4.2 で述べたようにイグナイターは、そのケーブルの先端の改良が必要であり、図-26 のように改良した。

先端を、環状形からクリップ型に変更することにより、マニプレータ操作が可能となっている。

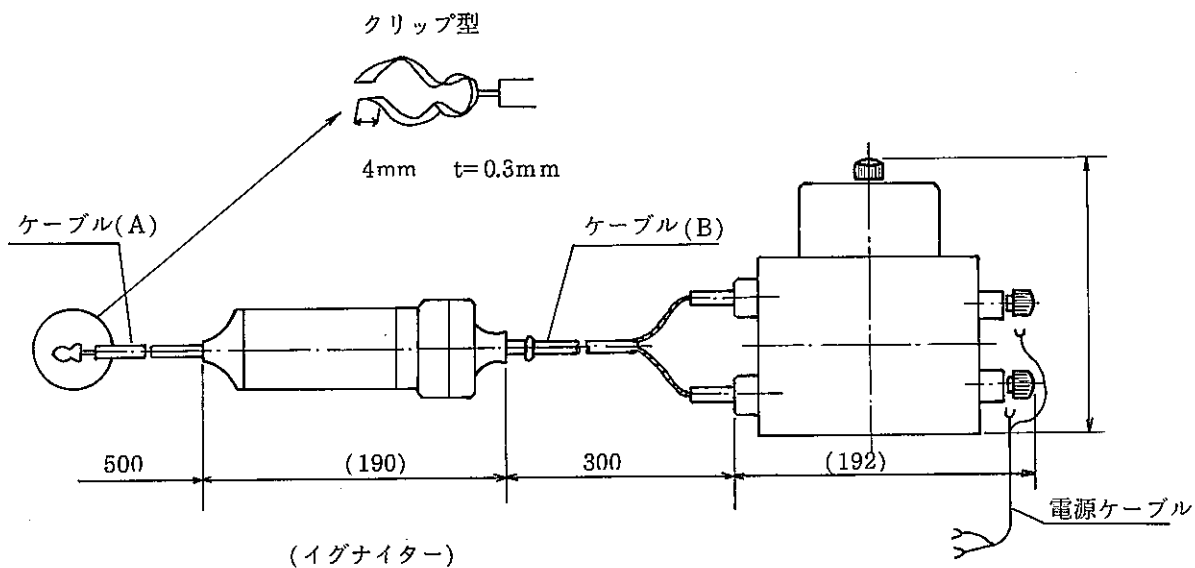


図-26 イグナイター

5.5 セル内操作型発光ユニット

5.1～5.4まで各部品を検討・試作したが、最後に、セル内操作型発光ユニット全体を、図-27と写真-2に示す。

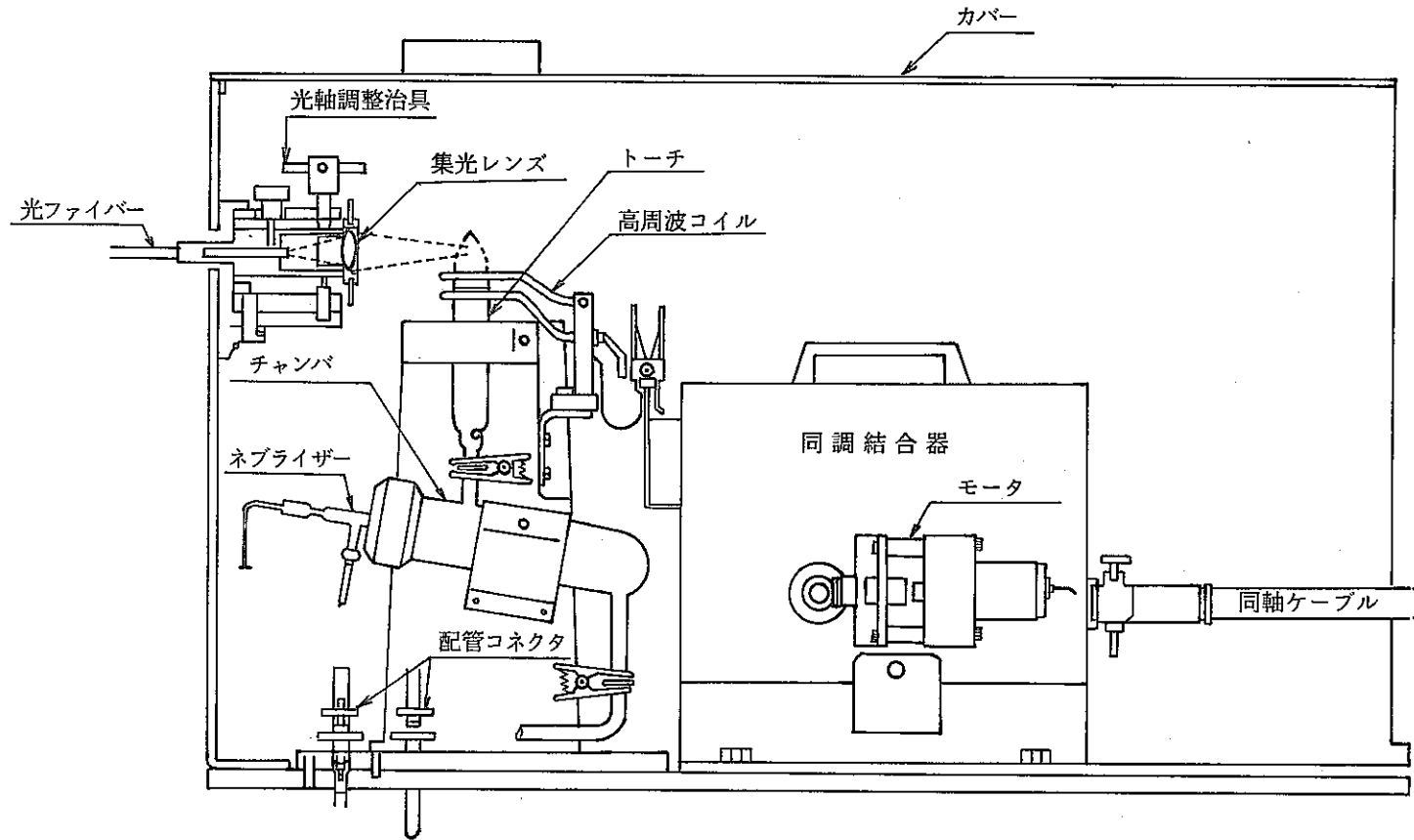


図-27 遠隔操作型発光ユニット概略図

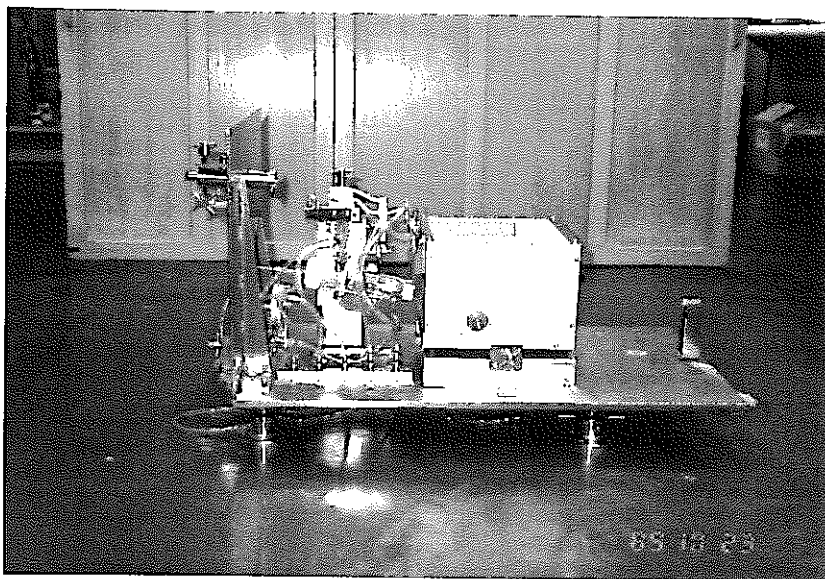


写真-2 遠隔操作型発光ユニット

5.6 セル内操作型 ICP 発光分光分析装置の性能確認試験

これまで、発光ユニットについて各種改造を実施したが、これらの改造が分析性能に影響を与えるかどうか、またどの程度の性能を有しているかどうかを把握するため、実際に試料を分析し確認した。

(1) 試験項目及び方法

各種光ファイバーを用いて、5つの元素（B, Mn, Mo, Ru, La）について以下の項目を試験した。

① 検量線作成

各元素濃度を段階的（0, 1, 5, 10, 20 ppm）に変化させ、各々の検量線を作成した。

② 検出下限

上記検量線の直線性を確認した後、その直線範囲の最高濃度を上限としてブランク値を10回測定し、検出下限を求めた。

③ 分析精度

Mn 及び Mo の低濃度（1 ppm）、高濃度（10 ppm）を各々10回測定し、分析精度を求めた。

④ 安定性

B（100 ppm）及び Ru（20 ppm）の光強度を15分間連続測定し、分析装置の安定性を求めた。

(2) 試験装置

セル内操作型 ICP 発光分光分析装置

① 発光部

セル内操作型発光部

- 高周波電源 …… 周波数 : 27.12 MHz
発振器 : 水晶制御式
発振器出力 : 2 kW
- 発光部 …………… トーチ : 石英製3層式
ネブライザー : 容量結合形
ガス制御 : 3流路方式

② 分光器

変形ツェルニターナ型エシエル回折格子

- 焦点距離 : 0.75 m
- 逆線分散 : 0.061 nm/mm (200 nm)
0.122 nm/mm (400 nm)
- 波長範囲 : 190 ~ 800 nm

③ 測光方式

光電測光法

④ 光伝送方式

光ファイバー (直径: 10 mm, 長さ 2 m)

- バンドルファイバー (素線数: 48 本, コア径 / ファイバ径
= 100 μm / 125 μm)
- バンドルファイバー (素線数: 12 本, コア径 / ファイバ径
= 200 μm / 250 μm)
- 単芯ファイバー (素線数: 1 本, コア径 / ファイバ径
= 800 μm / 1000 μm)
- イメージファイバー (素線数: 約 10000 本, コア径 / ファイバ径
= 9 μm / 13 μm)

(3) 測定条件

- 高周波出力 : 1.2 kW
- プラズマ観測点 : トーチ上端より 15 mm の高さ位置
- キャリアガス : 1.0 l/min
- プラズマガス : 1.5 l/min
- 冷却ガス : 10.5 l/min
- 分光器入口スリット : 200 μm × 500 μm
- 分光器出口スリット : 200 μm × 500 μm
- フォトマルゲイン : 550 V

(4) 試験結果及びまとめ

① 検量線

図 - 28 ~ 31 に, 各種ファイバー毎, 各種元素毎の検量線を示したが, 全て良い直線関係が得られた。

② 検出下限

検出下限は、以下の方法によって求めた。

- (i) ブランク試料を10回測定し、その測定値（発光強度）から標準偏差 σ を求める。
- (ii) ブランク値に比べ十分に強度が大きく、かつ信号強度と濃度との間に直線関係が成り立つ範囲の濃度Cの試料を使って信号強度xを測定し、単位濃度に対する信号強度 $S = x/C$ を求める。
- (iii) 検出下限は $C = 2\sigma/S$ で計算する。

結果を表-2に示す。本試験では、検出下限は、1 ppm以下と低く、優れた検出性能があることがわかった。

表-2 検出下限

(単位：ppm)

| 元素 (波長: nm) | B (249.8) | Mn (257.6) | Mo (313.3) | Ru (349.9) | La (398.9) |
|--|--------------|---------------|---------------|---------------|---------------|
| ファイバー | | | | | |
| バンドルファイバー (コア径 / ファイバ径 = 100 μ m / 125 μ m, 素線数 48本) | 0.28 | 0.03 | 0.32 | 0.21 | 0.09 |
| バンドルファイバー (コア径 / ファイバ径 = 200 μ m / 250 μ m, 素線数 12本) | 0.05 | 0.01 | 0.02 | 0.02 | 0.01 |
| 単芯 ファイバー (コア径 / ファイバ径 = 800 μ m / 1000 μ m, 素線数 1本) | 0.03 | 0.01 | 0.02 | 0.01 | 0.003 |
| イメージファイバー (コア径 / ファイバ径 = 9 μ m / 13 μ m, 素線数約 1万本) | 0.04 | 0.03 | 0.02 | 0.01 | 0.01 |

③ 分析精度

分析精度は、Mn (257.6 nm) 及び Mo (313.3 nm) について各々 1 ppm, 10 ppm 濃度を 10 回繰返し測定し求めた。結果を表-3に示す。本試験においては、全ての光ファイバーについて、Mn, Moとも、1 ppmのときの分析精度は5%以下、10 ppmでは、1%以下という優れた分析精度が確認された。

表-3 分析精度

(単位: ppm)

| ファイバ 元素 濃度 測定 | バンドル(1) ※① | | | | バンドル(2) ※② | | | | 単 芯 | | | | イメー ジ | | | |
|------------------------|------------|------|------|------|------------|------|------|------|------|------|------|------|-------|------|------|------|
| | Mn | | Mo | | Mn | | Mo | | Mn | | Mo | | Mn | | Mo | |
| | 1 | 10 | 1 | 10 | 1 | 10 | 1 | 10 | 1 | 10 | 1 | 10 | 1 | 10 | 1 | 10 |
| 1 | 1.05 | 10.1 | 0.86 | 9.63 | 1.03 | 10.1 | 1.03 | 10.0 | 1.02 | 10.1 | 0.99 | 10.1 | 1.02 | 10.0 | 0.96 | 9.94 |
| 2 | 1.02 | 10.2 | 0.89 | 9.74 | 1.03 | 10.1 | 1.01 | 10.2 | 1.03 | 10.1 | 0.97 | 10.1 | 1.02 | 10.0 | 0.94 | 9.96 |
| 3 | 1.03 | 10.1 | 0.93 | 9.70 | 1.02 | 10.0 | 1.02 | 10.1 | 1.03 | 10.0 | 0.96 | 10.0 | 1.03 | 10.0 | 0.93 | 10.0 |
| 4 | 1.03 | 10.1 | 0.92 | 9.65 | 1.03 | 10.0 | 1.01 | 10.1 | 1.02 | 10.0 | 0.95 | 10.1 | 1.03 | 10.0 | 0.91 | 10.1 |
| 5 | 0.98 | 10.2 | 0.89 | 9.83 | 1.03 | 10.0 | 1.03 | 10.1 | 1.03 | 10.1 | 0.93 | 10.0 | 1.02 | 10.1 | 0.90 | 10.1 |
| 6 | 1.01 | 10.1 | 0.98 | 9.90 | 1.03 | 10.0 | 1.03 | 10.0 | 1.02 | 10.1 | 0.94 | 10.1 | 1.02 | 10.1 | 0.88 | 10.1 |
| 7 | 1.00 | 10.1 | 0.96 | 9.63 | 1.02 | 10.0 | 1.01 | 10.1 | 1.03 | 10.1 | 0.92 | 10.1 | 1.03 | 10.1 | 0.90 | 10.0 |
| 8 | 1.00 | 10.1 | 0.96 | 9.93 | 1.03 | 10.0 | 1.00 | 10.1 | 1.02 | 10.0 | 0.92 | 10.1 | 1.02 | 10.1 | 0.86 | 10.0 |
| 9 | 1.02 | 10.2 | 0.93 | 9.71 | 1.03 | 10.0 | 1.00 | 10.1 | 1.03 | 10.1 | 0.91 | 10.2 | 1.02 | 10.1 | 0.86 | 10.0 |
| 10 | 1.01 | 10.2 | 0.98 | 9.88 | 1.03 | 10.0 | 1.02 | 10.0 | 1.03 | 10.1 | 0.91 | 10.2 | 1.03 | 10.0 | 0.86 | 10.0 |
| \bar{x} | 1.02 | 10.1 | 0.93 | 9.76 | 1.03 | 10.0 | 1.0 | 10.1 | 1.03 | 10.1 | 0.94 | 10.1 | 1.02 | 10.1 | 0.90 | 10.0 |
| σ | 0.02 | 0.05 | 0.04 | 0.12 | 0.004 | 0.04 | 0.01 | 0.06 | 0.01 | 0.05 | 0.03 | 0.07 | 0.01 | 0.05 | 0.04 | 0.06 |
| C.V(%) | 1.96 | 0.50 | 4.30 | 1.23 | 0.34 | 0.40 | 0.98 | 0.59 | 0.97 | 0.50 | 3.19 | 0.69 | 0.98 | 0.50 | 4.44 | 0.60 |

※①…「バンドル(1)」: コア径 / ファイバ径 = 100 μ m / 125 μ m, 素線数 48 本

※②…「バンドル(2)」: コア径 / ファイバ径 = 200 μ m / 250 μ m, 素線数 12 本

④ 安定性

B 及び Ru の光強度を 15 分間連続測定した結果を、図-32 及び 33 に示す。
この結果より、B (100 ppm) の変動は、約 3% 以下、Ru (20 ppm) の変動は、約 5% 以下となり、ICP 光源として十分満足できる安定性が確認された。

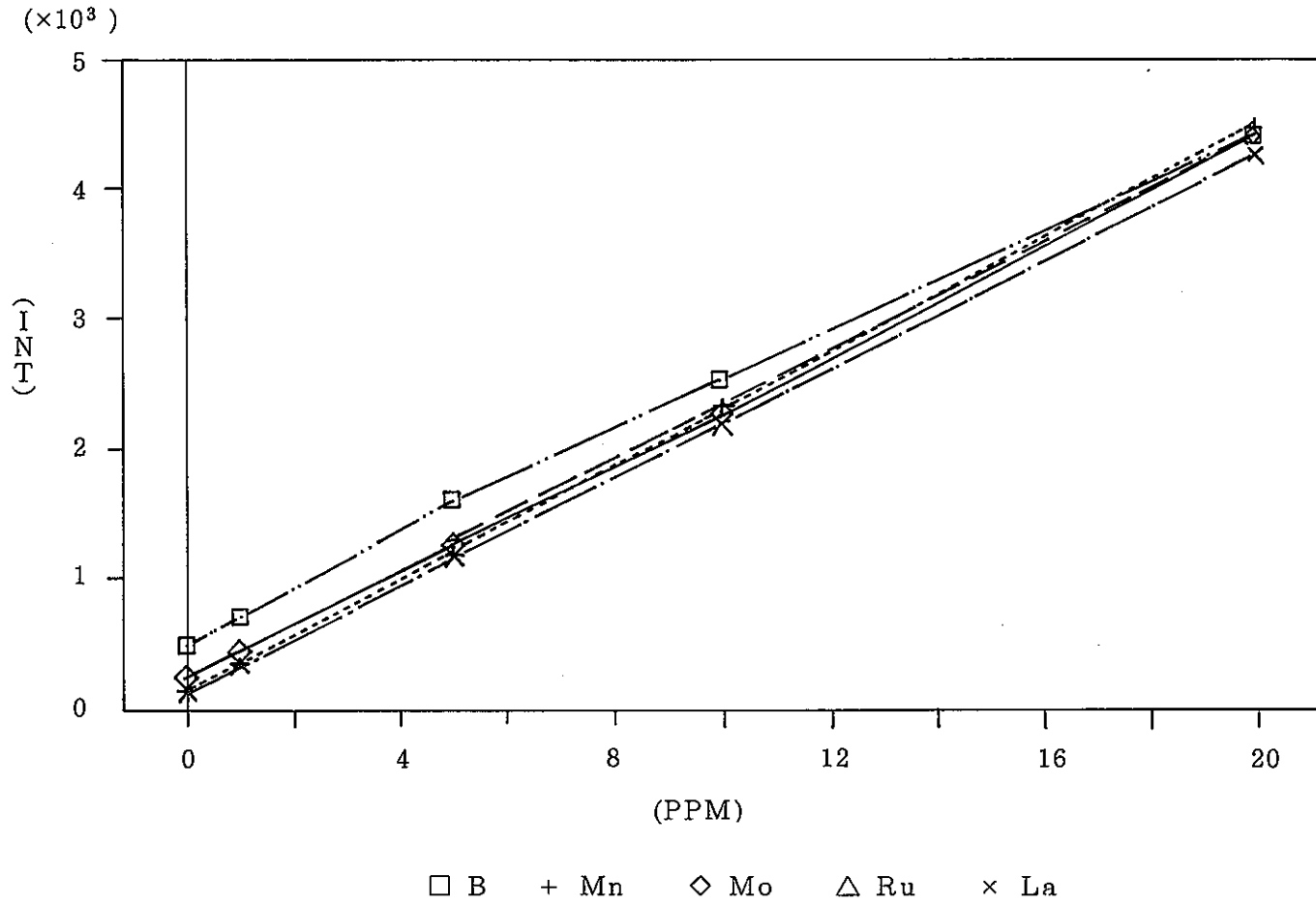


図-28 バンドルファイバー (コア径/ファイバ径 = 100 μ m/125 μ m, 素線数 : 48本) を用いたときの検量線

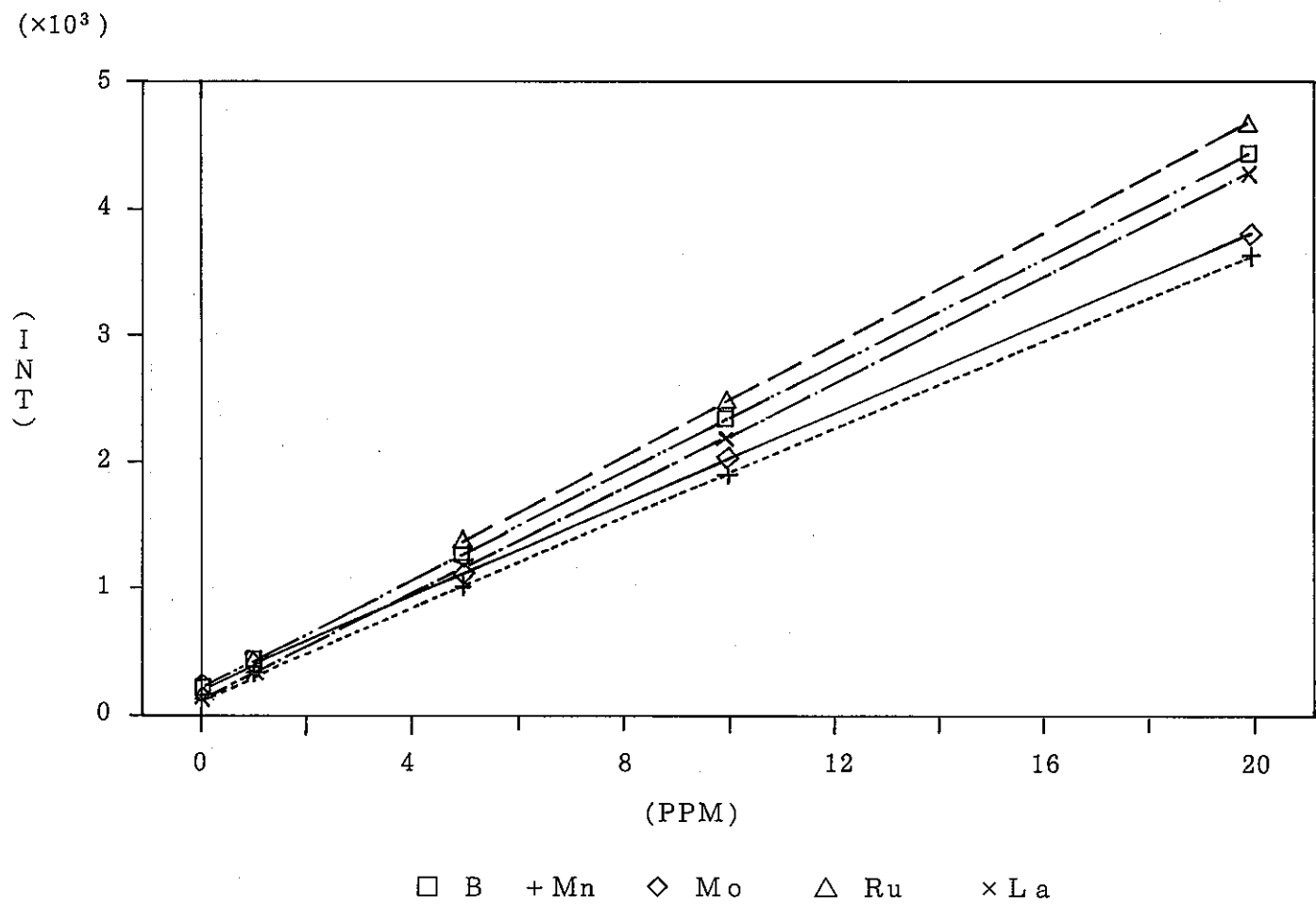


図-29 バンドルファイバー (コア径/ファイバ径 = 200 μ m / 250 μ m, 素線数 : 12 本) を用いたときの検量線

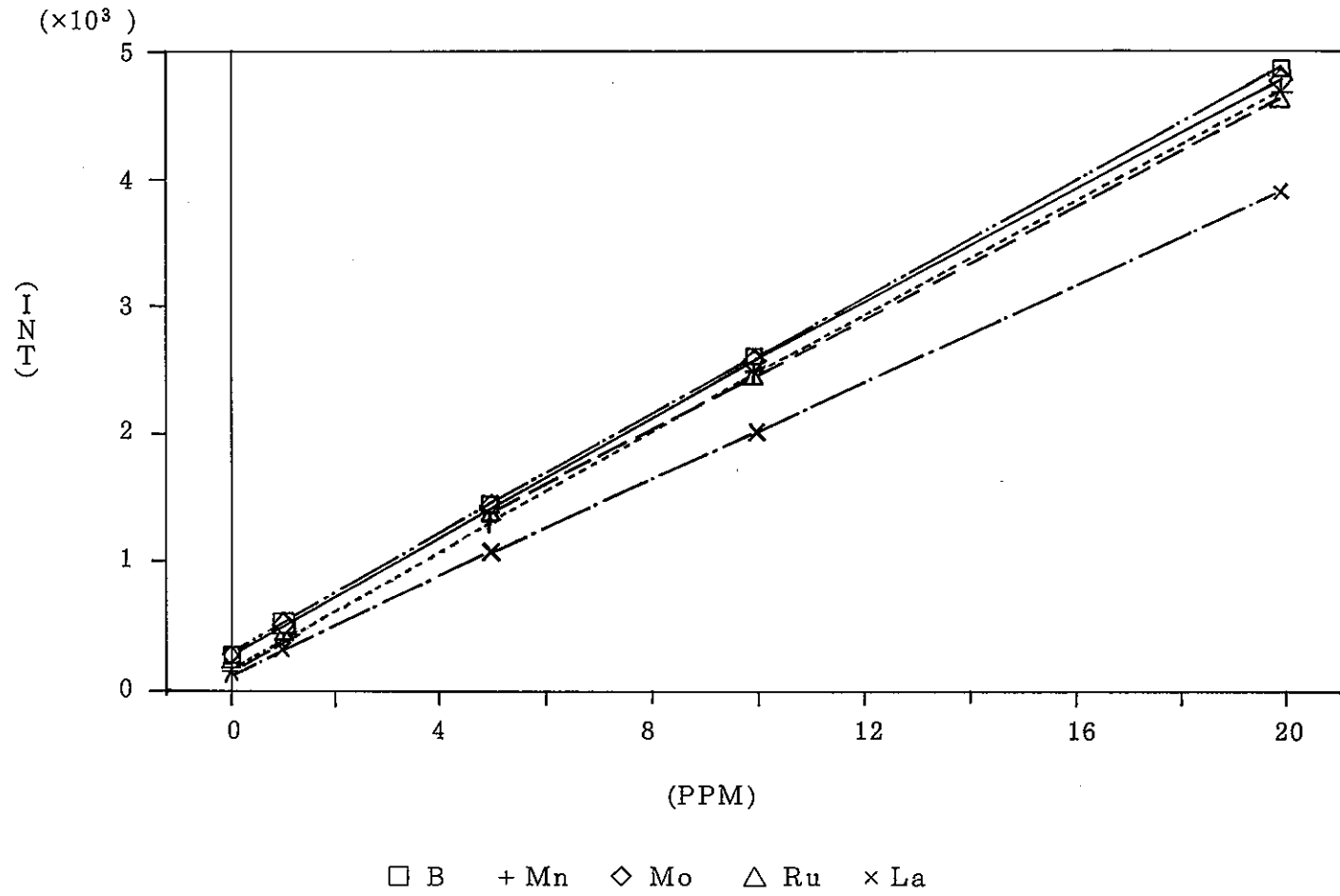


図-30 単芯ファイバーを用いたときの検量線

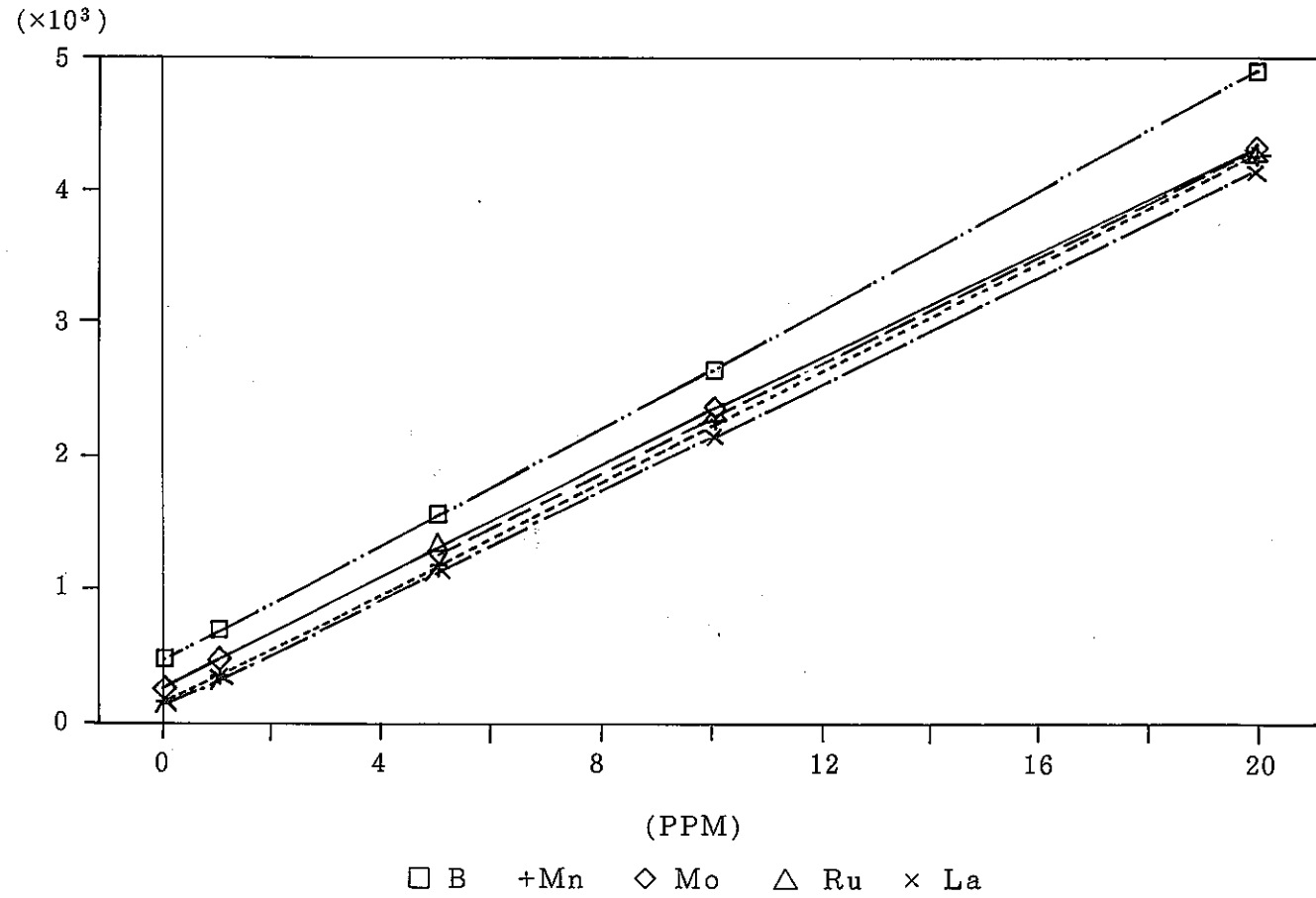


図-31 イメージファイバーを用いたときの検量線

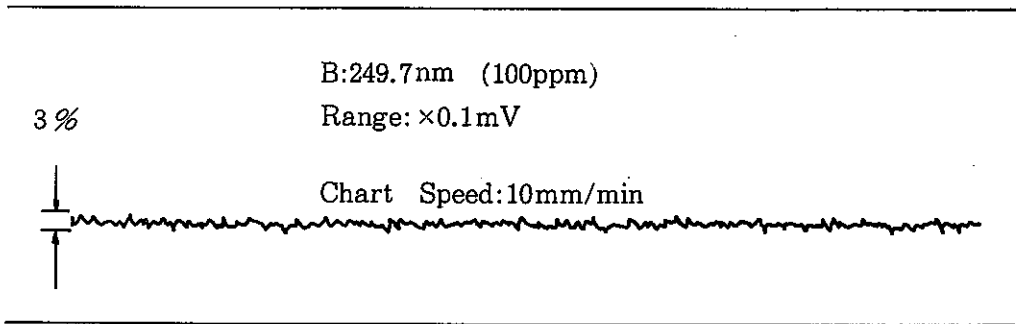


図-32 B (249.7 nm) の光強度連続測定

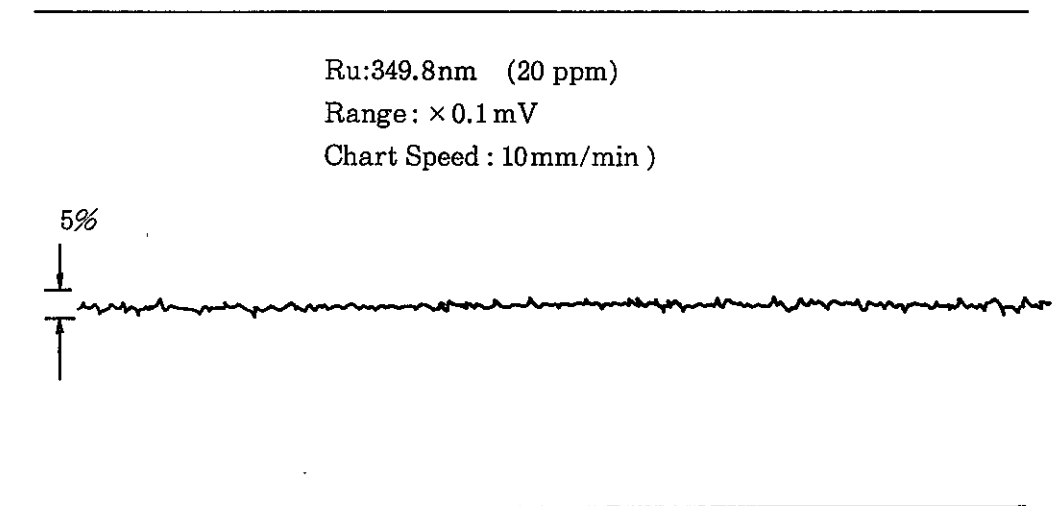


図-33 Ru (349.8 nm) の光強度連続測定

6. 放射線の影響確認試験

セル内操作型 I C P 発光分光分析装置は、4 の開発課題の摘出で述べているように、放射線の影響を確認しておく必要がある。そこで、放射線照射下及び照射後の影響確認試験を実施した。

6.1 放射線照射下での影響確認試験

(1) 試験目的

セル内操作型 I C P 発光分光分析装置は、分析ホットセル内に、同調結合器を内蔵した発光ユニット等を設置し、セル外の高周波電源からの高周波出力コントロールによってプラズマを点灯させ分析光源としている。

同調結合器は、主に空気コンデンサー、真空コンデンサー等のコンデンサー類で構成されているが、分析ホットセルのような放射線環境下では、たとえば、放射線による空気電離作用によって空気コンデンサーの絶縁が切れ、同調機能が不能になって、プラズマ点灯ができなくなる恐れがある。そこで、分析ホットセルを想定し、^(注)約 $2.58 \times 10^{-3} \text{ C/kg} \cdot \text{hr}$ の放射線を照射しながら、それがプラズマコントロールにどのような影響を与えるかを確認する目的で本試験を実施した。

^(注) 分析ホットセルは、主プロセスセルと比較すると、放射線線量率はかなり低い。高レベル放射性物質研究施設 (C P F) の分析セルの平均空間線量率は、約 $1.29 \times 10^{-3} \text{ C/kg} \cdot \text{hr}$ (昭和 63 年 7 月) であり、このことより、照射線量として約 $2.58 \times 10^{-3} \text{ C/kg} \cdot \text{hr}$ を試験照射することとした。

(2) 照射設備

本試験では、動燃東海事業所計測機器校正施設の Cs - 137 照射設備を利用した。¹³⁷Cs γ 線照射装置の線源放射能は、 $1.11 \times 10^{12} \text{ Bq}$ 、 $7.4 \times 10^{10} \text{ Bq}$ 、 $7.4 \times 10^9 \text{ Bq}$ 、 $5.55 \times 10^8 \text{ Bq}$ の 4 種類であり、このうち、 $1.11 \times 10^{12} \text{ Bq}$ 線源を利用した。照射口前面に鉛厚 155 mm 相当の円筒形シャッターがあり、照射時には、これが開いて鉛製コリメータにより中心軸から開き角度 11.3° の円錐状に γ 線が放射される。そして、 $1.11 \times 10^{12} \text{ Bq}$ の線源から 1 m 離れた位置では、約 $2.58 \times 10^{-3} \text{ C/kg} \cdot \text{hr}$ (照射半径約 20 cm) を得ることができる。

(3) 試験方法及び装置

試験装置（セル内操作型 ICP 発光ユニット）に約 $2.58 \times 10^{-3} \text{ C/kg} \cdot \text{hr}$ の γ 線照射が行えるよう図-34 のようにセッティングした後、 γ 線を照射しながら、プラズマの繰返し点灯・消灯作動及び連続点灯試験を実施し、反射波出力等を観測した。尚、本試験時のコントロールユニット操作条件は、標準操作条件で表-4 のとおりである。

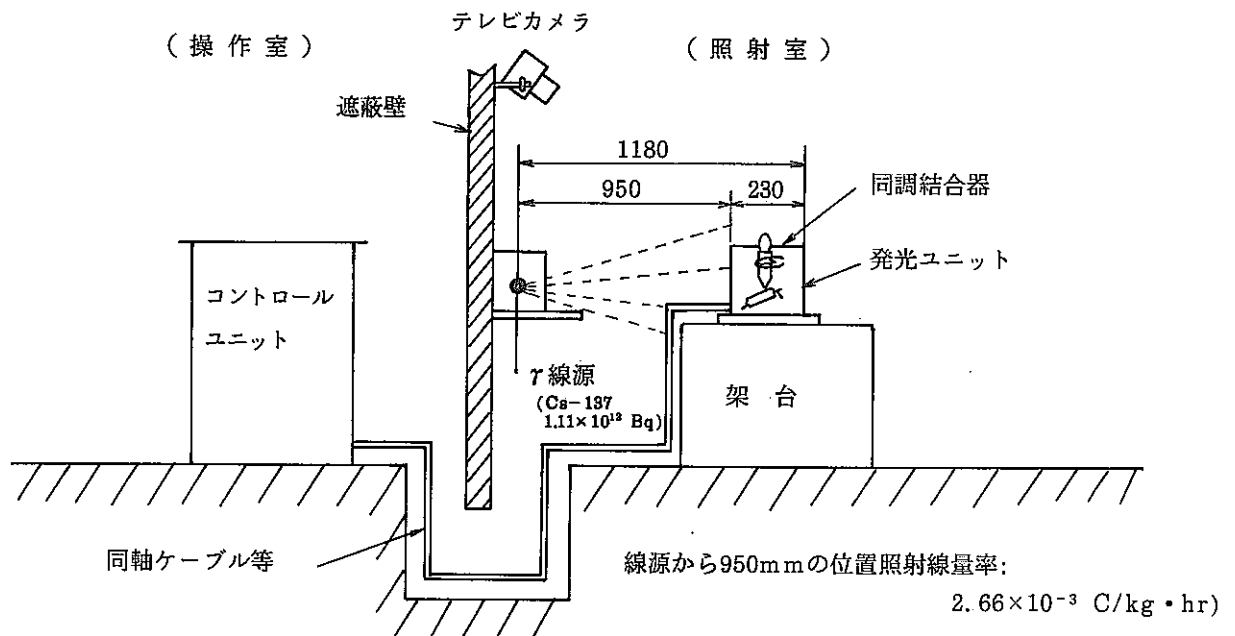


図-34 γ 線照射試験

表 - 4 操作条件

| | |
|----------|--------------|
| キャリアガス流量 | 1.0 ℓ / min |
| プラズマガス流量 | 1.5 ℓ / min |
| 冷却ガス流量 | 10.5 ℓ / min |
| 高周波出力 | 1.2 kW |

(4) 試験結果及びまとめ

連続点灯試験の前後各3回ずつ(計6回)プラズマの点灯・消灯作動を行ったところ全て確実に作動した。また、1時間の連続点灯試験において、10分毎に図-35に示すように反射波出力を観測したが、いずれも2Wで経時変化もなく安定していた。

ICPは、誘導コイル(高周波コイル)をn巻の一次側コイル、プラズマを1巻の二次側コイルとしたトランスにたとえることができる。高周波エネルギーを効率よく伝達し、安定なプラズマを作るためには、誘導コイルを含む発振器のインピーダンスと、プラズマ側のインピーダンスをうまく整合しなければならない。この整合のために設けられているのが同調結合器であり、正常な整合ができないと、定在波が生じ、反射波出力が増大しプラズマが消灯する(セル内操作型ICP発光分光分析装置では反射波出力が約10Wを越えるとプラズマが点灯しなくなる)。

本試験において、反射波出力が安定していたということは、分析ホットセルのような放射線環境下でも同調結合器が正常に作動し、プラズマコントロールが十分に可能であることを示している。

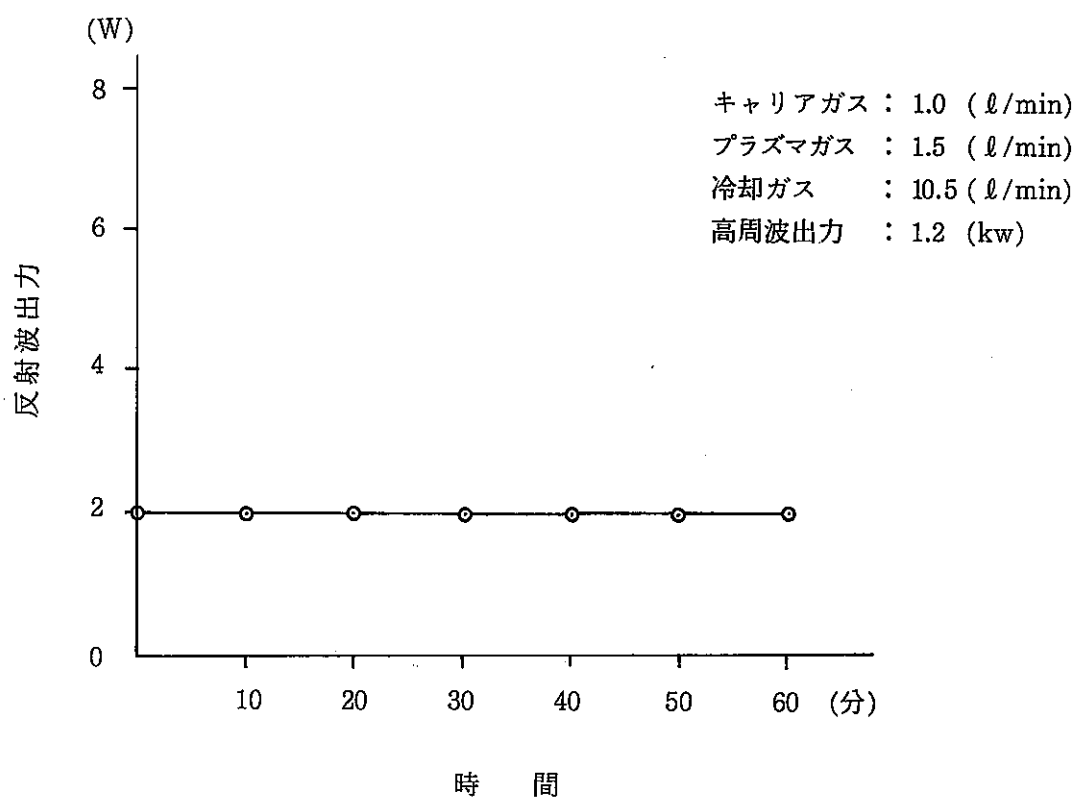


図 - 3 5 反射波出力の経時変化

6.2 放射線照射後の影響確認試験

(1) 試験目的

セル内操作型 I C P 発光分光分析装置は、発光ユニット等の分析セル内に設置するものについては、5で述べたように、各部品がマニプレータによって単独交換可能となるよう考慮されている。したがって、放射線の影響によって、ある部品が劣化し、性能・機能が低下・損失しても、その部品を交換すればよい。しかし、できる限り放射線による劣化が少ないものを選定するのが望ましい。そこで、放射線による性能・機能が低下・損失する恐れのある主な部品について、放射線照射を行い、性能・機能がどの程度影響を受けるかを確認し、耐放射線性に優れた部品を選定する目的で本試験を実施した。

(2) 試験部品

放射線照射に使用する試験部品（被照射部品）を表-5に示す。

表-5 試験部品一覧表

| 部 品 名 | 製 造 社 | 型 式 , 仕 様 | |
|--------|------------------------|---------------------------|--|
| 圧力センサー | Micro Pneumatic Logic社 | FT-LAUD-FL | |
| 開閉センサー | OMRON 社 | GLS-SI | |
| イグナイター | 東京高周波電気炉(株) | 電圧: AC100V, スパーク長: 1~4 cm | |
| 光ファイバー | 三 菱 電 線 (株) | 単芯 ファイバー | 長さ: 2 m, 素線数: 1本 コア径/ファイバ径= 800 μ /1000 μ |
| | | バンドル ファイバー | 長さ: 2 m, 素線数: 12本 コア径/ファイバ径= 200 μ /250 μ |
| | | バンドル ファイバー | 長さ: 2 m, 素線数: 48本 コア径/ファイバ径= 100 μ /125 μ |
| | | イメージ ファイバー | 長さ: 2m, 素線数: 約10000本 コア径/ファイバ径= 10 μ /14 μ |
| | | イメージ ファイバー | 長さ: 2 m, 素線数: 約10000本 コア径/ファイバ径= 9 μ /13 μ |

(3) 照射設備

本試験では、均一な高照射線量が得られる日本原子力研究所高崎研究所Co-60照射施設を利用した。この施設のCo線源は、直径12mm、長さ300mmの棒状で、1本当たり 7.4×10^{13} Bq $\sim 2.22 \times 10^{14}$ Bqの密封線源を約60本使用して、巾1800mm、高さ300mmの板状線源（約 6.96×10^{15} Bq）に組み立てたものであり、照射台は、図-36に示すように板状線源に相對した兩側に配置されている。この線源と被照射部品との距離を調整することにより所定の照射線量を得ることができる。（約130cmで25.8 C/kg・hr）。

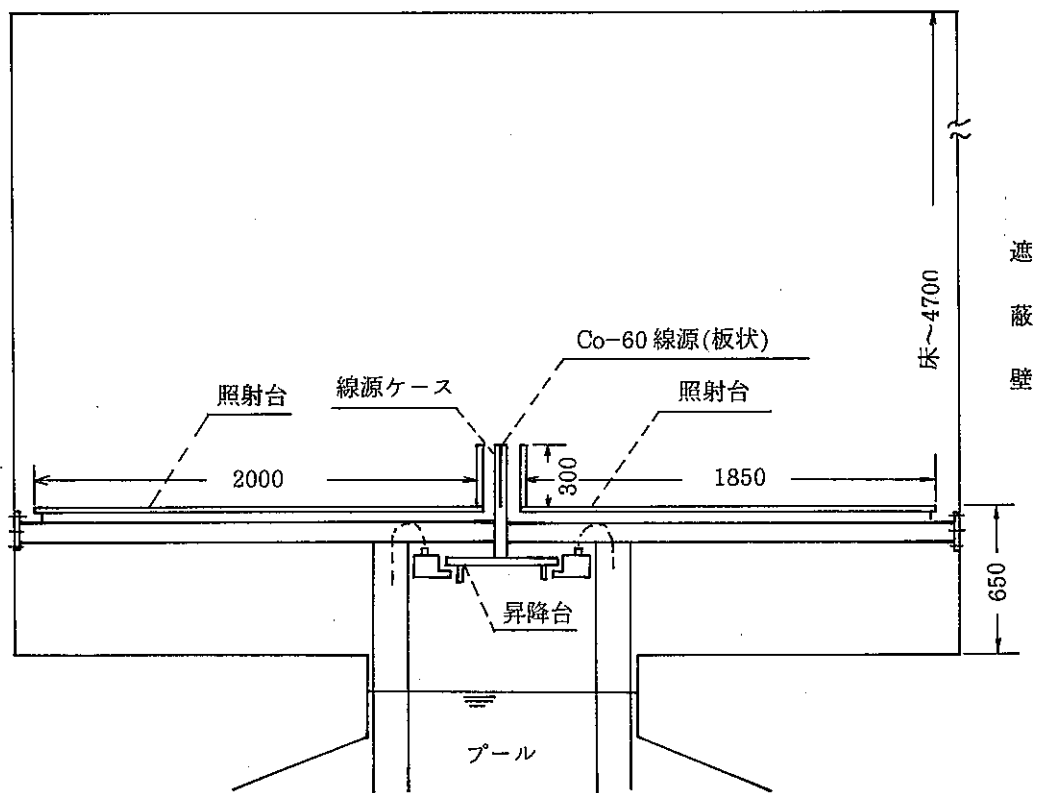


図-36 照射室内略図

(4) 試験方法

① 圧力センサー

圧力センサーは、高周波コイルを循環する冷却水が正常に流れているかどうかを検知するものであり、冷却水循環装置（冷却水タンク）の入口（高周波コイルからの房り側）に取り付けられている。そして、もしも冷却水が循環していない場合は、コントロールユニット（高周波電源部）のインターロックが作動し、高周波出力が出ないようにになっている。このセンサーの作動が正常かどうかは、冷却水配管チューブを開閉（開：水が流れている正常な状態、閉：水が流れない異常な状態）することによりインターロック作動するかどうかで確認できる。そこで、放射線照射前に、このセンサーの作動が正常に行われることを確認した後、 γ 線照射（集積線量：25.8 C/kgと 4.4×10^2 C/kg）し、その照射後部品について、同じ作動試験を実施した。

② 開閉センサー

セル内操作型 ICP 発光分光分析装置は、発光ユニットが密閉状態（発光ユニットカバーを閉じた状態）のときプラズマ点灯して分析を行えるようになっている。開閉センサーは、発光ユニット床面とカバーに一对で取り付けられていて、発光ユニットカバーが開いた状態では、プラズマが点灯しないようにコントロールユニットのインターロック機構と信号線で接続している。このセンサーの作動が正常かどうかは、発光ユニットカバーを開閉して、インターロックが働くかどうかで確認できる。そこで、放射線照射前に、このセンサーの作動が正常に行われることを確認した後、 γ 線照射（集積線量：25.8 C/kgと 4.4×10^2 C/kg）し、その照射後部品について同じ作動試験を実施した。

③ イグナイター

イグナイターは、プラズマ点灯する際の着火装置であり、プラズマ点灯時に、放電音及びプラズマが点灯するかどうかによって作動が正常かどうかを確認できる。そこで、放射線照射前に、このイグナイターの作動が正常に行われることを確認した後、 γ 線照射（集積線量：25.8 C/kgと 4.4×10^2 C/kg）し、その照射後部品について同じ作動試験を実施した。

④ 同調結合器

同調結合器は、6.1の(4)で述べてあるように、プラズマの点灯及び反射波出力を観測することにより正常かどうかを確認できる。そこで、放射線照射前にプラズマ点灯して1時間の反射波出力を10分毎に観測記録した後、 γ 線照射（集積

線量：25.8 C/kg と 4.4×10^2 C/kg) し、その照射後部品を用いて同じように1時間の反射波出力を観測した。

⑤ 光ファイバー

光ファイバーについては、放射線照射前と照射後（集積線量：25.8 C/kg と 4.4×10^2 C/kg)の光透過強度を、表-6に示す試験装置を図-37のようにセッティングし、表-7に示す測定条件で、測定した。

表-6 試験装置

| | |
|-----------------------|--|
| 単元素ホローカソードランプ (光源) | Pd (244.8 nm) Mn (279.5 nm) Mo (313.2 nm) Cr (357.9 nm) Sr (460.7 nm) |
| 分光器 | <ul style="list-style-type: none"> ◦変形ツェルニターナ型エシェル回折格子 ・焦点距離：0.75 m ・逆線分散：0.061 nm/mm (200 nm) 0.122 nm/mm (400 nm) ・波長範囲：190~800 nm ◦光電測光式 |
| 光ファイバー | 表-3参照（全て純水石英ファイバー） |

表-7 光透過強度測定条件

| | | |
|------|--|--|
| 光源部 | ホローカソードランプ使用電流：10 mA | |
| 分光部 | <ul style="list-style-type: none"> ◦入口スリット：200 μm × 500 μm ◦出口スリット：200 μm × 500 μm ◦アンプゲイン：10 | |
| 接続方法 | 光ファイバーと分光器の接続 | 図-35において、出射光軸調整台で、光ファイバーを固定し、光ファイバーと分光器入口スリットの距離を2 mmにセットした。また、光ファイバーのあおりを、できる限り少なくするように、ファイバー固定具を出射光軸調整台より、約20 cmの位置にセットした。 |
| | 光ファイバーとホローカソードランプの接続 | 図-35において、入射光軸調整台で、光ファイバーを固定し、光ファイバーの先端と、ホローカソードランプの面が、常に接触するよう固定した。 |

(注) 測定にあたっては、各光ファイバー、各波長毎にランプ位置調整台、出射光軸調整台、波長走査つまみを調整し、最大光強度を測定した。

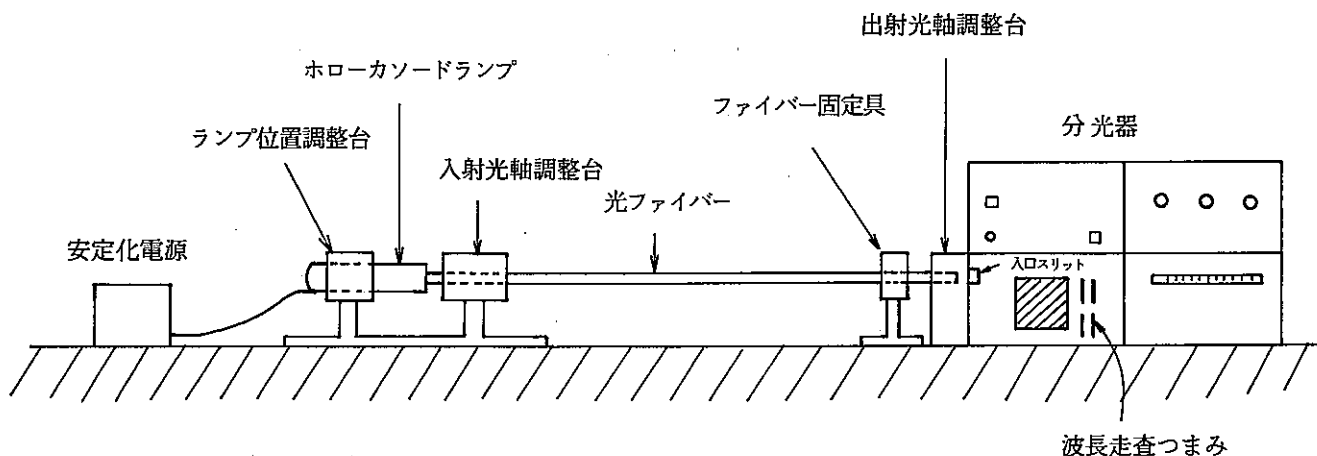


図 - 37 光透過強度測定

(5) 試験結果及びまとめ

圧力センサー，開閉センサー，イグナイターについて，集積線量 $4.4 \times 10^2 \text{ C/kg}$ まで γ 線照射を行ったが，照射後でも各々所定の作動が可能であった。また同調結合器についても表 - 8 に示すように，照射前後でのプラズマ 1 時間連続点灯後の反射波出力に差はなく，正常かつ安定に作動した。

表 - 8 反射波出力の経時変化

| 経過時間 (分) | 0 | 10 | 20 | 30 | 40 | 50 | 60 |
|--|---|----|----|----|----|----|----|
| 照射前の反射波出力 (W) | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| 25.8 C/kg 照射後の反射波出力 (W) | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |
| $4.4 \times 10^2 \text{ C/kg}$ 照射後の反射波出力 (W) | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 | 2 |

光ファイバーについては、放射線照射前後の光透過強度測定結果を表-9に示す。

表-9 放射線照射前後の光透過強度測定結果

| 光ファイバー | 照射線量 | Pd (244.8 nm) | Mn (279.5 nm) | Mo (313.2 nm) | Cr (357.9 nm) | Sr (460.7 nm) |
|---|-----------------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|
| 単芯ファイバー (コア径/ファイバ径 = 800 μm/1000 μm) 素線数: 1本 | 照射前 | 270 | 873 | 992 | 7988 | 2200 |
| | 25.8 C/kg照射後 | 274 | 845 | 1060 | 7630 | 2002 |
| | 4.4×10 ² C/kg照射後 | — | — | 110 | 6032 | 2370 |
| バンドルファイバー (コア径/ファイバ径 = 200 μm/250 μm) 素線数: 12本 | 照射前 | 153 | 260 | 270 | 2300 | 652 |
| | 25.8 C/kg照射後 | — | — | — | 1896 | 543 |
| | 4.4×10 ² C/kg照射後 | — | — | — | 955 | 633 |
| バンドルファイバー (コア径/ファイバ径 = 100 μm/125 μm) 素線数: 48本 | 照射前 | 148 | 264 | 210 | 1510 | 430 |
| | 25.8 C/kg照射後 | — | — | — | 1311 | 456 |
| | 4.4×10 ² C/kg照射後 | — | — | — | 952 | 456 |
| イメージファイバー (コア径/ファイバ径 = 10 μm/14 μm) 素線数: 約10000本 | 照射前 | 162 | 320 | 342 | 2890 | 792 |
| | 25.8 C/kg照射後 | — | — | — | 2058 | 631 |
| | 4.4×10 ² C/kg照射後 | — | — | — | 1078 | 427 |
| イメージファイバー (コア径/ファイバ径 = 9 μm/13 μm) 素線数: 約10000本 | 照射前 | 200 | 420 | 464 | 3420 | 967 |
| | 25.8 C/kg照射後 | — | 225 | 337 | 2814 | 651 |
| | 4.4×10 ² C/kg照射後 | — | — | 202 | 1604 | 586 |

※ — は、光が光ファイバーを透過せず、
測定不可

また、この結果を見やすくしたものを、図-38~45に示す。このうち、図-38~42は、光ファイバー毎の照射前後の光透過強度を示したものであり、また、図-43~45は、各光ファイバーを比較したものである。

図-38 γ 線照射前後の単芯ファイバー（コア径/ファイバ径 = $800\mu/1000\mu$ ）の光透過強度

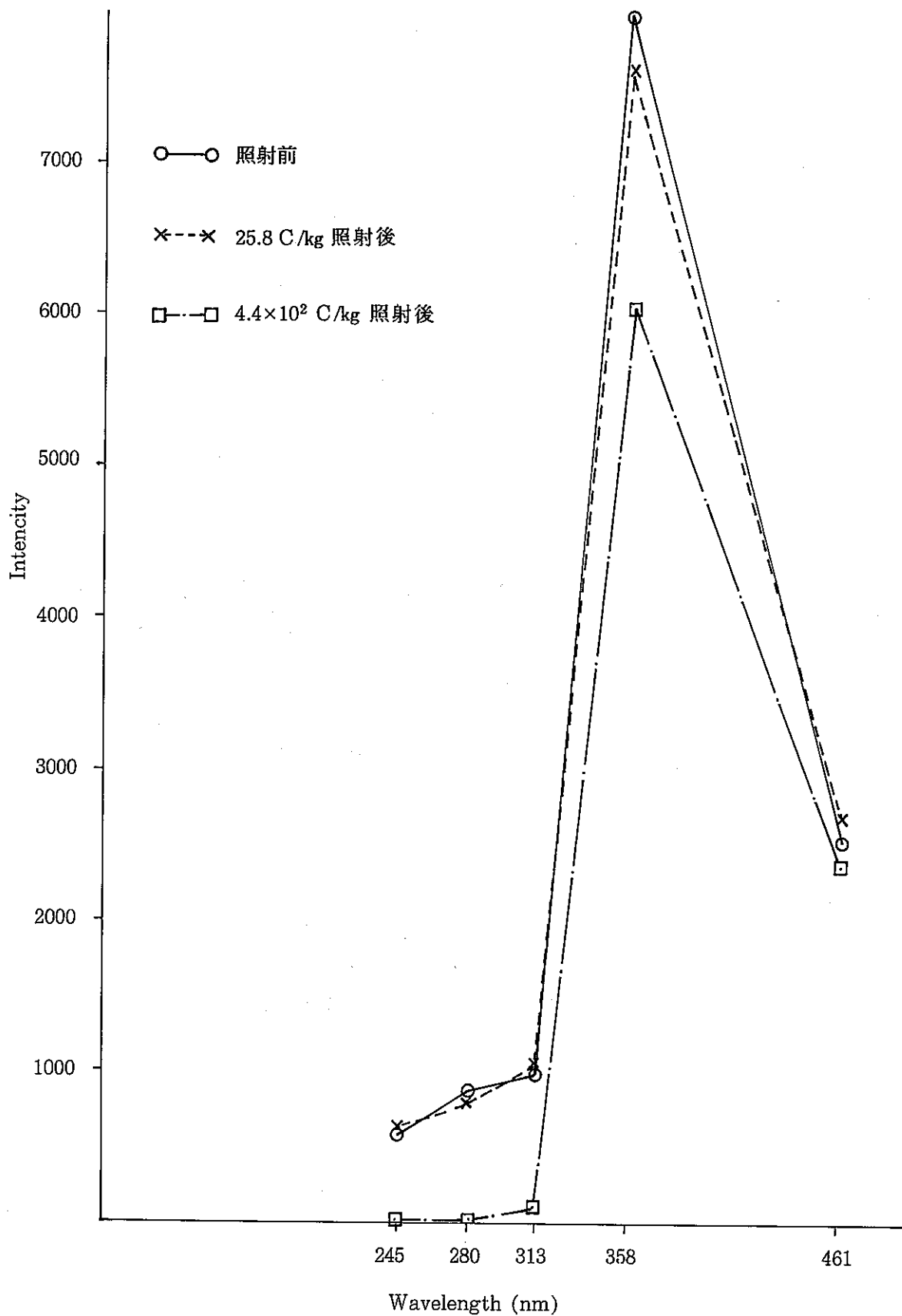


図-39 γ 線照射前後のバンドルファイバー（コア径/ファイバ径 = 200 μ /250 μ ）の光透過強度

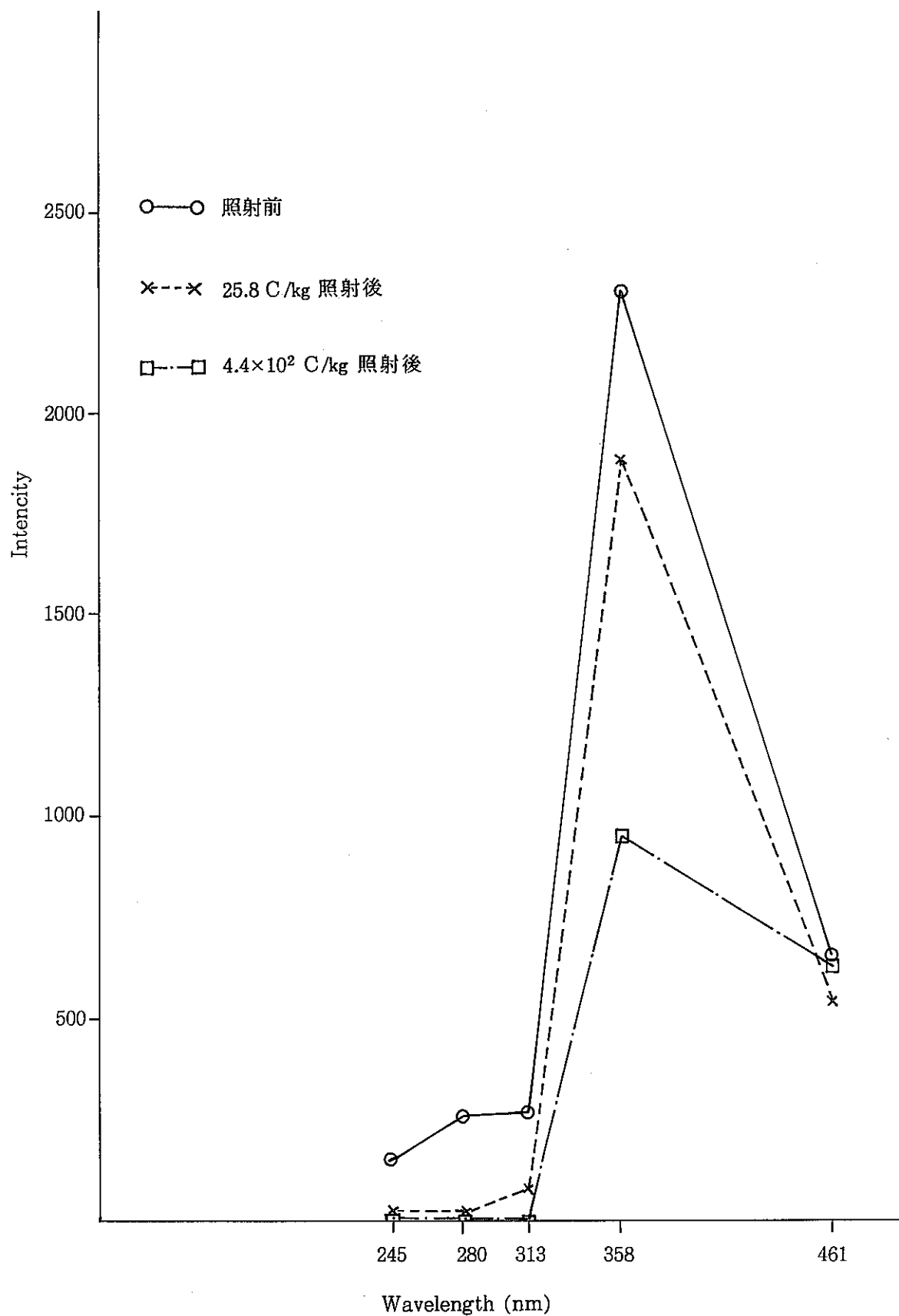


図-40 γ 線照射前後のバンドルファイバー（コア径/ファイバ径 = $100\mu/125\mu$ ）の光透過強度

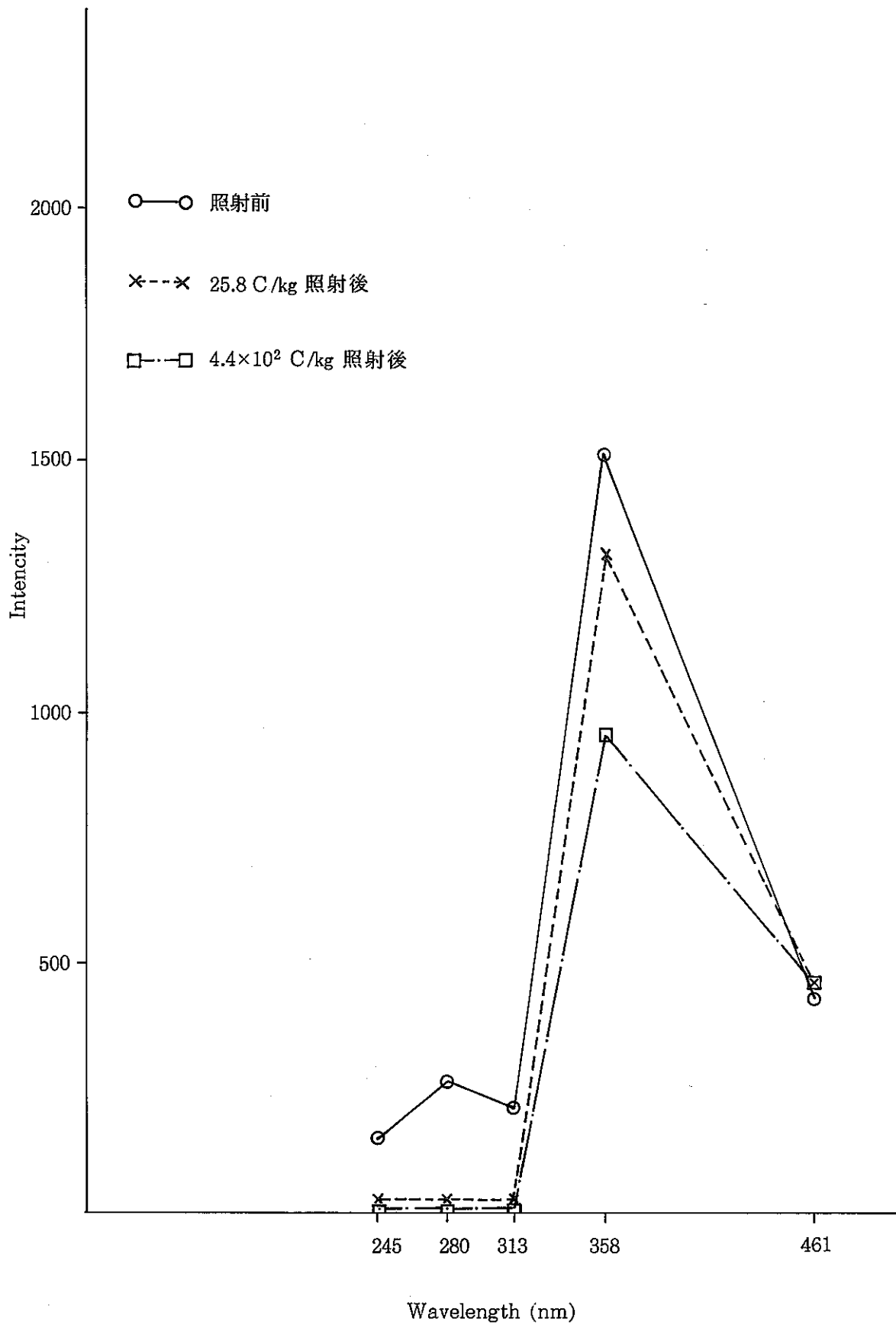


図-41 γ 線照射前後のイメージファイバー（コア径/ファイバ径 = $10\mu/14\mu$ ）の光透過強度

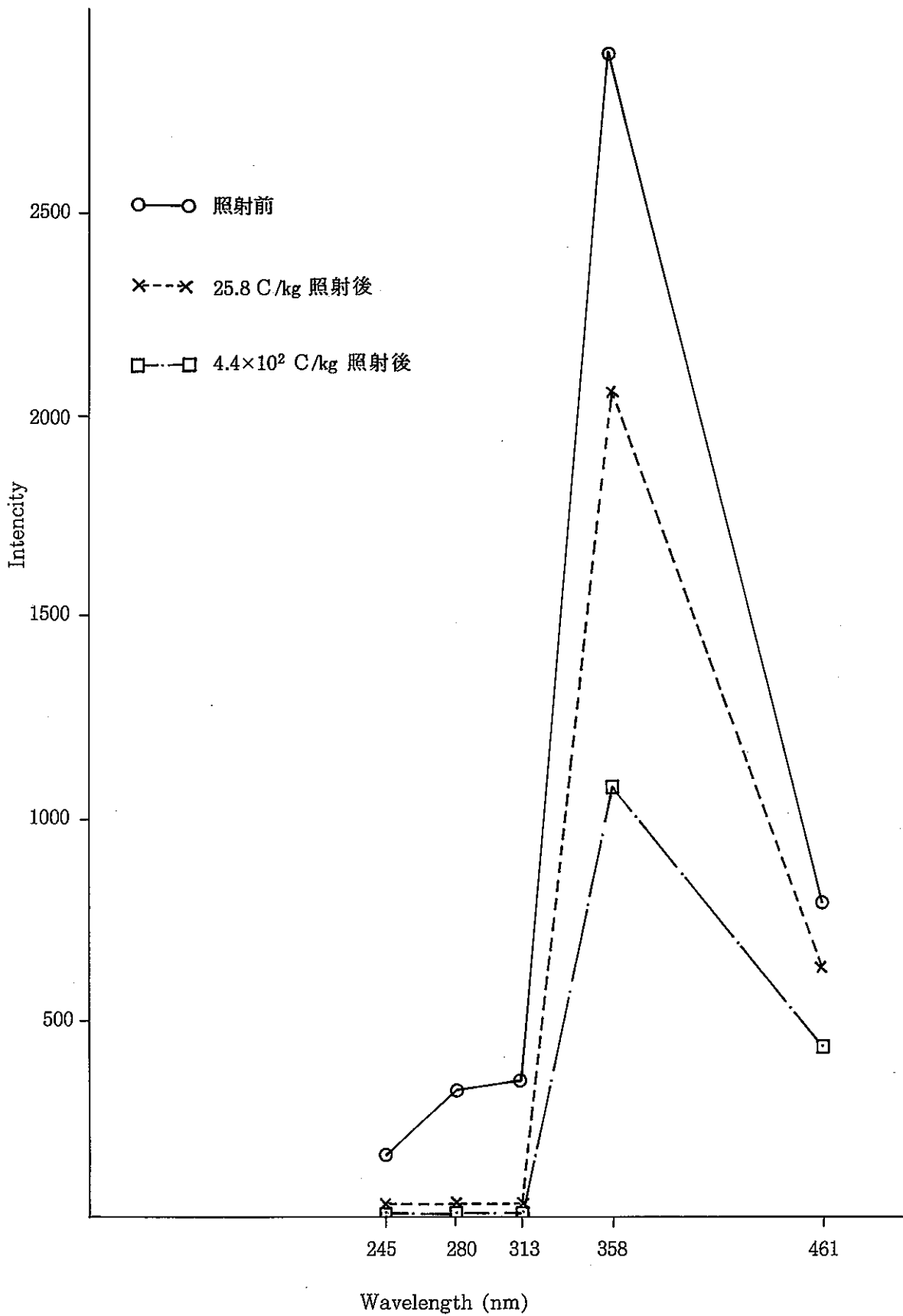


図-42 γ 線照射前後のイメージファイバー（コア径/ファイバ径 = $9\mu/13\mu$ ）の光透過強度

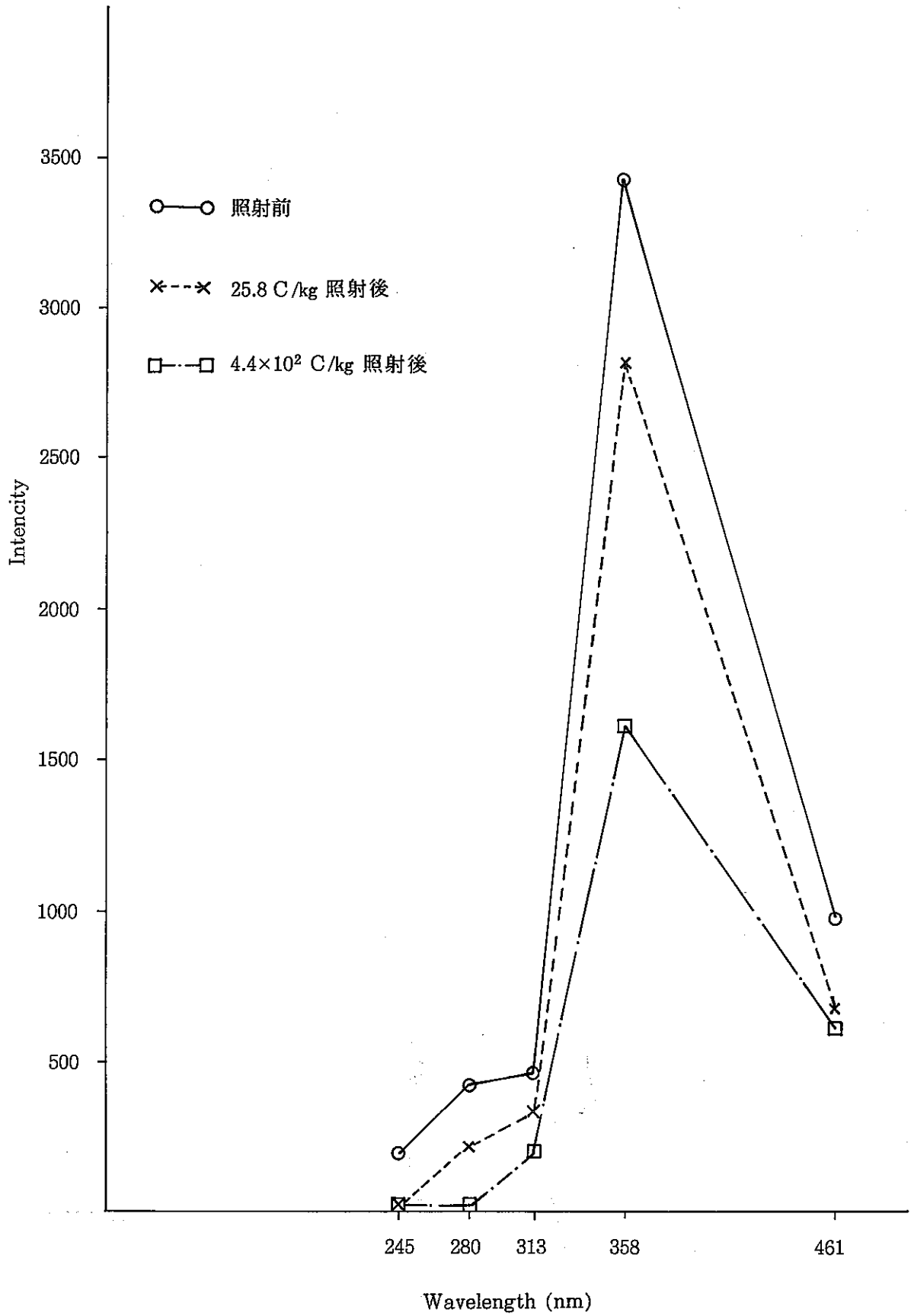


図-43 照射前の各種光ファイバーの光透過強度

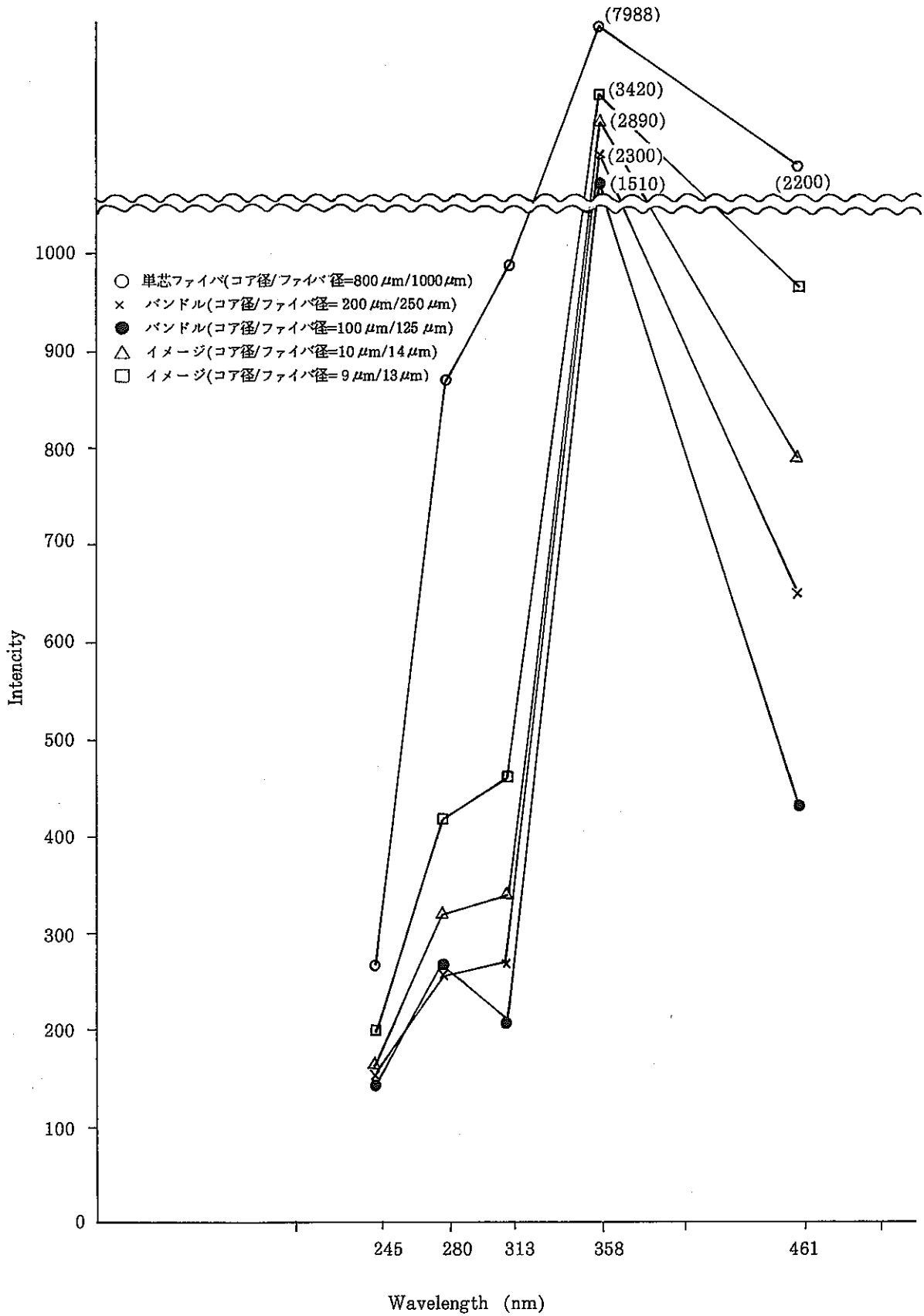


図-44 25.8 C/kg 照射後の各種光ファイバーの光透過強度

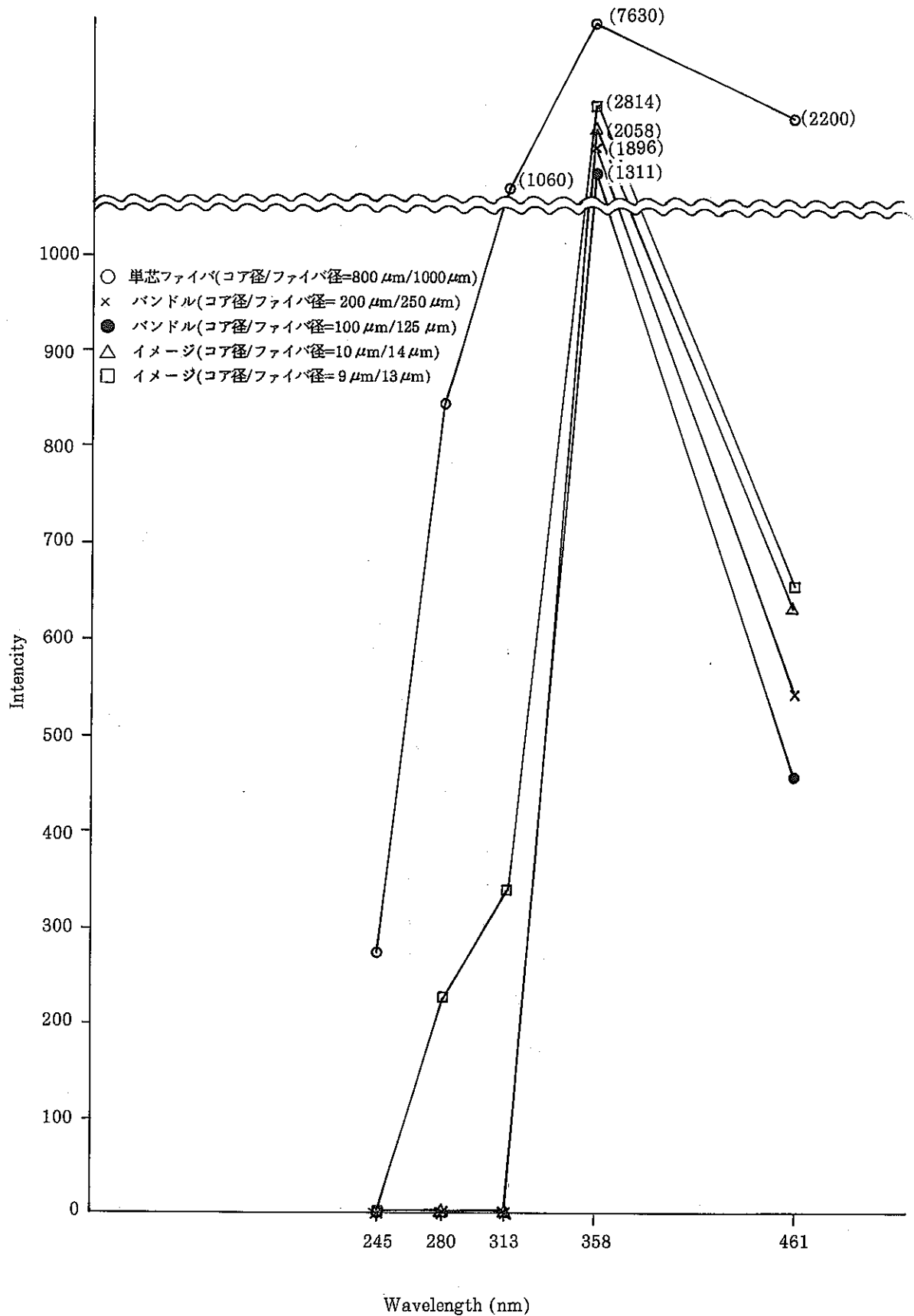


図-45 4.4×10^2 C/kg 照射後の各種光ファイバーの光透過強度

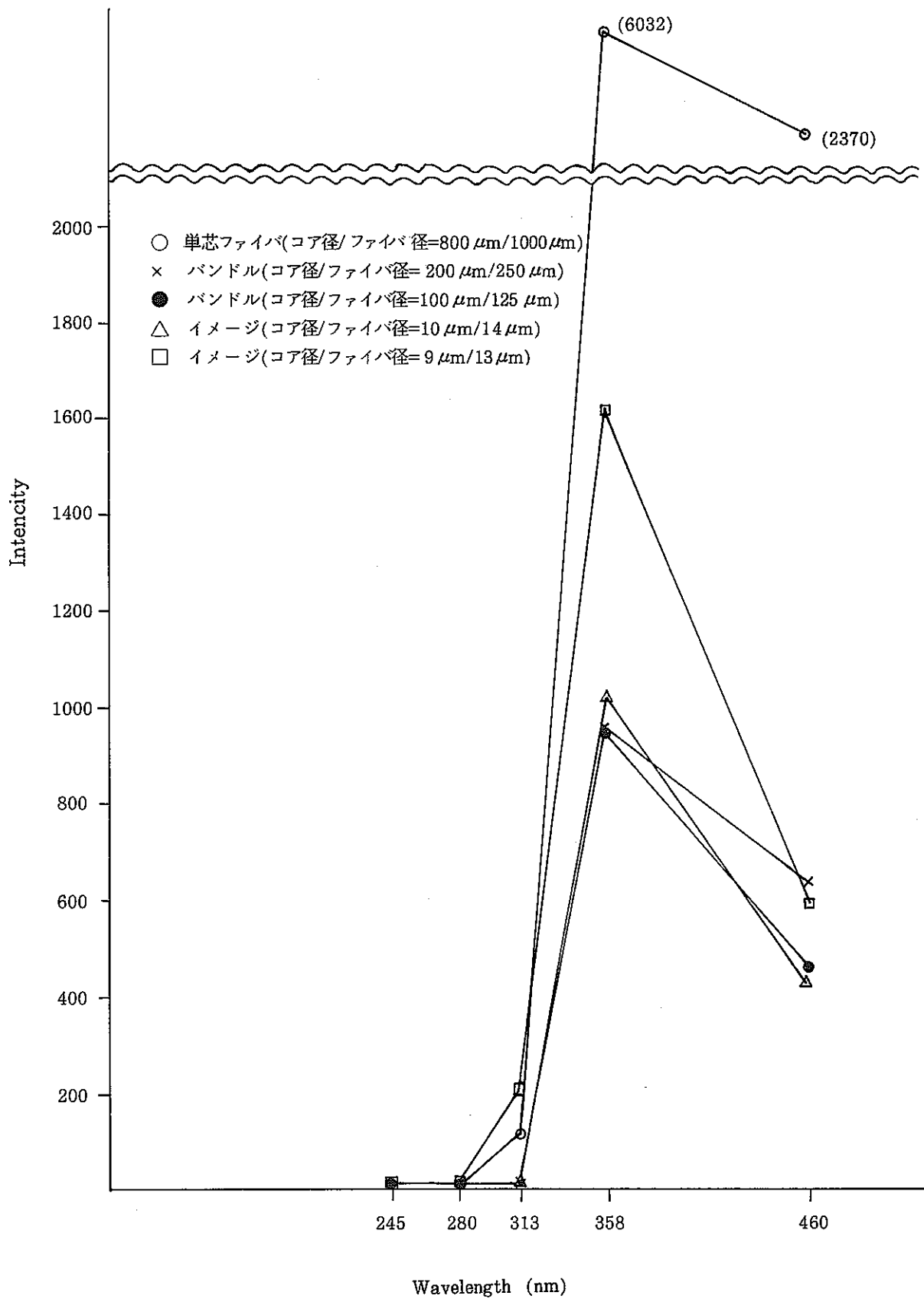


図-38~42より、全ての光ファイバーは、集積線量が増加するにつれて、全波長にわたり、光透過強度が低下していることがわかる。しかし、単芯ファイバーについては25.8C/kgまでの照射では、その光透過強度の低下はほとんどなく、放射線の影響はほとんど受けないことがわかった。また、図-43~45において、照射前、25.8C/kg及び 4.4×10^2 C/kg照射後全てにわたり、単芯ファイバーは他の光ファイバーに比べ、光透過強度が最も強いことがわかった。なお、25.8C/kgまでの照射では、単芯ファイバー、イメージファイバ（コア径/ファイバ径=9 μ m/13 μ m）、イメージファイバー（コア径/ファイバ径=10 μ m/14 μ m）、バンドルファイバー（コア径/ファイバ径=200 μ m/250 μ m）、バンドルファイバー（コア径/ファイバ径=100 μ m/125 μ m）の順に、光透過強度が強いことがわかった。以上の結果、及び5.6の性能評価試験での各種ファイバーでの検出下限等の結果より、セル内での使用を考えた場合、これらのファイバーの中では、単芯ファイバーが最も優れていることがわかった。

7. ま と め

将来の再処理施設等の高レベル放射性物質取り扱い施設に適用するセル内操作型 ICP 発光分光分析装置開発の一環として、発光ユニットの改造及び、放射線の影響確認試験を実施し、下記の成果、結果を得た。

- (1) 発光ユニットを改造し、マニプレータによる遠隔操作・保守が可能とした。
 - 発光ユニットを構成する各部品（トーチ、チャンバー、同調結合器等）は、全てマニプレータによる単独交換が可能となった。
 - 光ファイバーとプラズマとの光軸調整が、マニプレータで可能となった。
 - 同軸ケーブル、冷却水配管等の発光ユニットとの分離・接続が、マニプレータで行えるようになった。
- (2) 発光ユニット改造後の装置性能は、今回のコールド測定条件下では、下記の通りだった。
 - 検出下限 …… B, Mn, Mo, Ru, La について 1 ppm 以下。
 - 分析精度 …… Mn, Mo について、各々 1 ppm のとき 5% 以下、10 ppm のとき 1% 以下。
 - 安定性 …… 発光強度変動は、15 分間連続測定で、B は 3% 以下、Ru は 5% 以下。
- (3) 分析ホットセルを想定した約 2.58×10^{-3} C/kg・hr の γ 線照射下でも反射波出力は 2 W で 60 分間安定作動し、放射線による空気電離作用等の影響はないことが確認できた。
- (4) 集積線量 4.4×10^2 C/kg の γ 線照射後でも、同調結合器、センサー等の発光ユニット部品は正常に作動し、耐放射線性に優れていることが確認できた。
- (5) 5 種類（単芯ファイバー、バンドルファイバー 2 種類、イメージファイバー 2 種類）における放射線照射前後の光透過強度は、単芯ファイバーが最も強く、また、25.8 C/kg 照射後でも、ほとんど放射線の影響を受けないことが確認できた。

以上より、分析ホットセルに本装置が十分適用可能であることが推測される。

8. 今後の開発課題

今回、分析ホットセル内に設置し、マニプレータによる遠隔操作を必要とする発光ユニットの改造を実施するとともに、耐放射線性も確認した。しかし、発光ユニットについては、一応マニプレータによる各部品の単独交換が可能となっているものの、再改良を行うことにより、更に操作性、効率を向上可能な箇所が数箇所ある。また、4の開発課題の抽出で述べているように、冷却水循環装置等の周辺機器類の改良等が課題として残っている。そこで、今後の主な開発課題を以下にまとめた。

(1) 発光ユニット

① 試料導入・励起系取り付け台

5.2で述べた試料導入・励起系取り付け台は、現在、発光ユニット床面にネジ止め固定されている。そして、トーチ、チャンバ等は、この取り付け台に、バネを利用した押え板によって固定されるようになっている。したがって、もしこのバネが効かなくなったり、外れたりした場合、取り付け台の機能はなくなり交換の必要が生じる。しかし、現状では、発光ユニット床面と一体化で廃棄しなければならず、大型廃棄物となる。そこで、廃棄物発生量の低減化及び装置の効率的活用のため、この取り付け台と発光ユニット床面とを、マニプレータで分離・接続ができるよう改良する必要がある。

② 水位調整管

5.4の(2)で述べたように、水位調整管は、必ずしも必要ではないことがわかったが、その対応をどうするか（ドレンタンクで圧力調整するのか、あるいは、それ以下のところで調整するのか）が未決定である。したがって、分析セルや発光ユニット内のスペース及びマニプレータの操作性等を考慮して今後検討する必要がある。

③ イグナイター

5.4の(3)で述べたように、今回は、イグナイターの先端をクリップ型に改良し、トーチとの接続を可能にした。しかし、これは、マニプレータでつかむケーブル及びケーブルとクリップの間がフレキシブルなため、トーチに接続する際、曲がったりして接続しにくい。したがって、今後、これを再検討し、改良する必要がある。

④ その他

特殊クリップやネジを製作したが、これらを更にマニプレータで操作しやすく、形状・大きさ等の改良を加える必要がある。また、これらの配置等についても、マニプレータのアクセス方向、操作スペースを考慮して、更に操作しやすいように、改良を

加える必要がある。

(2) 周辺機器類

冷却水循環装置の改良や配線・配管類のセル壁との取り合い等，周辺機器類については未検討なので，今後，実証試験に向けて検討を行う必要がある。

(3) 分析セル環境への対応

分析セル内は，放射線環境下のみならず，硝酸等の試薬を使用する薬品環境下でもある。したがって，耐薬品性を考慮した，材質の検討，選定が必要である。

以上が，主な開発課題であるが，今後は，これら課題を，コールドでの改良，遠隔操作試験等で解決し，ホットセルでの実証試験，実証化につなげてゆく予定である。

9. 参 考 文 献

- 1) 不破敬一郎他 : ICP発光分析(化学の領域, 増刊127号, 1980), 南江堂
- 2) 原口 紘 丞 : ICP発光分析の基礎と応用(初版 1986), 講談社サイエ
ンティフィック
- 3) 高橋 務 他 : 液体試料の発光分光分析-I CPを中心として, (初版 1983),
学会出版センター
- 4) 原口 他 : ICP発光分析法(初版, 1988), 共立出版
- 5) 大西 他 : 遠隔操作型発光分光分析システムの開発,
(PNC SN841-82-52, 1982)