

燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発
(5) ICP-MS/MS 測定によるアクチノイド元素分析手法の検討

Development of Ultramicro Analysis Technology for Fuel Debris Analysis

(5) Consideration of Analytical Methods for Actinide Elements with ICP-MS/MS

*風間裕行¹, 関尾佳弘¹, 前田宏治¹, 小無健司², 阿部千景², 永井康介², 鈴木達也³

¹JAEA, ²東北大, ³長岡技大

燃料デブリ中のアクチノイドを含む多元素の高精度分析手法の確立を目的として、ICP-MS/MS を利用した分析手法の開発を進めている。本研究では、アクチノイド元素の適切な分析条件を見出すため、²³⁸U を含む標準溶液に対する ICP-MS/MS 測定を実施し、U の分析手法を検討した。

キーワード：燃料デブリ, ICP-MS/MS, アクチノイド, 分析化学

1. 緒言 福島第一原子力発電所の廃止措置を着実に進めるために、燃料デブリ中の核種分析法の確立は重要である。我々は、超微量の多元素を同時かつ迅速に定量可能とする ICP-MS/MS を利用した分析手法開発を実施している。ICP-MS/MS は、直列に配置された二つの質量分離部の間に位置するコリジョン・リアクションセル(CRC)に適切なガスを適切な流量で導入することで同重体干渉の除去が可能であり、ICP-MS の分析感度を保持しつつ、元素の単離を行う前処理の省力化が期待される。一方、燃料デブリに含まれるとされるアクチノイド元素を対象とし、CRC に種々のガスを導入した ICP-MS/MS 測定の十分な知見は得られておらず、効率的な燃料デブリ分析に向けた系統的検討が重要である。本研究では、ICP-MS/MS 測定におけるアクチノイドと反応ガスの基礎的な知見を得るために、U と Th を対象として、O₂ と CO₂ ガスにより生成する分子イオン種の種類と割合について調査した。

2. 実験 ²³⁸U 及び ²³²Th を 10³ ppt 含む 5 wt%硝酸水溶液を調製し、CRC に O₂ 又は CO₂ を流量 0.45 mL/min で導入し、ICP-MS/MS(Agilent 8900)測定を行った。本測定では、第 1 質量分離部で質量電荷比(*m/z*)238 又は 232 を通し、CRC において各ガスとの反応後、第 2 質量分離部で *m/z*=238-275 又は 232-275 のイオンを通すことにより生成イオンを同定した。

3. 結果と考察 ICP-MS/MS 測定結果を表 1 に示す。O₂ 及び CO₂ を CRC に導入したいずれの場合も、*m/z*=254, 270, 248, 264 において高い信号強度が確認された。本結果は、各ガスとの反応により ²³⁸U¹⁶O⁺, ²³⁸U¹⁶O₂⁺, ²³²Th¹⁶O⁺, ²³²Th¹⁶O₂⁺が生成されたことを意味する。分子イオンの生成比を評価したところ、O₂ との反応では MO₂⁺、CO₂ との反応では MO⁺(M=U, Th)が支配的に生成されることが明らかとなった。また、U 及び Th の間で MO₂⁺及び MO⁺イオンの生成比に差異が確認された。本結果は、U 及び Th の間で O₂ 及び CO₂ ガスへの反応性に違いが生じていることを意味しており、適切なガス流量を選択することにより、アクチノイド相互分離が期待される。今後 ²³⁸U のみならず他のアクチノイド元素の各ガスへの反応性を評価し、アクチノイドの分子イオン生成機構について明らかにするとともに、同重体干渉の除去を可能とする最適条件を探る。

本件は、令和 2 年度-令和 3 年度文部科学省「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」の研究課題「燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発」の研究成果を含む。

表 1. ICP-MS/MS 測定において確認された生成イオン種

<i>m/z</i> (product ion)	percentage	
	O ₂	CO ₂
238 (U ⁺)	< 0.1	< 0.1
254 (UO ⁺)	0.2	93.7
270 (UO ₂ ⁺)	99.3	5.7
232 (Th ⁺)	< 0.1	< 0.1
248 (ThO ⁺)	33.3	68.0
264 (ThO ₂ ⁺)	64.9	23.2

*Hiroyuki Kazama¹, Yoshihiro Sekio¹, Koji Maeda¹, Kenji Konashi², Chikage Abe², Yasuyoshi Nagai² and Tatsuya Suzuki³

¹Japan Atomic Energy Agency, ²Tohoku University, ³Nagaoka University of Technology