

液体電極プラズマ発光分光法による再処理工程試料中の金属元素の分析技術開発 (5) 再処理工程試料中のアルカリ金属・アルカリ土類金属の定量

Development of analytical methods for metal elements in reprocessing solution by optical emission spectrometry based on liquid electrode plasma

(5) Determination of alkaline and alkaline earth metals in reprocessing process solution

*山本 昌彦¹, Do Van-Khoai¹, 田口 茂郎¹, 堀籠 和志¹, 高村 禅², 久野 剛彦¹

¹日本原子力研究開発機構, ²北陸先端科学技術大学院大学

マイクロデバイス化が可能な液体電極プラズマ(LEP)を利用した発光分光法(LEP-OES)により、アルカリ金属・アルカリ土類金属である Na、K、Ca、Sr、Ba の測定条件を最適化し、高レベル放射性廃液(HAW)等の再処理工程試料の測定を試みた。

キーワード：液体電極プラズマ、発光分光法、再処理、アルカリ金属、アルカリ土類金属

1. 緒言

使用済燃料の再処理によって発生する HAW は、ガラス固化処理したのち、地層処分される。固化処理にあたっては、主成分となるアルカリ金属・アルカリ土類金属が固化体の性質に影響を及ぼすため、これら金属元素の分析は重要である。分析には、ホットセルやグローブボックス(GB)内に導入した誘導結合プラズマ発光分析装置(ICP-OES)が主に適用されるが、大型装置であるため、GB 等への搬入には改造が必要となり、設置後も遠隔での保守が難しい。そこで、本研究では、発光分析装置の小型化が可能で、汎用 GB への導入が容易な LEP-OES に着目し、再処理工程試料中の金属元素の分析技術開発を行っている。これまで、HAW 中の Cs、Tc 等の分析について報告した[1,2]。本報では、HAW 中の Na、K、Ca、Sr、Ba について、分光干渉の影響を調査し、最適測定波長を求めて定量するとともに、低レベル放射性廃液(LLW)への適用も試みた。

2. 実験

Na、K、Ca、Sr、Ba 標準溶液は和光純薬製標準液を 0.8 M 硝酸で希釈した。HAW の元素組成を模擬するため、各種金属硝酸塩を溶解した模擬 HAW を調製し、0.8 M 硝酸で 4000 倍に希釈した。分光干渉の影響は、これら試料の発光スペクトルを LEP-OES で測定して評価した。LEP-OES 測定システムは、既報と同じものを使用し[1]、LEP は電圧 800 V、パルス幅 2 ms、パルス間隔 8 ms、パルス回数 50 回で生成させ、分光器のグレーティングは 1800 lines/mm、CCD 検出器の積分時間は 0.5 秒、試料供給用ポンプの流量は 0.8 mL/min に設定した。HAW、LLW は、東海再処理施設から採取したものをろ過後、0.8M 硝酸でそれぞれ 4000 倍、100 倍に希釈し、同様の条件で測定した。また、試料マトリックスの影響を調査するため、HAW、LLW に標準溶液を添加して回収率を求めた。

3. 結果及び考察

(1) 分光干渉の影響

標準溶液を用いて、Na、K、Ca、Sr、Ba の発光スペクトルを測定した結果、図 1 に示すピークが得られた。そこで、これらピークへの分光干渉を調査した。HAW には、アクチノイドである U、Pu、核分裂生成物である Cs、腐食生成物である Fe、Cr、Ni 等が含まれている。このうち、U、Pu は LEP-OES で発光ピークが観測されないため[2]、干渉することはない。その他の元素は、模擬 HAW の発光スペクトルから、Na: 819.5 nm、K:766.4 nm、Ca:422.6 nm、Sr:460.7 nm、Ba:455.3 nm で共存成分の影響を受けずに測定できることがわかった。

(2) HAW、LLW の測定

HAW、LLW の分析結果を表 1 に示す。HAW では Ba、LLW では Sr と Ba を除く元素についてピークが確認され、それぞれ相対標準偏差(RSD)7.2%以下で定量可能であった。また、HAW、LLW に添加した各標準液の回収率は 100±15%の範囲内であり、マトリックスの影響を受けずに Na、K、Ca、Sr、Ba を定量できることが分かった。

4. 結論及び今後の予定

LEP-OES で HAW、LLW 中の Na、K、Ca、Sr、Ba について、分光干渉、マトリックスの影響を受けずに定量可能であることがわかった。現在、ICP-OES との比較分析を実施すると共に、廃液処理工程で発生したスラッジの分析への適用を検討中である。

参考文献

[1] Do, 他, 日本原子力学会 2017 年秋の大会, 3K11. [2] 山本, 他, 日本原子力学会 2018 年春の年会, 2N14.

*Masahiko YAMAMOTO¹, Van-Khoai DO¹, Shigeo TAGUCHI¹, Yuzuru TAKAMURA² and Takehiko KUNO¹

¹Japan Atomic Energy Agency, ²Japan Advanced Institute of Science and Technology

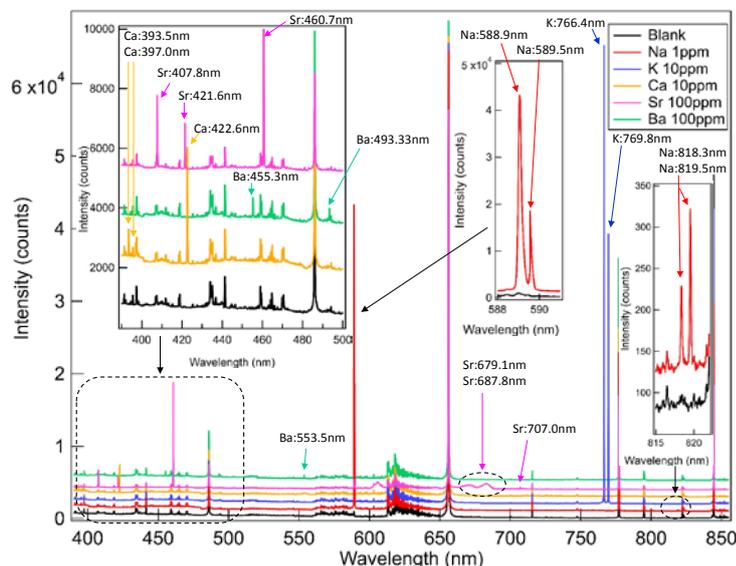


図 1 Na、K、Ca、Sr、Ba 標準溶液の LEP 発光スペクトル

表 1 HAW(4000 倍希釈液)、LLW(100 倍希釈液)の測定結果

元素	波長(nm)	HAW 定量結果(ppm)	LLW 定量結果(ppm)
Na	819.5	11 (RSD: 4.5%, N=3)	44 (RSD: 4.8%, N=5)
K	766.4	1.3 (RSD: 0.60%, N=3)	0.29 (RSD: 6.3%, N=5)
Ca	422.6	15 (RSD: 2.4%, N=3)	2.6 (RSD: 7.2%, N=5)
Sr	460.7	0.24 (RSD: 7.2%, N=3)	検出限界値以下(≤0.055)
Ba	455.3	検出限界値以下(≤5.9)	検出限界値以下(≤5.9)