

ICP-QQQ-MS による多核種分析手法の開発

Development of simultaneous measurement for multi isotopes by ICP-QQQ-MS

*岩崎 真歩¹, 佐藤 宗一¹, 鍛冶 直也¹

¹IRID(原子力機構)

福島第一原子力発電所の廃炉作業に向けた燃料デブリ等の核種分析において、多核種の分析が可能な ICP-MS を用いた分析手法の適用性について検討を行っている。本報では、燃料デブリのマトリクス成分である Zr についての検討結果等を報告する。

キーワード : ICP-QQQ-MS, 廃止措置, 多核種分析, 燃料デブリ

1. 緒言 福島第一原子力発電所(1F)の燃料デブリ等の核種分析ではさまざまな核種を対象として放射能測定法が使用される。β線を測定する核種に対しては、単離・精製するために、核種毎に複雑な化学分離操作を必要とされ、時間を要するうえに煩雑な操作による分析値の不確かさが増加する。そこで、複雑な分離操作を要せず、短時間で測定が可能なトリプル四重極プラズマ誘導結合質量分析装置(ICP-QQQ-MS)の適用を試みた。今回は燃料デブリに含まれる放射性同位体である Zr-93(半減期:1.5×10⁶年)の分析において、被覆管の成分である天然の Zr による妨害の影響を評価した。さらに Zr-93 と同重体である、Nb-93(安定同位体), Mo-93(放射性同位体 半減期:4.0×10³年)については、リアクションガスを用いることによる同重体干渉の除去の可能を検討した。

2. 方法 Agilent 社製の ICP-MS (Agilent 8900) を用いた。本装置は四重極質量分析計(MS)を直列に二段で配置し、2つの MS の間にコリジョン/リアクションセルを配置した構造である。はじめに、全 Zr 濃度 0, 1, 2, 5, 10 ppb の標準試料を用いて検量線を作成し検出限界値を算出したうえで、天然 Zr 中の同位体である Zr-90, Zr-91, Zr-92 の Zr-93 への妨害の程度を評価した。次に、リアクションガスとして酸素を導入し、同重体である Zr-93, Nb-93 および Mo-93 に異なる質量のイオンを生成させることによる測定の可能性を検討した。

3. 結果

(1) **測定感度** 作成した検量線より Agilent 8900 における Zr-90 (存在比 51%) の検出限界値を 3.1ppt と求め、Zr-93 に対しても同等と仮定すると、Zr-93 の放射能濃度検出限界値は 1.4×10⁻⁴Bq/mL である。この値は、通常の液体シンチレーションカウンターによる放射能分析の検出限界値と同程度であり、Zr 濃度測定は放射能濃度測定と同程度の感度を有していることがわかる。

(2) **妨害評価** Zr-93 に対する妨害評価の結果、全 Zr 濃度が 1 ppb の時、質量数が 90, 91, 92 に対するカウント(cps)は、それぞれ、2.0×10⁵(Zr-90), 4.4×10⁴(Zr-91), 7.0×10⁴(Zr-92)であった。一方、質量数 93(Zr-93)の位置でのカウントは、硝酸のブランク溶液と同程度の約 100(cps)であった。このことから、全 Zr 濃度が 1 ppb 程度の比較的濃度の高い溶液においても、Zr-90, 91, 92 の検出値と Zr-93 の検出値の間には 10³程度の差があり、Zr-93 に対する妨害の程度は軽微であると考えられる。

(3) **同重体の測定** リアクションガスとして酸素を用いることにより、Zr, Nb および Mo のイオンを酸化させた結果を図 1 に示す。Zr は一酸化物、Nb および Mo は二酸化物の質量数に該当する質量数のピークにシフトしている。すなわち、ICP-QQQ-MS が有するリアクションセルを用いることにより、複数の同重体イオンも区別して測定できる可能性を示した。

以上のことから、ICP-QQQ-MS による Zr-93 の測定では、天然 Zr による妨害の程度は無視できるほど小さく、また、同重体である Nb-93 および Mo-93 を Zr-93 と区別して測定することができること、すなわち放射能測定に寄らず、ICP-QQQ-MS の機能のみで Zr-93 濃度測定が可能になる見通しが得られた。

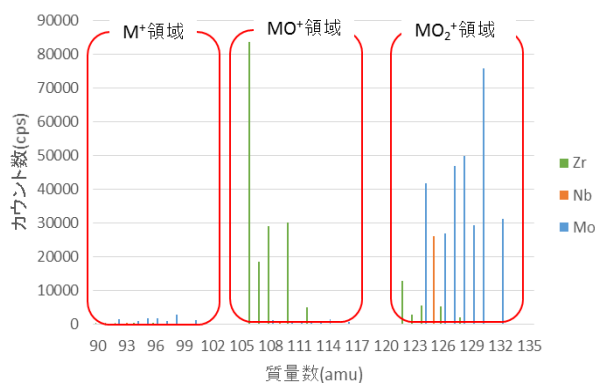


図1 Zr,Nb,Moの酸化挙動

*Maho Iwasaki¹, Soichi Sato¹, Naoya Kaji¹ ¹IRID(JAEA)

本件は、IRID が補助事業者として実施した平成 28 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金(燃料デブリの性状把握)」に係る補助事業の成果の一部を取りまとめたものである。