

# コリジョンリアクションセル搭載型誘導結合プラズマ質量分析装置による再処理工程試料中の<sup>129</sup>I分析法の開発

Development of analytical methods for iodine-129 in sample from reprocessing plant by inductively coupled plasma mass spectrometry with collision reaction cell technique

\*三枝 祐<sup>1</sup>, 小高 典康<sup>1</sup>, 山本 昌彦<sup>1</sup>, 堀籠 和志<sup>1</sup>, 稲田 聡<sup>1</sup>, 久野 剛彦<sup>1</sup>  
<sup>1</sup> 日本原子力研究開発機構

コリジョンリアクションセルを搭載した誘導結合プラズマ質量分析装置を用いて、<sup>129</sup>Iの測定条件を最適化し、使用済燃料再処理施設の工程試料中の<sup>129</sup>Iの測定を試みた。

**キーワード:** コリジョンリアクションセル, 誘導結合プラズマ, 質量分析, 再処理工程, ヨウ素 129

## 1. 緒言

長寿命放射性核種である<sup>129</sup>I(半減期:約1570万年)は、使用済核燃料の再処理において大部分がせん断・溶解オフガスに移行し、ヨウ素吸着用フィルター(以下、「フィルター」)にて回収された後、放射性固体廃棄物として管理されている。また、高レベル放射性廃液(HAW)、低レベル放射性廃液(LLW)等の廃液中にも一部が存在していると考えられ、その移行率について検討がなされている。東海再処理施設(TRP)で進められている廃止措置では、HAWのガラス固化に加えてLLWのセメント固化も計画されており、処理処分における環境影響の把握のため、排気中及び廃液中における微量<sup>129</sup>Iの濃度測定ニーズは高い。

溶解・せん断オフガス中の<sup>129</sup>Iについてはγ線スペクトロメトリが適用されているが、3.7 Bq/mL以下の<sup>129</sup>Iでは、低エネルギーのγ線であり、比放射能が小さいため、共存成分の影響や測定感度に問題がある。放射能分析法としては、<sup>129</sup>Iのβ線を検出する液体シンチレーション測定法もあるが、複雑な分離前処理操作が必要となる。また、一般の誘導結合プラズマ質量分析法では、プラズマガス由来の<sup>129</sup>Xeによる同重体干渉のため、高感度な分析が困難である。このため、これらの方法では排気中及び廃液中の微量<sup>129</sup>Iの濃度測定への適用は難しい。

そこで本研究では、コリジョンリアクションセル搭載型誘導結合プラズマ質量分析装置(CRC-ICP-MS)による<sup>129</sup>Iの高感度な分析法に注目した。質量分離部前段のCRC中にO<sub>2</sub>等のガスを導入することで、ガスとの衝突や化学反応により同重体の影響を排除した高感度な測定を期待できる。

本件では、導入するO<sub>2</sub>ガス流量の最適化、CRC-ICP-MSによる分析性能を評価し、TRPの廃液処理施設から採取したヨウ素吸着用フィルター中の<sup>129</sup>Iを測定したので、その結果を報告する。

## 2. 実験

反応ガスは、ATOX製高純度O<sub>2</sub>ガス(純度:99.999%)を使用した。<sup>129</sup>I標準溶液は、フランスLMRI製放射能標準溶液を1%亜硫酸アンモニウム溶液で適宜希釈して調製した。フィルター中の<sup>129</sup>I分析については、10%亜硫酸アンモニウム溶液にフィルターを浸漬させてヨウ素を溶離後、溶離液中の<sup>129</sup>I濃度を測定した。

## 3. 結果及び考察

### (1) O<sub>2</sub>ガス流量の最適化

O<sub>2</sub>ガス流量を変化させながら、ブランク(1%亜硫酸アンモニウム)を導入し、プラズマ由来の<sup>129</sup>Xe強度を測定した(図1)。O<sub>2</sub>ガス未導入時の強度は約2600 cpsであったが、ガス流量の増加とともに強度は減少し、1.1 mL/min以上ではバックグラウンドレベル(100 cps以下)まで低減した。これは、<sup>129</sup>XeがO<sub>2</sub>と電荷移動反応で中性化され、質量数129からマシフトされたためと考えられ、O<sub>2</sub>ガス流量1.1 mL/minで<sup>129</sup>Xeの影響を排除できることがわかった。

### (2) 分析性能の評価

CRC-ICP-MSのO<sub>2</sub>ガス流量1.1 mL/minで<sup>129</sup>I標準溶液(0~1.6×10<sup>-3</sup> Bq/mL)を測定して求めた検量線の相関係数は、R=1.000と良好な直線性を示した。ブランクの繰り返し測定時の標準偏差(1σ)から評価した検出限界値、定量下限値はそれぞれ1.0×10<sup>-5</sup>、3.5×10<sup>-5</sup> Bq/mLであり、従来のγ線スペクトロメトリ(定量下限値:3.7 Bq/mL)による<sup>129</sup>I測定法よりも約10万倍の高感度化を達成した。

### (3) フィルター溶離液中の<sup>129</sup>I測定

フィルター溶離液中の<sup>129</sup>I濃度の測定結果を表1に示す。CRC-ICP-MSで測定したフィルター①、②の<sup>129</sup>Iは4.0、12 Bq/mLであり、γ線スペクトロメトリによる測定結果と±7.7%以内で一致した。また、各測定値の相対標準偏差は1.0%以下と高い精度で測定することができた。この結果より、CRC-ICP-MSで<sup>129</sup>Xe同重体の影響を受けずにフィルターからの<sup>129</sup>Iを測定できることがわかった。また、γ線スペクトロメトリの定量下限値以下の<sup>129</sup>Iを含むフィルター③についてもCRC-ICP-MSによる測定値は1.1 Bq/mL、相対標準偏差は0.2%であり、CRC-ICP-MSでフィルターからの<sup>129</sup>Iを高感度に測定できることがわかった。

## 4. 結論

CRC-ICP-MSで、<sup>129</sup>Xeの同重体干渉の影響を受けずに高感度な<sup>129</sup>I測定法を開発した。今後、試料中の共存成分の影響を調査し、HAW、LLW等の廃液中の<sup>129</sup>I測定を試みる。

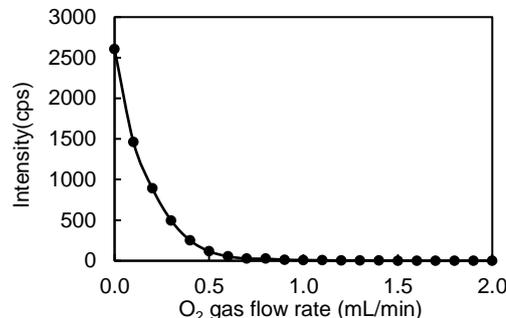


図1 O<sub>2</sub>ガス流量と<sup>129</sup>Xeの強度変化

表1 フィルター溶離液中の<sup>129</sup>I測定結果

試料	CRC-ICP-MS 測定値(Bq/mL)	γ線スペクトロメトリ 測定値(Bq/mL)	差(%)
フィルター①	4.0±0.01	4.1	-1.9
フィルター②	12±0.004	11	7.7
フィルター③	1.1±0.002	定量下限値(3.7)以下	-

\*Yu Saegusa<sup>1</sup>, Noriyasu Kodaka<sup>1</sup>, Masahiko Yamamoto<sup>1</sup>, Kazushi Horigome<sup>1</sup>, Satoshi Inada<sup>1</sup> and Takehiko Kuno<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Japan Atomic Energy Agency