

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 低放射性廃液中の ^{129}I 測定

Measurement of iodine-129 in low radioactive liquid waste by inductively coupled plasma
mass spectrometry with collision reaction cell technique

*三枝 祐¹、山本 昌彦¹、稲田 聡¹、久野 剛彦¹

¹ 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、共存成分の影響を調査し、低放射性廃液中の ^{129}I の定量を試みた。

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、低放射性廃液、ヨウ素 129

1. 緒言

本研究では、廃棄体・廃棄物の処理処分において濃度測定ニーズが高い ^{129}I について、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)を利用することで同重体の影響を排除した高感度分析技術の開発を行っている。これまで、 ^{129}I の同重体であるプラズマ由来の $^{129}\text{Xe}^+$ に対して、CRC-ICP-MS に O_2 ガスを導入し、 $^{129}\text{Xe}^+$ と O_2 の電荷移動反応を利用することで $^{129}\text{Xe}^+$ の影響を受けない東海再処理施設の廃液処理施設から採取したヨウ素吸着フィルター中の ^{129}I の測定に成功した[1]。本件では、低放射性廃液(LLW)の元素組成(Na を主成分とする 26 元素)を模擬した試料(模擬廃液)を用いて、試料中の共存成分の測定への影響を調査した上で、実際の LLW 中の ^{129}I を定量したので、その結果を報告する。

2. 実験

CRC-ICP-MS には PerkinElmer 製 NexION350D、 O_2 ガスには ATOX 製高純度 O_2 ガス(純度：99.999%)を使用した。ヨウ素標準溶液(安定同位体である ^{127}I を含有)は関東化学製ヨウ化カリウムを 1%亜硫酸アンモニウム溶液で溶解・定容して調整した。 ^{129}I 標準溶液はフランス LMRI 製放射性同位元素標準を 1%亜硫酸アンモニウム溶液で適宜希釈して調整した。模擬廃液、実 LLW は、1%亜硫酸アンモニウム溶液で 20 万倍に希釈して質量電荷比(m/z)=127、129 を測定した。

3. 結果及び考察

(1) 共存成分の影響とその排除

前報[1]にて ^{129}I に同重体として干渉する ^{129}Xe の影響を排除するために最適化した O_2 ガス流量(1.1 mL/min)を CRC-ICP-MS に導入し、ヨウ素標準溶液と模擬廃液を測定した(両者とも ^{127}I 濃度:100 ng/L)。その結果、模擬廃液ではヨウ素標準溶液よりも $m/z=127$ 、129 で高いピーク強度を示した。実 LLW は Na を主成分とし、微量の核分裂生成物(Cs, Sr, Mo, Zr 等)、U、Pu 等が含まれている。質量分解能を有する CRC-ICP-MS 測定において、これらが $m/z=127$ 、129 の測定に影響を及ぼすことはない。しかし、Mo($m/z=97$)、Zr($m/z=97$)が導入した O_2 ガスと酸化イオン(MoO_2^+ 、 ZrO_2^+)を形成したため[2]、模擬廃液で高いピーク強度が生じたと考えられる。

PerkinElmer 製 CRC-ICP-MS のコリジョンリアクションセル内は四重極の電圧パラメータ(RPq、前報までの設定値 0.45)を増加させることでセルを通過するイオンのうち、測定対象よりも小さい m/z のイオンを排除できる[3]。そこで、徐々に RPq を増加させた結果、図 1 に示すように、 $m/z=127$ ではヨウ素標準溶液と模擬廃液のピーク強度が近接し、RPq=0.80 でほぼ同じになった。 $m/z=129$ では RPq=0.80 で模擬廃液のピーク強度はほぼゼロになった。以上から RPq を増加させることで MoO_2^+ 、 ZrO_2^+ の影響を排除しつつ、模擬廃液中の ^{127}I 及び ^{129}I を定量できることがわかった。

(2) 実 LLW 中の ^{129}I 濃度の定量

上記で得られた条件で測定した実 LLW 中の ^{129}I の定量結果を表 1 に示す。CRC-ICP-MS で定量した ^{129}I 濃度は 18.3 mg/L であり、 γ 線スペクトロメトリによる測定結果と良好に一致した。これらの結果より、試料中の共存成分の影響を受けずに実 LLW 中の ^{129}I を高感度に定量(検出限界： 1.4×10^{-6} mg/L)できることがわかった。

4. 結論

前報で最適化した O_2 ガス流量に加え、四重極の電圧パラメータを増加させることで実 LLW 中の共存成分の影響を受けずに高感度で ^{129}I を分析する方法を開発した。今後、他の再処理工程内試料への適用性についても検討していく予定である。

参考文献

- 1) 三枝, 他, 日本原子力学会 2020 年秋の大会, 2F01.
- 2) S. Diez-Fernandez, H. Isnard, A. Nonell, C. Bresson and F. Chartier, J.Anal.At. Spectrom., 2020, 35, 2793
- 3) 山田 憲幸, 高橋 純一, 分析化学, 67, pp. 249-279 (2018).

*Yu Saegusa¹, Masahiko Yamamoto¹, Satoshi Inada¹ and Takehiko Kuno¹

¹Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

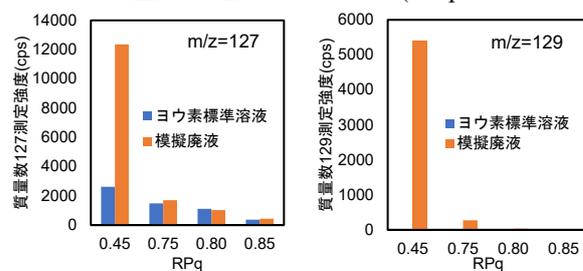


図 1 ヨウ素標準溶液、模擬廃液測定時の RPq の影響

表 1 実 LLW 中のヨウ素濃度の定量結果

試料	測定方法	
	CRC-ICP-MS (mg/L)	γ 線スペクトロメトリ (mg/L)
実LLW	18.3 (RSD : 1.1 %)	17.9 (RSD : 4.2 %)