

燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発

(15) ICP-MS/MS による Am/Cm 相互分別

Development of Ultramicro Analysis Technology for Fuel Debris Analysis

(15) Mutual Discrimination of Am/Cm using ICP-MS/MS

*風間裕行¹, 関尾佳弘¹, 前田宏治¹, 小山真一¹, 鈴木達也², 小無健司³, 阿部千景³, 永井康介³,
¹JAEA, ²長岡技大, ³東北大

燃料デブリ中のアクチノイドを含む多元素の分析を簡易かつ高精度で行うための手法開発として、ICP-MS/MS の利用を検討している。本研究では、化学的湿式相互分離が困難とされる Am 及び Cm に着目し、これらを単離する前処理を行わずに分析を可能とする ICP-MS/MS による Am/Cm 相互分別条件を検討した。

キーワード: 燃料デブリ, ICP-MS/MS, Am, Cm, 分析化学

1. 緒言 福島第一原子力発電所の廃炉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喫緊の課題である。報告者らは、超微量の多元素を同時かつ迅速に定量可能とするトリプル四重極誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS/MS)の燃料デブリ分析への応用を検討している。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)に適切に反応性ガス等を導入することで同重体干渉の低減が可能であり、元素の単離を行うための前処理工程の省略が期待される。燃料デブリにアクチノイド元素が含まれる場合、Am と Cm は化学的性質が類似することから湿式相互分離が困難とされており、既往の方法でこれら同重体を含む核種を分析するためには、煩雑な前処理と長時間の放射線計測を要する。本研究では、Am, Cm を単離する前処理の省略によるこれら核種の迅速な分析を達成するため、CRC に一般的な反応ガスである CO₂を導入した際の Am, Cm の反応挙動を評価し、Am/Cm 相互分別に適した条件を検討した。

2. 実験 ²⁴¹Am 又は ²⁴⁴Cm を 10³ ng/L 含む 5 wt%硝酸水溶液を調製し、CRC に CO₂を 0 から 1.5 mL/min の流量で導入し、ICP-MS/MS(Agilent 8900)による測定を行った。ここで、第1質量分離部では質量電荷比(*m/z*)241 又は 244 以外のイオンを除去し、第2質量分離部で *m/z*=241-275 又は 244-275 以外のイオンを除去することで各生成イオンを検出した。続いて ²⁴¹Am 又は ²⁴⁴Cm を 10⁻³, 10⁻², 10⁻¹, 10⁰, 10¹, 10², 10³ ng/L 含む 5 wt%硝酸水溶液に対して、CRC に CO₂を流量 0.45 mL/min で導入した ICP-MS/MS 測定を行い、各生成イオン種の検量線を作成した。ブランクの信号強度の標準偏差の3倍値を検量線の傾きで除することにより、検出限界を評価した。

3. 結果と考察 CO₂流量変化に伴う ²⁴¹Am 及び ²⁴⁴Cm の生成イオン種の信号強度を図1に示す。CO₂流量 0.15-1.5 mL/min において、Cm では CmO⁺が、Am では Am⁺が支配的に検出され、Am と Cm の反応性の違いが確認された。CO₂流量を 0.45 mL/min とした際の Am⁺と Cm⁺の検出限界は、Am⁺では 0.02 ng/L, Cm⁺では 5 ng/L と明瞭な差を確認した。本結果から、Am と Cm の同重体の共存下において、CO₂を導入した ICP-MS/MS 測定により、Am⁺のみを選択的に検出することが可能であると考えられる。

本件は、令和3年度-令和4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。

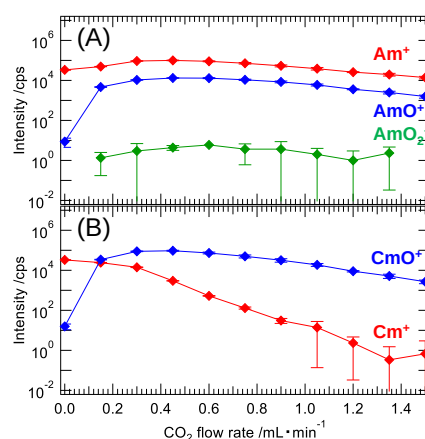


図 1. 生成イオン種の信号強度の CO₂ 流量依存性, (A) Am イオン種, (B) Cm イオン種。

*Hiroyuki Kazama¹, Yoshihiro Sekio¹, Koji Maeda¹, Shinichi Koyama¹, Tatsuya Suzuki², Kenji Konashi³, Chikage Abe³ and Yasuyoshi Nagai³

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