



難分析核種用 マイクロ分析システムの構築

塚原剛彦(東工大・先導原研)

【背景； 廃止措置に伴う廃棄物分析の現状と課題】

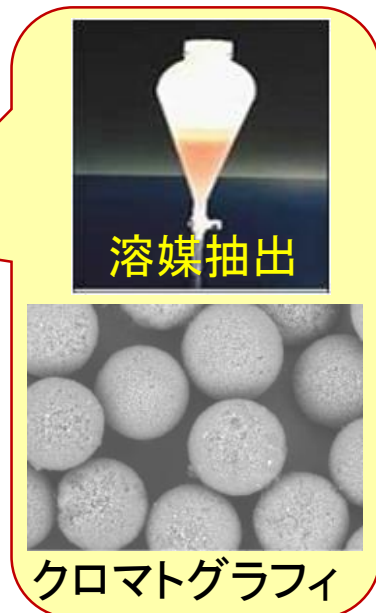
現状 多種多様・大量の廃棄物の処理処分に向けて

- ⇒性状把握(種類、濃度、組成)；
主に38核種(α , β , γ)対象
- ⇒分類分け・安全評価
(除染の有無、汚染レベル等)



既存分析法の課題

	加速器 質量分析 (AMS)	レーザー共鳴 イオン化質量分 析(RIMS)	プラズマ質量 分析 (ICP-MS)	放射線ス ペクトロメ トリ
汎用性	大型・高度な装置		複雑な化学操作 (妨害核種の干渉を除く)	
分析時間	数時間 / 1試料			
試料量	mL ~ / 1試料			
分析作業 廃液量	数L ~ / 1試料 (件数 約3万件/年 ⇒ 数100m ³ /年)			



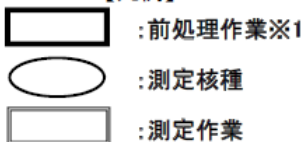
➤ 分析の難しい核種においては更に労力過多

極微量な試料量で、化学操作・試料ハンドリングの労力が少なく、
迅速・簡便に核種分析できる技術が必須

【38核種分析フロー】

[大熊分析・研究施設第1棟を想定]

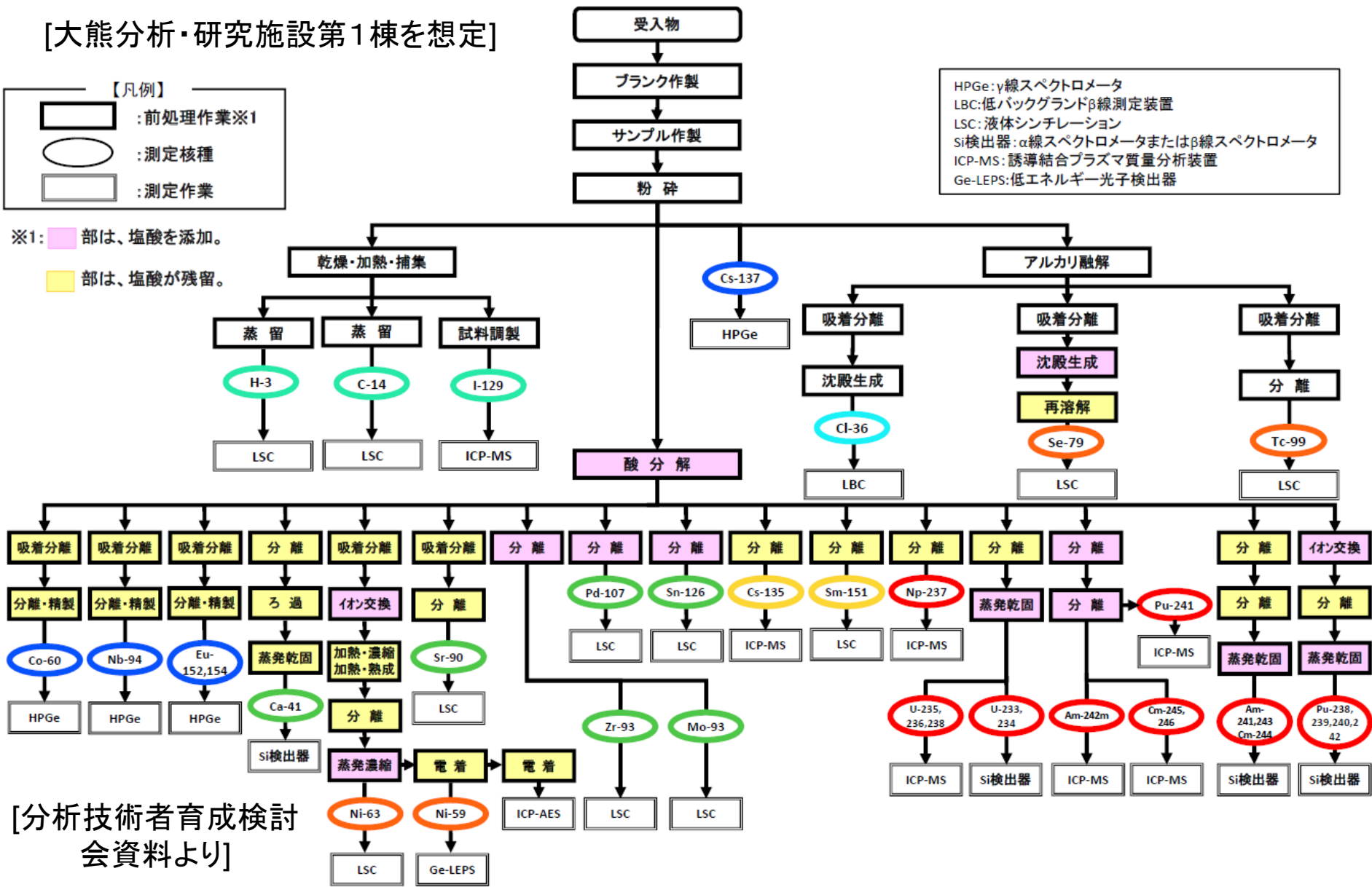
【凡例】



HPGe: γ線スペクトロメータ
 LBC: 低バックグラウンドβ線測定装置
 LSC: 液体シンチレーション
 Si検出器: α線スペクトロメータまたはβ線スペクトロメータ
 ICP-MS: 誘導結合プラズマ質量分析装置
 Ge-LEPS: 低エネルギー光子検出器

※1: 部は、塩酸を添加。

部は、塩酸が残留。



[分析技術者育成検討
会資料より]

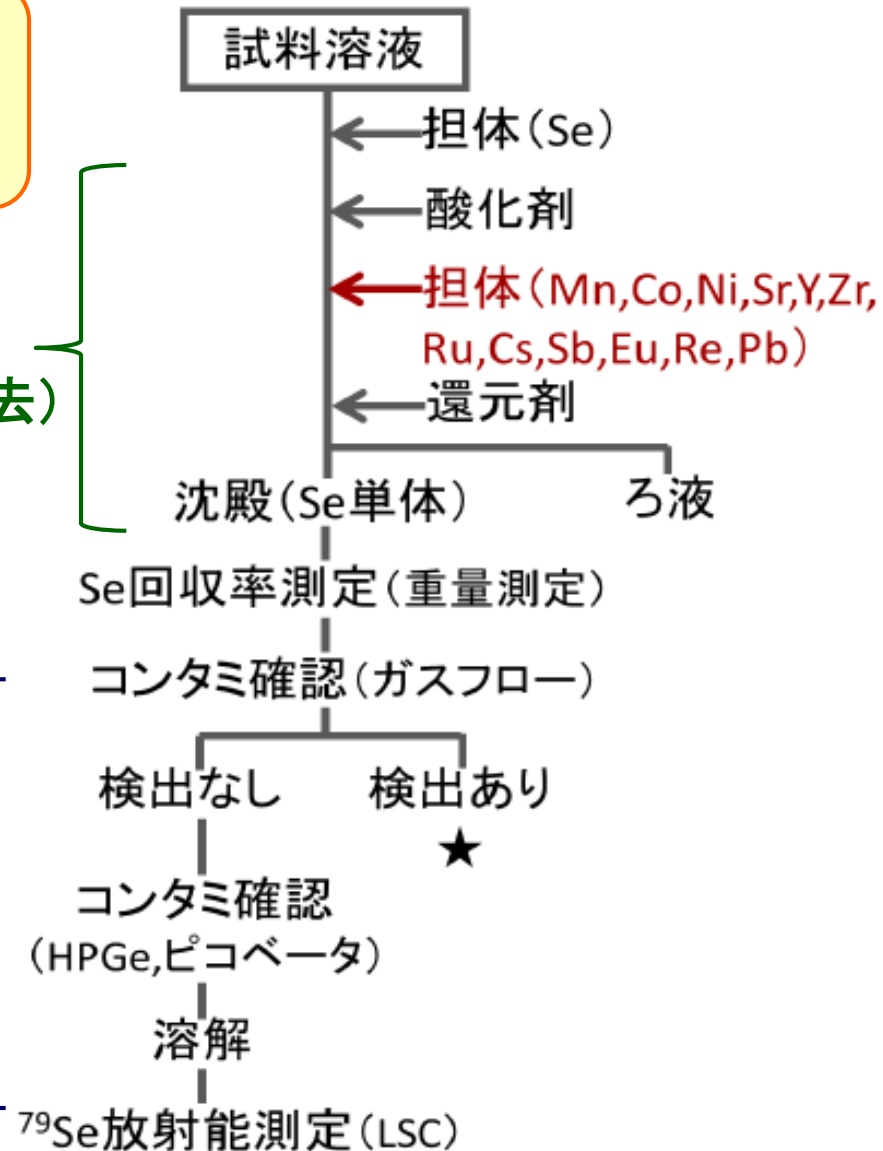
分析の難しいβ核種 (⁹⁰Sr, ⁷⁹Se等) が有る

【例：現状の ^{79}Se 分離分析フロー】

- ・低濃度：使用済燃料中に約6g / 1t
- ・長寿命核種：半減期が約30万年
- ・核データが不十分

複雑な化学操作法
(妨害核種の干渉除去)

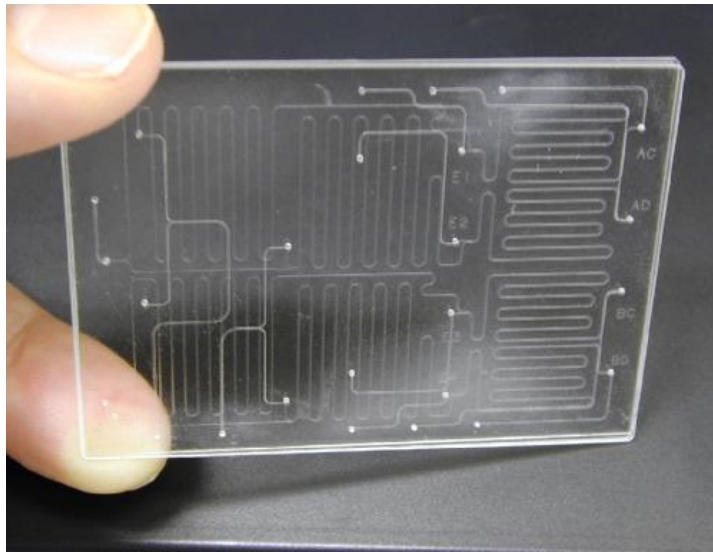
分析法
(大型・高度な装置)



[JAEA-Technology 2009-051等]

迅速, 簡易, 極微量, 高感度な分離分析ツールが必須

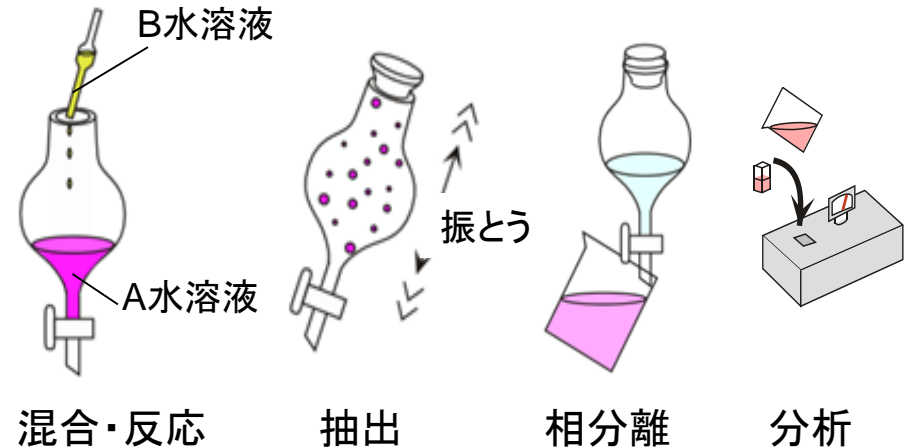
【マイクロ化学チップの特徴】



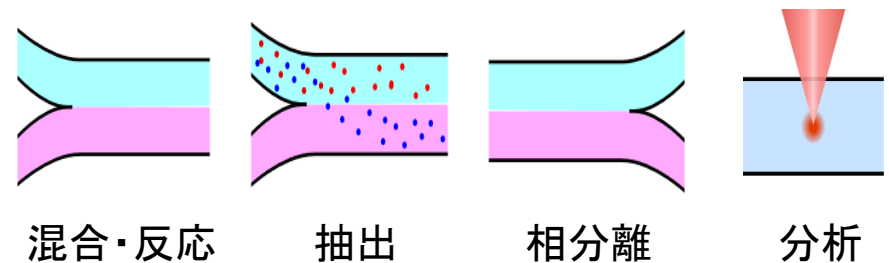
- ▶ 短い分子拡散距離
- ▶ 大きな比界面積
(単位体積あたりの表面積)
- ▶ 重力よりも界面張力支配
- ▶ 流れが層流
- ▶ 極微量 ($pL = 10^{-12}L$) 分析可能*

*[10 μ m立方空間の容積]

マクロ単位操作



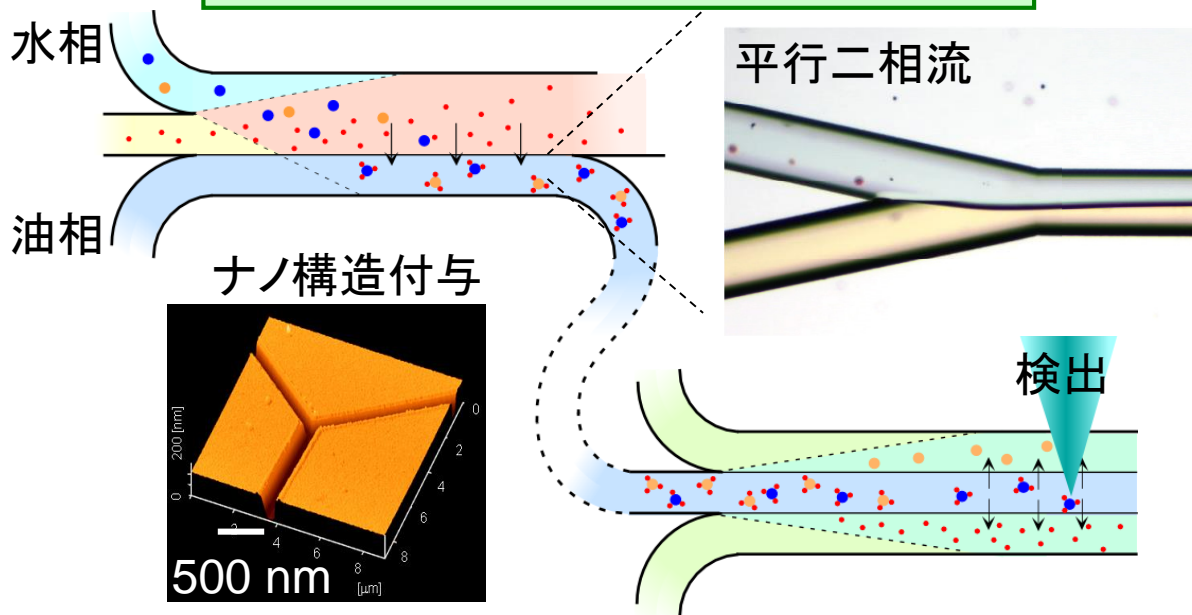
マイクロ単位操作



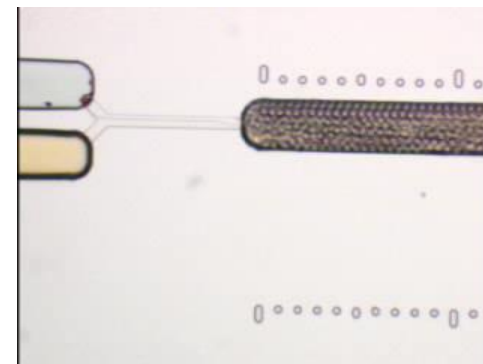
極微量で高速な分離分析
(バルクではできない精緻な操作)

【マイクロ化学チップ分析：これまでの実績】

1. 様々なマイクロ流体抽出操作



エマルジョン流

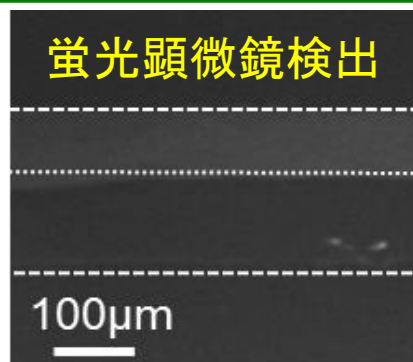


2. マイクロ電解価数調整

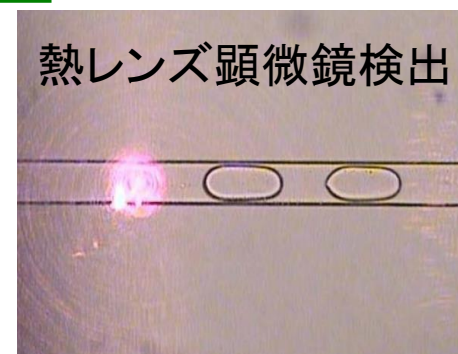


3. マイクロ in situ 計測

蛍光顕微鏡検出

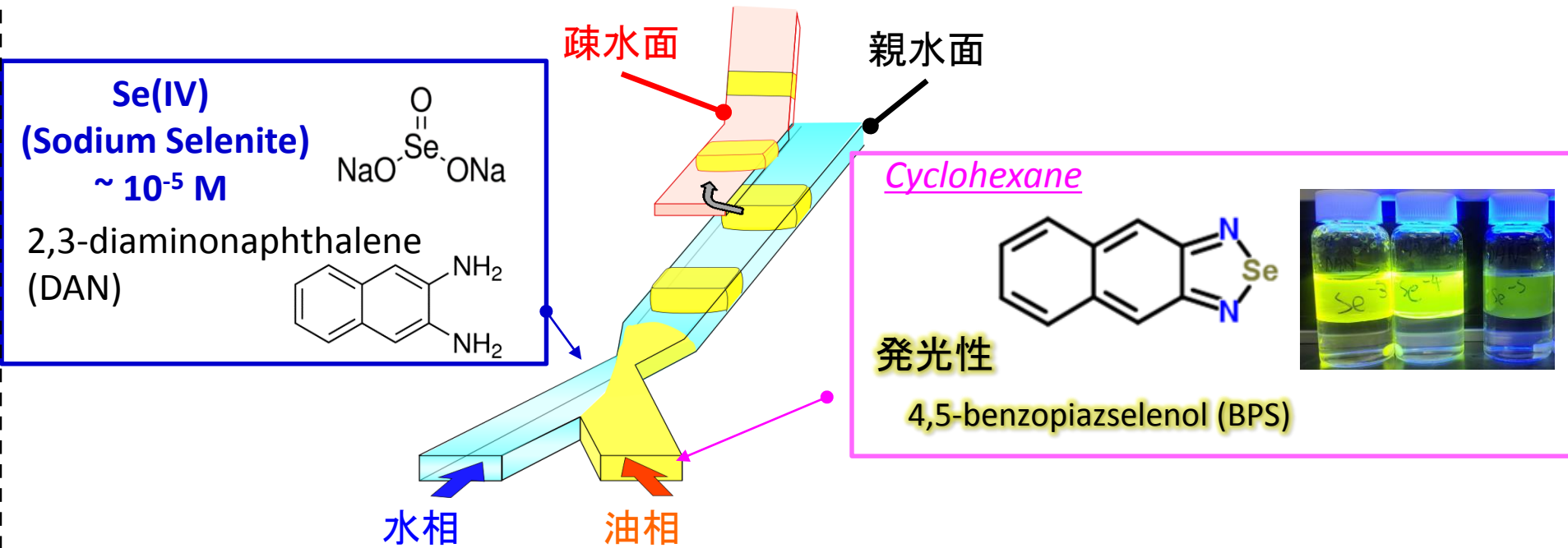
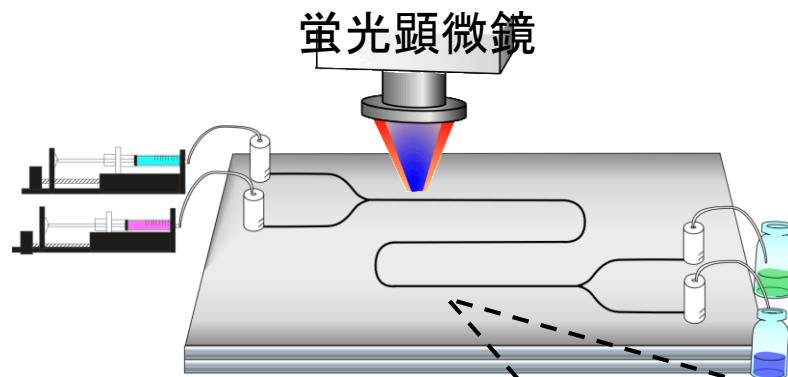


熱レンズ顕微鏡検出



[例] U(VI)分析: 2 秒 (バルク2時間)、廃液: 10 μL (vs.100 mL)、電解: 2分 (vs.8時間)

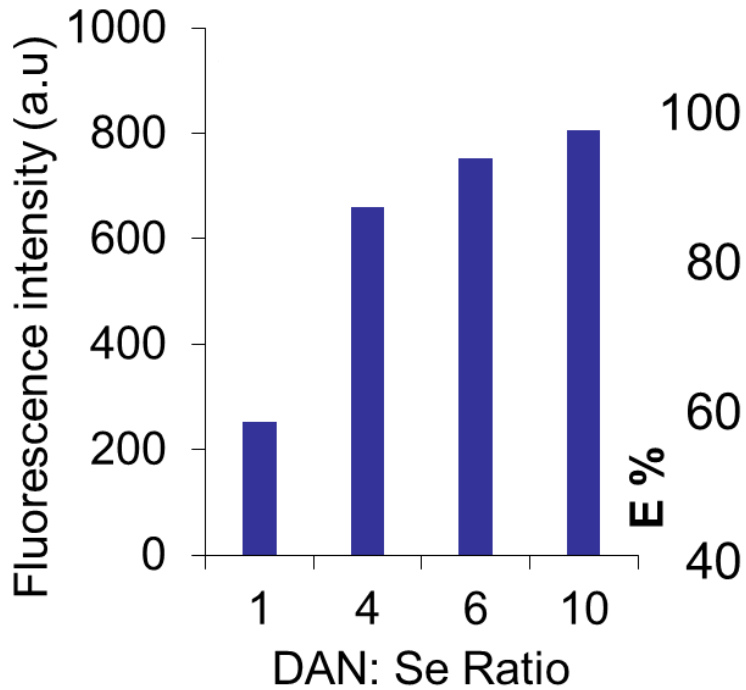
【マイクロ溶媒抽出によるSe(IV)分離分析】



油水プラグ流による高速溶媒抽出と蛍光観察によるSe分析へ

【マイクロ溶媒抽出によるSe(IV)分離分析】

マイクロ流路中油相の蛍光強度変化



$$D_{Se} = \frac{[Se]_{org}}{[Se]_{aq}} \quad \%E = \frac{100D_{Se}}{D_{Se} + \frac{V_{aq}}{V_{org}}}$$

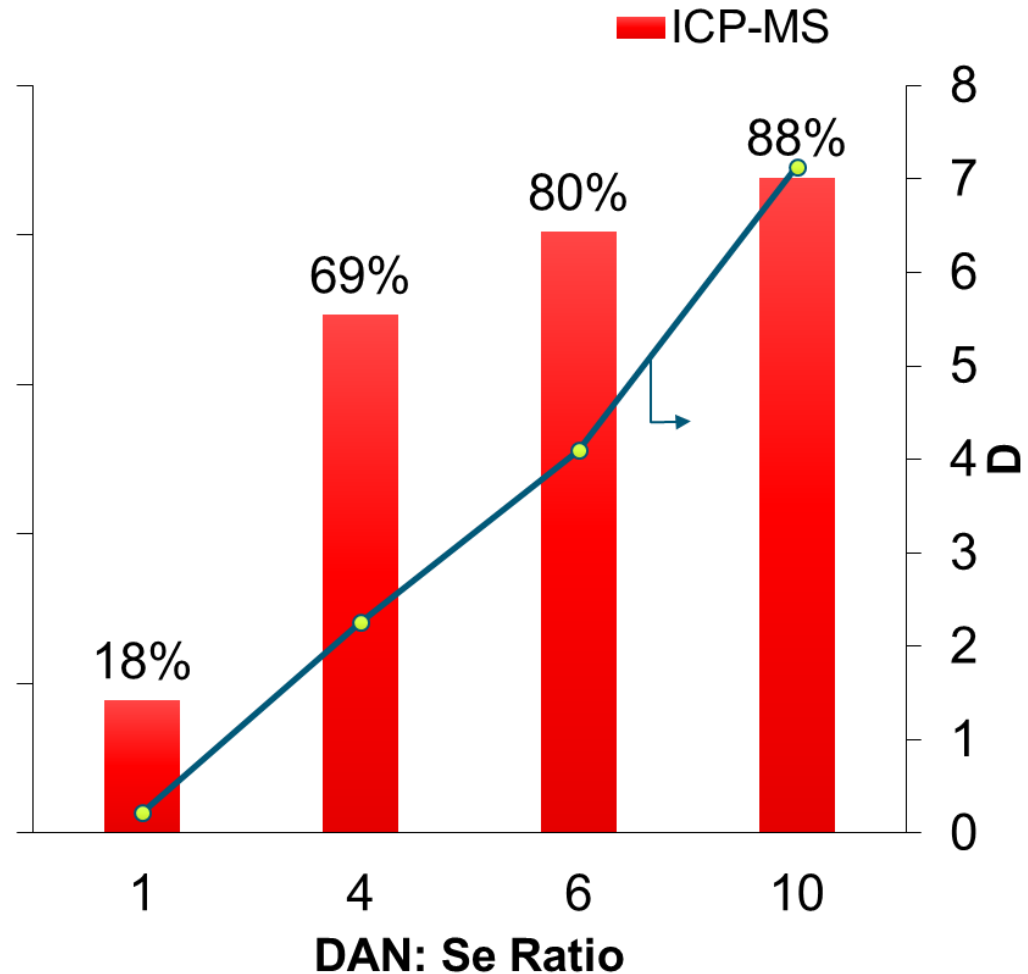
[Se]_{org} [mol/L]= conc. of Se in org.

[Se]_{aq} [mol/L]= conc. of Se in aq.

V_{aq} [L] = volume of Se in aq. phase

V_{org} [L] = volume of Se in org. phase

水相のICP-MS測定結果

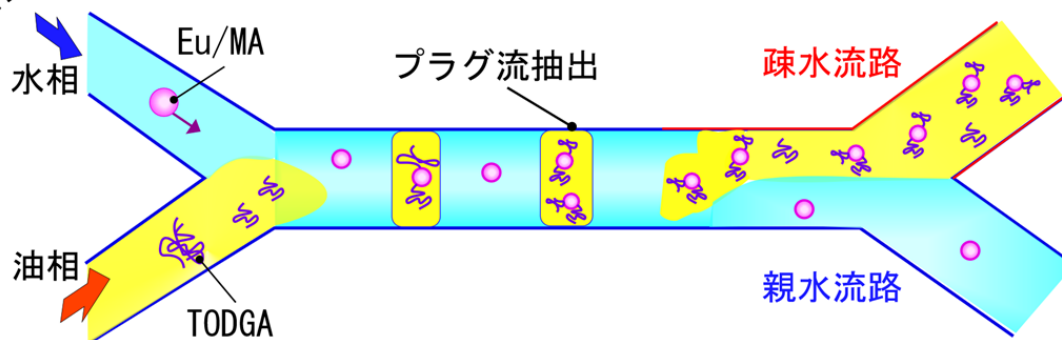
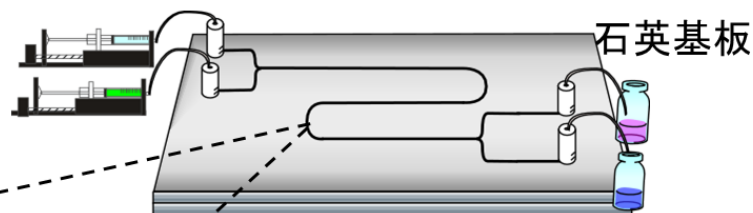


- 蛍光観察によるその場計測
- 試薬量10uL、観測領域10pL

【高線量核種のマイクロ溶媒抽出試験】

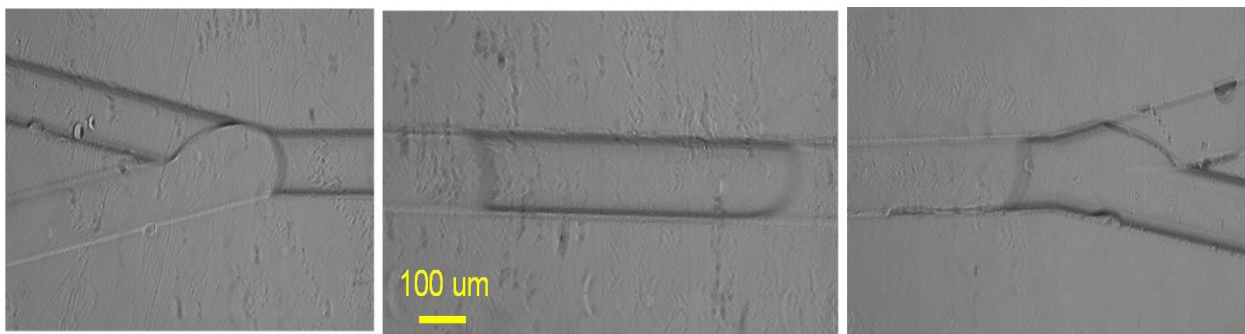
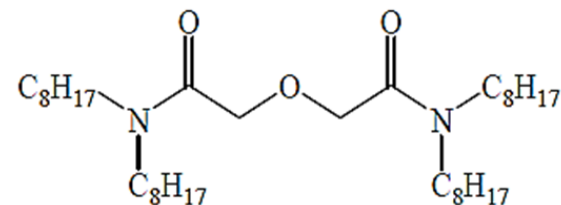
水相
Am-241, Cm-243, Eu-152
($\sim 10^8$ Bq/L)

回収試料をGe半導体
検出器で測定(1週間)



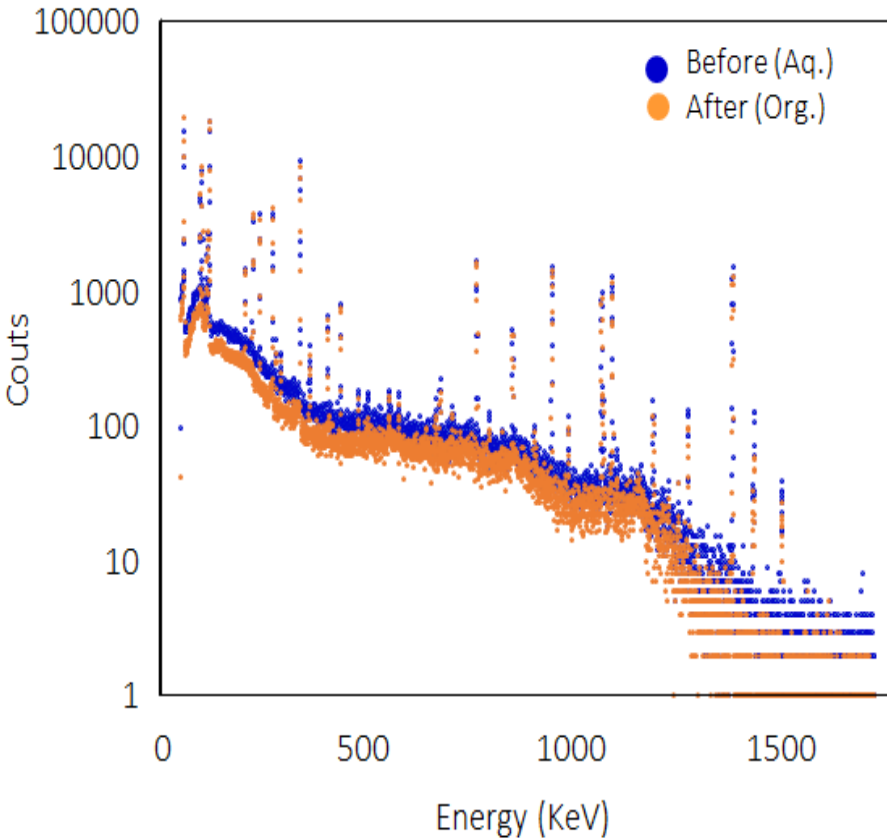
水相: Am-241, Cm-243, Eu-152含有硝酸水溶液

油相: 0.1, 0.5, 1.0 MのN,N,N',N'-
tetraoctyl-3-oxapentane-1,5-diamide
(TODGA)含有ドデカン溶液



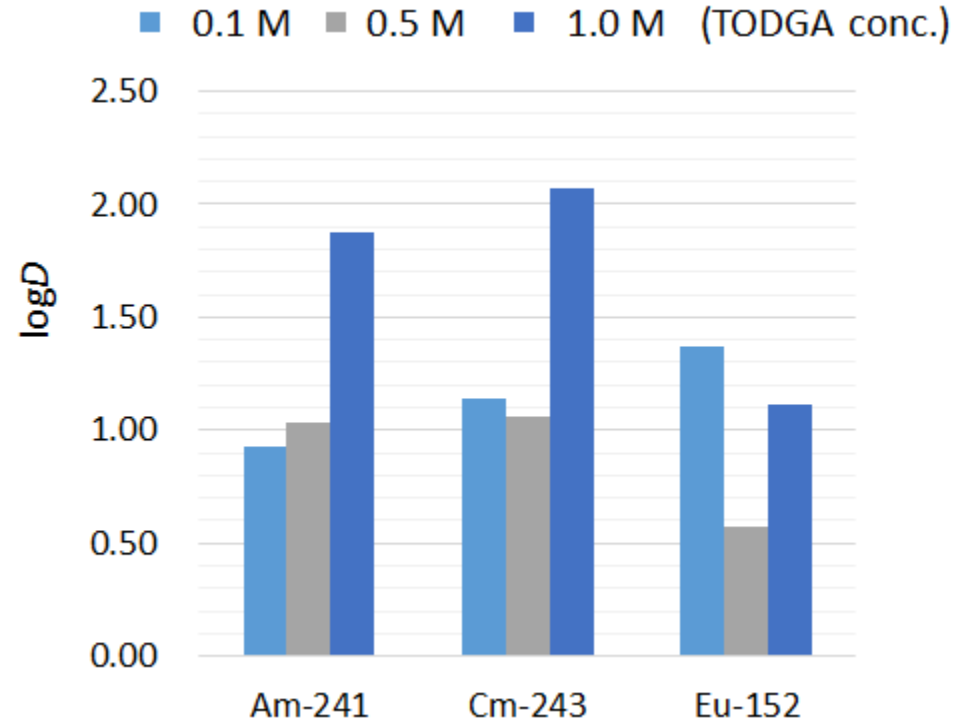
【マイクロ溶媒抽出による抽出特性の評価】

マイクロ抽出後の γ 線スペクトル



Am-241(59.5keV), Cm-243(278.5keV),
Eu-152(345keV)に主ピークを観測

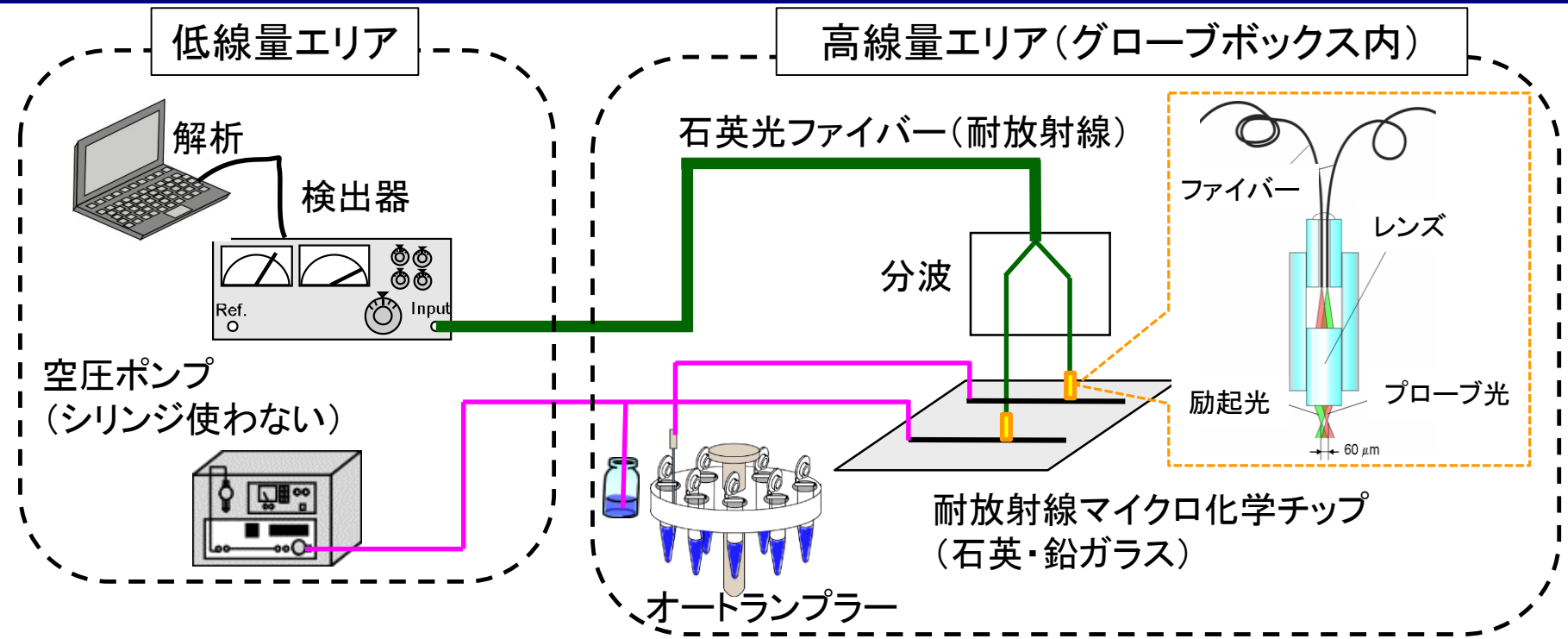
各分配比のTODGA濃度依存性



アクチノイド (Am-241, Cm-243) がランタノイド (Eu-152) よりも約5倍高い抽出効率

マイクロプラグ流により、 γ 線核種であっても秒スケールで抽出可能。

【廃炉現場への適用に向けて】



ファイバー型検出部

