

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 2 9 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 (TIMS) を用いた, 課題番号 2014-PM08-08-01 の中性子捕獲反応断面積の測定研究で用いる 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) Cs-135, 137 密封化試料および標準溶液質量分析のホット試験: 本項目では, 昨年度検討したワールド試験結果の Cs-135,137 密封化試料への適用性の検証試験を行った。TIMS で使用する添加剤をさらに検討し, (1)ビーム強度の向上と安定性に関する検討, および(2)昨年度観測した不純物由来と思われるダミーピークの低減を目的とした, 各添加剤の有用性の検討を行った。また, 課題番号 2014-PM08-08-01 で新たに入手したロシア製の Cs-135 試料の分析を行った。

(2) 質量分析試験で検討した手法の適用性の確認およびまとめ: 本項目では, 数種類の起源を持つ放射性 Cs の同位体分析および分析結果の評価を行い, 他の分析手法の結果との比較による系統誤差の評価を試み, 本分析手法の適用性の確認を行った。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分析結果の検証を行った。

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) Cs-135, 137 密封化試料および標準溶液質量分析のホット試験: 本年度は, TaO の使用に加えて, Cs の同位体分析でビーム強度の安定性と不純物由来のダミーピークの低減で実績のある [3,4] グルコース, TIMS の分析で一般的に実績のあるシリカゲルならびにグラファイトパウダーを塗布した分析試料も調製した。これら調製した分析試料を用いて, (1)ビーム強度の向上および安定性, ならびに(2)ダミーピークの低減性に関する検討を行った。

昨年度に分析を実施した日本 RI 協会から入手の Cs-137 標準試料の分析を続けた。分析結果の経時変化を基にした Cs-137 の半減期評価により, TIMS による分析結果の妥当性の確認を行うとともに, 添加剤の変更による同位体分析結果への影響についても確認した。

上記の結果を基に, ロシア (JSC Khlopin Radium Institute) 製の Cs-135 試料の同位体分析を行った。

(2) 質量分析試験で検討した手法の適用性の確認およびまとめ: 本項目では, 複数の起源を持つ放射性 Cs を環境試料等から回収し, TIMS による Cs の同位体分析を行った。本研究 Gr によるこれら試料の Cs 同位体分析結果と他の Gr および手法による同試料の Cs 同位体分析結果および同位体比評価結果を用いて, Cs 同位体分析での系統誤差の評価を試みた。

ロシア (JSC Khlopin Radium Institute) 製の Cs-135 試料の分析結果に対して, 分析結果が入手元より示されていた値との間に有意の差を示すことを確認した。その原因についてコンタミネーションを想定し, その可能性についての検討を行った。

2-2 成果

(1) Cs-135, 137 密封化試料および標準溶液質量分析のホット試験: 本検討で使用した添加剤全てで, 添加剤を未使用の場合よりも 2 桁程度のビーム強度の向上を確認した (図 1)。ビーム強度の安定性および昨年度観測したダミーピークの影響を考慮すると, 添加剤としては昨年度から使用の TaO とグルコースが適していることを確認した。

Cs-137 標準試料の同位体比の経時変化観測（図 2）に関しては、Cs-137 の減衰を考慮すると良い再現性を示すことを確認した (0.867 ± 0.001)。

これまでの知見を基に、課題番号 2014-PM08-08-01 で新たに入手したロシア製の Cs-135 試料の同位体分析を行った（図 3）。 $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比分析結果として、 0.958 ± 0.005 を得たが、この値は入手元より提供されている値 ($^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs} > 2$) と大きく異なっていた。

(2) 質量分析試験で検討した手法の適用性の確認およびまとめ: 上記のロシア製 Cs-135 試料の分析結果の妥当性を検討するため、TIMS による分析の系統誤差およびコンタミの可能性についての検討を行った。

系統誤差評価については、複数の起源を持つ放射性 Cs の同位体分析結果と文献値との比較により、両者が良い一致を示すことを確認した（図 4）。

また、ロシアより入手の Cs-135 試料の同位体分析結果について、コンタミネーションの可能性について検討した。コンタミの原因として、①Ba 等の他元素のコンタミ（同重体干渉）やダミーピーク等の影響、および②他の試料由来の放射性 Cs のコンタミの 2 点についての検討を行った。①については、TIMS による分析の前に行っている化学精製の有無にかかわらず $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比の分析結果は一致しているので、可能性は限りなく低いと結論付けた。また、②の影響について、図 4 の評価で使用した環境試料由来の放射性 Cs や昨年度から使用している Cs-137 標準試料が混入した場合を想定したが、その場合でも本研究での観測結果は再現できないことを確認した（図 5）。よって、分析方法や分析結果に問題が無いことを確認した。

2-3 新たな課題など

特になし

3. アウトリーチ活動報告

実績なし

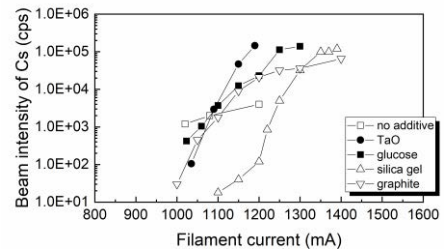


図 1. 各添加剤使用時のフィラメントへの通電量と Cs のビーム強度との関係

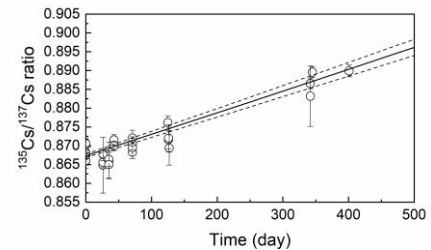


図 2. Cs-137 標準試料の $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比分析結果の経時変化

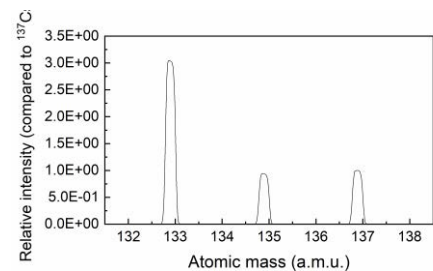


図 3. ロシア製 Cs-135 試料のマススペクトル

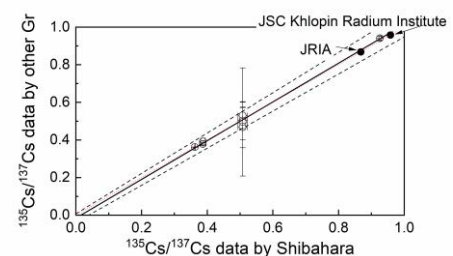


図 4 各試料より採取した Cs 同位体比分析結果の比較

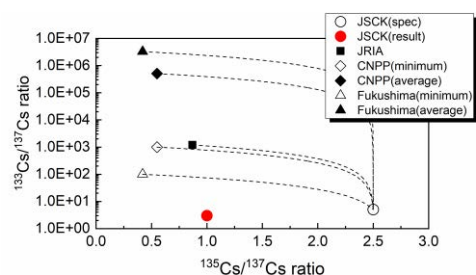


図 5. $^{135}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比と $^{133}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比の比較