

プログラム名：核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化

PM名：藤田 玲子

プロジェクト名：核反応データ取得及び新核反応制御法

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 (成 果)

平成 28 年度

研究開発課題名：

J-PARC/MLF/ANNRI における中性子捕獲反応断面積測定研究（2）

研究開発機関名：

国立大学法人 京都大学

研究開発責任者

芝原 雄司

I 当該年度における計画と成果

1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

表面電離型質量分析装置（以下、TIMS）を用いた、課題番号 2014-PM08-08-01 で用いる Cs-135,137 密封化試料の高精度な同位体比分析のために、以下の項目を実施した：

- ① 天然 Cs や安定同位体試料を使用したコールド試験：本項目では、(1) Sr および Ba の安定同位体試料並びに(2) 天然 Cs（以下、Cs-133）試料を用いて、課題番号 2014-PM08-08-01 で使用する Cs-135,137 密封化試料の同位体比分析精度の高度化に資する検討を行う。
- ② Cs-135,137 密封化試料を用いたホット試験：本項目では、Cs-135,137 密封化試料の同位体比分析へのコールド試験結果の適用性の検討を行う。

2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

2-1 進捗状況

- ① 天然 Cs や安定同位体試料を使用したコールド試験：本項目では、(1) Sr および Ba の安定同位体試料を用いて、ビーム強度と分析精度との関係性を評価し、(2) Cs-133 試料を用いて、同位体比分析で使用する試料量と Cs-133 のビーム強度との関係を分析した。これらの結果と課題番号 2014-PM08-08-01 で要求される同位体比分析精度（0.5%、 $\pm 2\sigma$ ）をもとに、Cs-135,137 密封化試料の同位体比分析で使用する放射性 Cs の使用量（Cs-137 を基準とする）に関するデータを導出した。また、Cs-133 と Ba の安定同位体試料を用いて、TIMS での Cs の同位体比分析で起こる同重体干渉として最も懸念される Ba の影響についても検討した。
- ② Cs-135,137 密封化試料を用いたホット試験：本項目では、Cs-135,137 密封化試料の同位体比分析の第一試料として Cs-137 標準溶液（含む Cs-135）の同位体比分析を実施した。この際、要求される同位体比分析精度の実現性についても検討した。

2-2 成果

- ① 天然 Cs や安定同位体試料を使用したコールド試験：本項目の(1)では、Sr および Ba のビーム強度を変化させて、同位体比分析精度（Sr-87/Sr-86 および Ba-135/Ba-137）を調べ（図 1）、Cs-135, 137 密封化試料の分析に必要なビーム強度を評価した。また、(2)では、TIMS での Cs-133 使用量と得られる Cs-133 のビーム強度との関係を調べ（図 2）、Cs-135,137 密封化試料の同位体比分析に必要な試料量（Cs-137 を基準として）に関して検討した。これらの結果、必要な試料量の下限は 1 pg 程度であると見積もられた。実際の試料分析では、余裕を持たせて、使用量を 3 pg（Cs-137 で 10 Bq）とした。また、TIMS での Cs の同位体比分析で起こる同重体干渉として最も懸念される Ba の影響について調べるために、Cs-133 と同量の Ba が共存させた場合のビーム強度を観測し（図 3）、その影響が少ないであろうことを確認した。

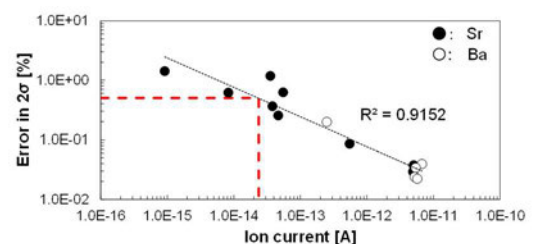


図 1 ビーム強度と分析精度の評価結果

② Cs-135,137 密封化試料を用いたホット試験：本年度は、同位体比分析の対象試料として、RI 協会より入手した Cs-137 標準溶液を分析した。この試料溶液は、平成 29 年 3 月に京都大学原子炉実験所に受け入れ完了した。原液の塩酸系溶液を硝酸系溶液に転換する処理を行い、それ以外の精製処理を施さず分析試料として用いた。観測されたマススペクトルは図 4 であり、また、Cs-135/Cs-137 比として 0.868 ± 0.004 ($n = 3, \pm 2\sigma$) を得た (校正証明書に記載されている校正年月日 2016 年 9 月 13 日に減衰補正すると、上述の同位体比は、0.859 となる)。この時観測した相対誤差 (0.47%) は、課題番号 2014-PM08-08-01 で要求されている 0.5% ($\pm 2\sigma$) の分析精度をクリアしており、①での検討結果の適用性を確認できた。ただし、得られたマススペクトルを詳細に調べると、マススペクトルに質量数 134, 135, 136, 138 に Cs 以外が由来と考えられるこぶ状のピーク (以下、偽ピーク) が確認された (図 5, 赤)。図 3 で確認した Cs と Ba のビームの出方、および偽ピークが全て高質量数側に出現していることより、偽ピークは Ba では無いと結論付けた。偽ピークの他の可能性として、原液中に存在していると推測される緩衝剤等の化学種が基で生成された、分子イオン類の可能性が考えられる。そこで、陽イオン樹脂を用いて料溶液を更に精製し、かつ、TIMS による分析スキームに若干の変更を施して、再度同位体比分析を試みた。結果、その時に観測したマススペクトルは偽ピークをほぼ消去できていること (図 5, 黒)、および同位体分析結果が誤差範囲内で上述の値と一致することを確認した。本検討により分析方法の適用性が確認できた。

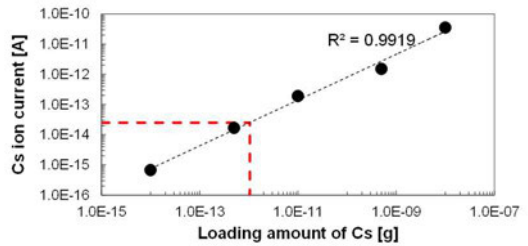


図 2 Cs 使用量とビーム強度の分析結果

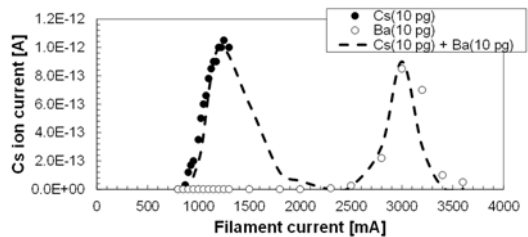


図 3 フィラメントカレントとビーム強度

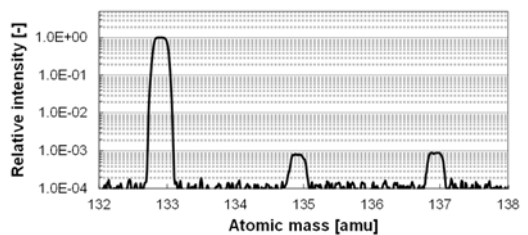


図 4 Cs-137 標準試料のマススペクトル-1

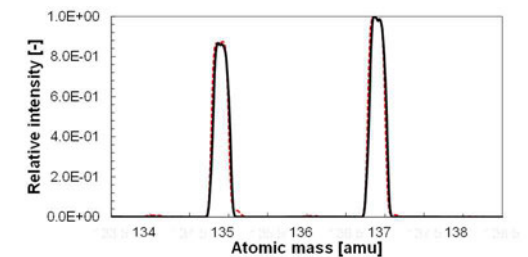


図 5 Cs-137 標準試料のマススペクトル-2

2-3 新たな課題など

コールド試験等をもっと行って同位体比分析精度の更なる高度化を試みるとともに、課題番号 2014-PM08-08-01 で使用する Cs-135,137 密封化試料の実試料分析を進めていく。

3. アウトリーチ活動報告

実績なし