



JAEA-Technology

2006-007



JP0650349

## NUCEF 分析業務報告書 —平成16年度—

Annual Report on Analytical Works  
at NUCEF in FY 2004

西沢 英俊 深谷 洋行 薩田 晓 坂爪 克則  
清水 香織 芳賀 孝久 境 裕\* 坏 英之\*  
新妻 泰 井上 猛 白橋 浩一

Hidetoshi NISHIZAWA, Hiroyuki FUKAYA, Takashi SONODA, Yoshinori SAKAZUME,  
Kaori SHIMIZU, Takahisa HAGA, Yutaka SAKAI\*, Hideyuki AKUTSU\*, Yasushi NIITSUMA,  
Takeshi INOUE and Koichi SHIRAHASHI

東海研究開発センター  
原子力科学研究所  
安全試験施設管理部

Department of Criticality and Fuel Cycle Research Facilities  
Nuclear Science Research Institute  
Tokai Research and Development Center

March 2006

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA  
Technology  
Kobayashi

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に刊行している研究開発報告書です。  
本レポートの全部または一部を複写・複製・転載する場合は下記にお問い合わせ下さい。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4  
日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課  
Tel.029-282-6387, Fax.029-282-5920

This report was issued subject to the copyright of Japan Atomic Energy Agency.  
Inquiries about the copyright and reproduction should be addressed to :

Intellectual Resources Section,  
Intellectual Resources Department  
2-4, Shirakata-shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, JAPAN  
Tel.029-282-6387, Fax.029-282-5920

©日本原子力研究開発機構, Japan Atomic Energy Agency, 2006

NUCEF 分析業務報告書

－ 平成 16 年度 －

日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター 原子力科学研究所  
安全試験施設管理部

西沢 英俊<sup>\*1</sup>・深谷 洋行・菌田 曜・坂爪 克則・清水 香織  
芳賀 孝久<sup>\*2</sup>・境 裕<sup>\*1</sup>・坪 英之<sup>\*2</sup>・新妻 泰・井上 猛・白橋 浩一<sup>+</sup>

(2006 年 1 月 24 日受理)

燃料サイクル安全工学研究施設 (NUCEF) の分析設備では、定常臨界実験装置 (STACY)、過渡臨界実験装置 (TRACY) 及び燃料調製設備の運転にあたって、STACY 及び TRACY の溶液燃料である硝酸ウラニル溶液に関する分析を実施している。

平成 16 年度は、STACY 及び TRACY における臨界実験前後の硝酸ウラニル溶液の性状分析、硝酸ウラニル溶液調整のための分析を行うとともに、核燃料物質の計量管理のための硝酸ウラニル溶液の分析も行った。また、MOX 燃料溶解液からのウラン (U) / プルトニウム (Pu) の抽出分離試験で発生した抽出廃液の処理に係わる分析を行った。

平成 16 年度における総分析試料数は、160 試料であった。

本報告書は、平成 16 年度に実施した分析等の業務についてまとめたものである。

---

原子力科学研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

※1 東京ニュークリア・サービス（株）より出向中

※2 東京ニュークリア・サービス（株）より出向中

（原子力基礎工学部門 環境・放射線工学ユニット）

\*1 東京ニュークリア・サービス（株）

\*2 (株) テクノプロセス

+ 保安管理部

Annual Report on Analytical Works at NUCEF in FY 2004

Hidetoshi NISHIZAWA<sup>\*1</sup>, Hiroyuki FUKAYA, Takashi SONODA, Yoshinori SAKAZUME  
Kaori SHIMIZU, Takahisa HAGA<sup>\*2</sup>, Yutaka SAKAI<sup>\*1</sup>, Hideyuki AKUTSU<sup>\*2</sup>  
Yasushi NIITSUMA, Takeshi INOUE and Koichi SHIRAHASHI<sup>+</sup>

Department of Criticality and Fuel Cycle Research Facilities  
Nuclear Science Research Institute  
Tokai Research and Development Center  
Japan Atomic Energy Agency  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 24, 2006)

Analysis of the uranyl nitrate solution fuel is carried out at the analytical laboratory of NUCEF (Nuclear Fuel Cycle Engineering Research Facility), which provides essential data for operation of STACY (Static Experiment Critical Facility), TRACY (Transient Experiment Critical Facility) and the fuel treatment system.

Analyzed in FY 2004 were uranyl nitrate solution fuel samples taken before and after experiments of STACY and TRACY, samples for the preparation of uranyl nitrate solution fuel, and samples for nuclear material accountancy purpose. Also analyzed were the samples from raffinate treatment and its preliminary tests. The raffinate was generated, since FY 2000, during preliminary experiments on U/Pu extraction - purification to fix the operation condition to prepare plutonium solution fuel to be used for criticality experiments at STACY. The total number of the samples analyzed in FY 2004 was 160.

This report summarizes works related to the analysis and management of the analytical laboratory in the FY 2004.

Keywords : Analysis, NUCEF, STACY, TRACY, Uranium, Criticality, MOX, Plutonium, Americium

---

<sup>\*1</sup> Tokyo Nuclear Services Co., Ltd.

<sup>\*2</sup> Tokyo Nuclear Services Co., Ltd.

(Division of Environment and Radiation Sciences Nuclear Science and Engineering Directorate)

\* 1 Tokyo Nuclear Services Co., Ltd.

\* 2 Techno Process Co., Ltd.

+ Department of Operational Safety Administration

## 目次

1. まえがき .....	1
2. 分析 .....	1
2.1 分析の概要 .....	1
2.2 分析設備の概要 .....	2
2.3 平成 16 年度の分析実績 .....	2
2.4 国際規制物資の計量管理 .....	2
2.5 抽出廃液の処理のための予備実験に係わる分析 .....	2
2.6 抽出廃液処理に係わる分析 .....	3
3. 分析法の検討 .....	3
3.1 模擬 FP(核分裂生成物)濃度の定量法の検討 .....	3
3.2 イオンクロマトグラフによる HAN 及び HDZ 測定の検討 .....	4
4. 分析設備の運転・保守・管理 .....	4
4.1 分析設備 .....	4
4.2 廃棄物の発生量 .....	6
5. 分析設備の整備 .....	6
5.1 $\gamma$ 線スペクトロメータ .....	6
5.2 ICP 発光分光分析装置(ICP-AES) .....	7
5.3 自動電位差滴定装置 .....	7
6. あとがき .....	7
謝辞 .....	7
参考文献 .....	8
付録 分析管理データ .....	21

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Analytical activities .....	1
2.1 Outline of analysis .....	1
2.2 Outline of analytical laboratory .....	2
2.3 Analytical works in FY 2004 .....	2
2.4 Analysis for the nuclear material accountancy .....	2
2.5 Analysis related to the pre-test of raffinates treatment .....	2
2.6 Analysis related to the raffinates treatment .....	3
3. Study on analytical methodology .....	3
3.1 Study on the quantitative analysis of pseudo FP (Fission Products) .....	3
3.2 Study on the analysis of HAN/HDZ by ion chromatograph .....	4
4. Operation, maintenance and management of analytical laboratory .....	4
4.1 Analytical laboratory .....	4
4.2 Radioactive waste from analytical laboratory .....	6
5. Renewal and upgrade of analytical equipment .....	6
5.1 $\gamma$ -ray spectrometer .....	6
5.2 Inductively coupled plasma atomic emission spectrometer (ICP-AES) .....	7
5.3 Automatic potentiometric titration equipment .....	7
6. Closing remarks .....	7
Acknowledgments .....	7
References .....	8
Appendix .....	21

## 1. まえがき

燃料サイクル安全工学研究施設 (Nuclear Fuel Cycle Safety Engineering Research Facility : NUCEF) では、定常臨界実験装置 (Static Experiment Critical Facility : STACY) において溶液燃料の臨界特性に関する系統的なデータを取得し、核燃料を取扱う施設の合理的な臨界安全設計・管理に役立てる研究、過渡臨界実験装置 (Transient Experiment Critical Facility : TRACY) においては臨界超過時の核熱流体挙動の解析等に関する研究を行っている。また、バックエンド研究施設 (Back-end Fuel Cycle Key Elements Research Facility : BECKY) においては、再処理・群分離、放射性廃棄物処理・処分及び超ウラン元素 (TRU) 化学に関する研究を行っている。

平成 16 年度の分析業務の背景となる各装置等の稼働状況の概略を述べる。

STACY では、硝酸ウラニル ( $^{235}\text{U}$  濃縮度 : 6%) 溶液燃料を用いて、均質炉心での臨界実験が行われた。TRACY では硝酸ウラニル ( $^{235}\text{U}$  濃縮度 : 10%) 溶液燃料を用いて、臨界超過時の核熱特性及び溶液燃料挙動に関する実験が行われた。また、燃料調製設備では、STACY において臨界実験に使用される硝酸ウラニル ( $^{235}\text{U}$  濃縮度 : 6%) 溶液燃料の調整が行われた。

臨界実験では、燃料として用いる硝酸ウラニル溶液に関する種々の分析結果が実験等の基本パラメータとなる。このため STACY 及び TRACY の臨界実験前後の硝酸ウラニル溶液の性状分析、硝酸ウラニル溶液調整のための分析等を行った。また、国際規制物資としての核燃料物質の計量管理のため、計量槽に集めた硝酸ウラニル溶液の分析を行った。

また、アルファ化学実験設備において、MOX 燃料溶解液からのウラン (U) / プルトニウム (Pu) の抽出分離試験で発生した抽出廃液の処理に係わる分析も行った。

本報告書は、平成 16 年度に実施した分析業務についてまとめたものである。

## 2. 分析

### 2.1 分析の概要

STACY 及び TRACY では、種々のウラン濃度の硝酸ウラニル溶液を用いて臨界実験を行う。これらの実験では、燃料調製設備により硝酸ウラニル溶液のウラン濃度等を調整後、STACY 及び TRACY に供給し、実験目的に応じた臨界実験が実施される。STACY 及び TRACY の実験解析にともなう分析項目は、密度測定、ウラン濃度分析、硝酸濃度分析、同位体組成分析、不純物元素濃度分析、核分裂生成物 (Fission Products : FP) 核種濃度分析等があり、燃料調製設備の運転管理に係わる工程管理分析は、先に挙げた項目に加え、リン酸トリプチル (TBP) 濃度分析、全  $\gamma$  放射能測定等がある。また、保障措置上の計量管理分析項目は、密度測定、ウラン濃度分析、硝酸濃度分析、同位体組成分析である。これらの分析方法は、分析試料の性状、濃度及び共存物質の有無、依頼先から要求される分析精度、分析期間等の観点から最適な分析方法を選定している。分析項目別の分析方法及び分析装置を表 1 に示す。

また、アルファ化学実験設備においては、平成 12 年度から少量の MOX 粉末を用いて溶解試験が、平成 13 年度からは溶解試験で得た溶解液を用いて U / Pu 抽出分離試験が実施された。本年

度は、U/Pu 抽出分離試験で発生した抽出廃液の処理のための予備実験及び抽出廃液の処理が実施され、当該実験及び廃液処理に係わる分析も行った。

## 2.2 分析設備の概要

分析設備<sup>1)</sup>は主に NUCEF 実験棟 B の 2 階の分析室（I）、分析室（II）、分析室（III）及び分析室（IV）に整備されている。分析室（I）の設備・分析機器は原子炉施設に附属する設備であり、分析室（II）～（IV）に設置されている設備・分析機器は、原子炉施設と核燃料使用施設との共用設備である。

分析設備は、気送設備、試料搬送装置、前処理装置、後処理装置、分析機器、グローブボックス及びフードで構成されている。分析設備の構成図を図 1 に示す。分析機器はグローブボックス内に設置され、ほとんどの分析作業はグローブ操作によって行われている。

## 2.3 平成 16 年度の分析実績

平成 16 年度の試料分析実績を表 2 に示す。平成 16 年度の総分析試料数は 160 試料、分析総数は 394 件であった。分析試料の内訳は、燃料調製設備に係わるものが 54%、STACY、TRACY の臨界実験に係わるものが 21% 及び 13%、本年度実施された抽出廃液の処理のための予備実験及び抽出廃液の処理に係わるものが各 5%、NUCEF 関連技術開発に係わる分析（項目の「その他」に分類）が 2% であった。分析項目割合別でみると、ウラン濃度分析と硝酸濃度分析（酸分析）が全体の約 60% を占め、次いで TBP 濃度分析、FP 分析、全  $\gamma$  放射能測定、不純物元素濃度分析、同位体組成分析、 $\alpha$  核種分析の順となっている。また、前述以外の依頼項目（分析項目にて「その他」に分類した水素イオン指数（pH）及び重量測定）が全体の 2% であった。

表 3 及び図 2 に STACY 燃料、表 4 及び図 3 に TRACY 燃料のウラン濃度、密度及び硝酸濃度の分析結果を示す。

第 1 四半期の試料分析実績を表 5 に示す。分析試料数は 41 試料、分析総数は 95 件であった。

第 2 四半期の試料分析実績を表 6 に示す。分析試料数は 29 試料、分析総数は 71 件であった。なお、この中には、国際規制物資としての保障措置上の計量管理に関する実在庫の確認（Physical Inventory Taking : PIT）のための分析が含まれている。

第 3 四半期の試料分析実績を表 7 に示す。分析試料数は 82 試料、分析総数は 208 件であった。

第 4 四半期の試料分析実績を表 8 に示す。分析試料数は 8 試料、分析総数は 20 件であった。

## 2.4 国際規制物資の計量管理

東海研究所国際規制物資計量管理規定に基づき、NUCEF 施設内の物質収支エリアにおける PIT を平成 16 年 8 月 30 日～9 月 16 日に行った。また、9 月 17 日には、IAEA 及び国による同エリアの実在庫の検認（Physical Inventory Verification : PIV）が行われた。これに対し、計量槽（ダンプ槽、U 溶液貯槽等）の硝酸ウラニル溶液の計量のため、ウラン濃度分析及び同位体組成分析を行った。

## 2.5 抽出廃液の処理のための予備実験に係わる分析

平成 16 年 7 月 26 日～8 月 6 日にアルファ化学実験設備において、抽出廃液の処理のための予備実験が行われ、当該実験に係わる分析を行った。本実験は、U/Pu 抽出分離試験で発生した

抽出廃液から分離したアメリシウム (Am) 溶液を用いて、シュウ酸沈殿法で作成した沈殿を焙焼し、Am を酸化物にする条件を確立することを目的として行われたものである。分析項目は  $\alpha$  放射能濃度及び Am 濃度であり、 $2\pi$  ガスフローカウンタを用いて  $\alpha$  放射能濃度を、 $\alpha$  線スペクトロメトリを用いて  $\alpha$  核種存在比を測定し Am 濃度を求めた。

## 2.6 抽出廃液処理に係わる分析

平成 16 年 10 月 27 日～12 月 3 日にアルファ化学実験設備において行われた、抽出廃液の処理に係わる分析を行った。抽出廃液の処理は、U/Pu 抽出分離試験で発生した抽出廃液を処理するために、抽出廃液から除去した Am を酸化物として安定化させることを目的として行われたものである。分析項目は遊離酸、Am、ネプツニウム (Np)、不純物元素 (Ag, Fe, Ni, Cr 等) 濃度であり、遊離酸濃度分析にアルカリ中和滴定法、Am 濃度分析に  $\alpha$  線スペクトロメトリ、Np 濃度分析に  $\gamma$  線スペクトロメトリ ( $^{239}\text{Np}$  トレーサー添加による  $\gamma$  線スペクトロメトリ<sup>2)</sup>)、不純物元素濃度分析には ICP 発光分光分析法を用いた。

## 3. 分析法の検討

本年度は、平成 17 年度に STACY において実施予定の模擬 FP 添加燃料を用いる臨界実験に備えて、模擬 FP 濃度の定量法の検討を行った。また、ピューレックス法における安全管理のための、硝酸ヒドロキシリアルミン (HAN) / ヒドラジン (HDZ) 測定の検討実験を平成 15 年度に引き続きイオンクロマトグラフを用いて行った。

### 3.1 模擬 FP (核分裂生成物) 濃度の定量法の検討

STACY で実施が予定されている模擬 FP を添加した硝酸ウラニル ( $^{235}\text{U}$  濃縮度 : 6%) 溶液燃料とウラン ( $^{235}\text{U}$  濃縮度 : 5%) 棒状燃料を用いて溶解槽の特性を模擬した非均質体系の臨界実験に関して、模擬 FP (サマリウム (Sm)、ロジウム (Rh)、セシウム (Cs)、ユウロピウム (Eu) 及びネオジム (Nd)) 濃度の定量法を同位体希釈質量分析法、イオンクロマトグラフ法及び ICP 発光分光分析法で検討した。

なお、Nd の溶解予定量は他元素と比較して 10～数百倍程多く、他元素の分析に影響があると思われる。そのため、前処理操作による Nd の分離法の検討も必要である。

#### (1) 同位体希釈質量分析法

質量分析計を用いて Sm、Nd、Eu の定量法について同位体希釈質量分析法 (IDMS) の検討を行った。

本年度は、文献 3)～5)の調査による各模擬 FP 元素の分離手順の検討、スパイク (元素濃度及びその同位体組成が正確に分かっている基準物質) に使用する濃縮安定同位体の選定、質量分析計における各元素の測定条件の検討を行った。今後は、スパイクの調製、IDMS による Sm、Nd 及び Eu の定量法を確立する予定である。

### (2) イオンクロマトグラフ法

陽イオン交換カラム及び電気伝導度検出器を用いたイオンクロマトグラフ法による Cs の定量法の検討を行った。

本年度は、文献 6)～12)の調査等で定量分析が可能であることを確認後、分析条件の検討を行った。分離条件については、移動相濃度及び流量を変化させ、ピークの分離状況の確認を、検出条件については、ピーク検出時における検出器の設定を行った。検量線の直線性及び再現性を確認した結果、検量線は相関係数  $R^2 = 0.9994$  の直線性を示し、繰り返し精度は変動係数で 2%弱を確認した。また、実際の実験を想定した模擬試料を用いて特異性を確認したが、過剰なウラン及び遊離の硝酸が妨害となるため、前処理操作による分離・除去が必要である。今後は、前処理操作による分離方法の検討を進め、高精度定量法を確立する予定である。

### (3) ICP 発光分光分析法

ICP 発光分光分析装置を用いて Rh の定量法の検討を行った。

本年度は、多量のウラン共存下では相互作用により測定が不可能であること、Sm, Rh 及び Eu の相互影響はないことを確認した。今後は、(2) 同様前処理操作によるウランの分離方法の検討を進め、確立する予定である。なお、分離方法には、TBP を用いた溶媒抽出法及び陽イオン交換樹脂を用いたイオン交換法を予定している。

## 3.2 イオンクロマトグラフによる HAN 及び HDZ 測定の検討

再処理プロセスであるピューレックス法における安全管理のために、イオンクロマトグラフを用いて、硝酸ヒドロキシルアミン (HAN) 及びヒドラジン (HDZ) の検討実験を行った。

本年度は、前年度の結果を参考に、固定相にポリメタクリレートゲルを基材とし、イオン交換基にカルボキシル基を充填材とした陽イオン交換カラム、移動相に硝酸溶液、検出器として作用電極表面での分析目的分子の酸化あるいは還元反応の結果生じる電流もしくは電位を検出する電気化学検出器を用い、ピークの分離及び検量線の直線性を確認した。

電気伝導度検出器ではナトリウムイオンの妨害を受けたが、電気化学検出器では、陽イオンの妨害はみられなかった。しかし、HAN、HDZ とも作成した検量線は、相関係数  $R^2 = 0.9552$  であり、直線性に乏しい。これは、HAN、HDZ のピーク分離度が目標値 ( $\geq 1.7$ ) に対して約 0.6 と低いためと思われる。今後は、定量分析のための分離最適化の検討を進める予定である。

## 4. 分析設備の運転・保守・管理

NUCEFにおいて分析業務を安全かつ円滑に行うために分析設備の保守管理を行っている。

### 4.1 分析設備

#### (1) 気送設備

気送設備は、STACY、TRACY 及び燃料調製設備から、分析室 (I) の試料受入装置用グローブボックスに分析試料を搬送する設備である。分析用試料は気送子に入れられて気送管中の

空気流を利用して送られる。ほとんどの試料はこの気送設備を利用して分析室へ搬送される。

平成 16 年度に気送設備を利用して STACY、TRACY 及び燃料調製設備から分析室（I）へ分析試料を搬送した回数は 222 回、気送子の総走行距離は約 41km であった。気送設備の運転状況を表 9 に、気送系統毎の気送子走行距離記録を図 4 に示す。なお、気送子内のベアリングの不良により、第 6 系統の気送子を 11 月に交換した。

気送設備は、日常点検及び月例点検により設備の性能の維持管理に努めている。また、メーカーによる気送設備全体（排風機、運転操作盤等）の総合点検及び気送子の移送・返送操作の作動試験を実施した。

## (2) 試料搬送装置

試料搬送装置は、分析室（I）のグローブボックス（15 台）と接続されている試料搬送用グローブボックス内をロボットが移動し、グローブボックス間で試料を自動的に運搬する設備である。

試料搬送装置は、日常点検及び月例点検により設備の性能の維持管理に努めている。また、メーカーによる試料搬送装置全体（自動制御盤、ロボット等）の総合点検及びロボットによる模擬試料の移送・返送の作動試験を実施した。

## (3) 分析機器

各分析機器は、機器の操作開始前及び終了後の点検、週例点検、月例点検等を行っている。また、常に消耗品の補充管理をすることにより、各分析機器の維持管理を行っている。

質量分析計、ICP 発光分光分析装置については、機器の故障発生の未然防止、性能及び精度の維持から、メーカーによる装置の点検及び模擬試料により機器性能・精度の健全性を確認した。

## (4) 後処理装置

後処理装置は、分析後の放射性溶液を燃料調製設備等へ移送するまで一時的に貯蔵しておく貯槽類から成り立っている。

後処理装置は、日常点検及び月例点検により設備の性能の維持管理に努めている。また、メーカーによる後処理計装盤の点検校正（シーケンスの点検・設備・動作確認等）を実施した。

## (5) グローブボックス

分析室（I）に 17 台、分析室（II）に 3 台、分析室（III）に 1 台、分析室（IV）に 2 台の計 23 台のグローブボックスがある。グローブボックスには主要な分析機器が設置されている。グローブボックスは、1 日の作業開始前及び終了後にグローブボックス内の負圧及び温度を点検しており、室内の圧力に対して負圧が  $-0.2 \sim -0.4$  kPa、温度に関しては室温の範囲にあることを確認している。また、毎月の月例点検で警報設備の作動試験を実施した。

グローブボックスのグローブ及びビニールバッグは、日常の分析作業の開始前及び終了後に汚染検査を行っている。また、ピンホールの有無、劣化によるひび割れ等は、毎月の月例点検により確認した。

施設定期自主検査では、グローブボックス用計器（圧力指示計等）及びグローブボックス警

報盤の点検校正、負圧計の作動試験、グローブボックスの気密検査を実施し、機器が正常に動作すること、グローブボックスの漏洩率が 0.1 vol% / h 以下であることを確認した。

#### (6) フード

分析室（I）に 3 台、分析室（II）に 2 台の計 5 台のフードがあり、試料の分取、保管、前処理及び後処理等に使用している。約 3 か月に 1 度の割合で、フード前作業エリアのビニール養生の交換を行い、また必要に応じ、フード内を養生しているビニールの交換も行った。

さらに、全フードについてフードの前面扉を 1/2 開口した時の風速が、0.5 m / sec 以上であることを毎月の月例点検により確認した。また、メーカーによるフード用電源設備の点検校正（マノスターゲージの校正・調整等）を実施した。

### 4.2 廃棄物の発生量

平成 16 年度に分析業務で発生した固体廃棄物引渡量（ $\alpha$  固体廃棄物を除く）は、可燃物（赤カートンボックス）が 175 個、フィルタが 2 個の合計 177 個であった。不燃物は、難燃物が 200L ドラム缶 1 本、ペール缶が 4 個発生した。また、 $\alpha$  固体廃棄物量は、可燃物が 19 袋、ビニルバッグが 27 袋、金属が 3 袋、ガラスが 2 袋、イオン交換樹脂が 1 袋、フィルタが 1 個であった（1 袋当たりの容量は約 5L）。四半期毎の固体廃棄物引渡量及び $\alpha$  固体廃棄物引渡量を表 10 に示す。

また、溶液燃料である硝酸ウラニル溶液の分析廃液を廃棄物処理場に引渡すため、分析廃液の中和・固化処理を行った。この分析廃液は主にリン酸、硫酸及び鉄等を多量に含有するもので、水酸化ナトリウムで中和し、生成した沈殿物を濾別し、沈殿物はセメントで固化して固体廃棄物として、上澄み液は液体廃棄物として各々を廃棄物処理場へ引渡すこととしている。中和処理作業を平成 16 年 6 月に、セメント固化作業を平成 17 年 1 月に実施した。なお、廃棄物量は固体廃棄物 26 体、液体廃棄物 68 L であった（固体廃棄物 1 体当たりの容量は 3 L）。

平成 16 年度も引き続き、管理区域に持ち込む物品を極力少なくする等の努力により、廃棄物発生量の低減化に努めた。

## 5. 分析設備の整備

平成 16 年度の分析設備の整備として、 $\gamma$  線スペクトロメータ、ICP 発光分光分析装置及び自動電位差滴定装置の更新を行った。

### 5.1 $\gamma$ 線スペクトロメータ

本装置は、放射性核種のもつ固有の $\gamma$  線エネルギーを測定し、放射性核種の定性、定量を行う装置である。本装置は、検出部と解析部により構成されているが、使用期間が 10 年を経過し、解析部のオペレーションシステムが古く、今後の機器異常時のメーカー保障が受けられないため、実際に操作を行う解析部を更新した。更新による装置性能面の基本仕様に変更は無いが、データ処理速度の向上及び解析方法の多様化等の改善がなされた。また、メーカー側からのメンテナンス面での適時性も向上した。

## 5.2 ICP 発光分光分析装置 (ICP-AES)

本装置は、分光部、高周波電源部、プラズマ発光部、測光部及びデータ処理部で構成され、燃料溶液中の不純物などの測定に用いる装置である。グローブボックス内に設置されているプラズマ発光部内の試料導入部は、スプレーチェンバ(噴霧室)、ネブライザ及び配管等で構成されている。本年度は、平成 17 年度に STACYにおいて実施予定の模擬 FP 添加燃料による臨界実験について高精度な分析値が要求されるため、スプレーチェンバを従来品のダブルパルスチャンバからサイクロンチャンバに更新した。本装置の更新により、サンプルのマトリックスの影響に起因する分析誤差が改善された。また試料吸込量(消費量)も格段に少なくなり、廃液量が低減した。

## 5.3 自動電位差滴定装置

本装置は、工程管理、計量管理、実験解析等に係わる分析のために、試料溶液中のウラン濃度、硝酸濃度等を測定する装置である。本装置は、データ処理部、システム制御部、サンプルチャンジ部及び試薬分注部から構成され、4台をグローブボックス対応に、1台をコールド分析用に設置している。分析設備で現在使用している自動電位差滴定装置は製造を終了しているため、装置に不具合が生じた場合修理を行うことが困難な状況である。本年度は本装置の後継機種のうち、データ処理部、システム制御部及びサンプルチャンジ部を購入した。次年度は、試薬分注部の購入を行う予定である。

## 6. あとがき

平成 16 年度に NUCEF 管理課が実施した NUCEF 原子炉施設 (STACY、TRACY) 及びバックエンド研究施設 (BECKY) に係わる試料分析、分析法の検討及び分析設備の運転・保守・管理等の実績をまとめた。

平成 17 年度は、STACYにおいて模擬 FP 添加燃料による臨界実験が予定されており、高い分析精度が要求されるとともに、分析作業量の増加が予想される。これらの業務を確実に遂行するために、次年度以降も引き続き技術の継承、分析の品質管理及び設備の保守・管理に努めることが重要であると考える。

## 謝 辞

試料の分析業務及び分析設備の維持管理にご協力いただきました、東京ニュークリア・サービス(株)の分析担当の方々に深く感謝致します。

## 参考文献

- 1) 宮内正勝、他：「NUCEF 分析設備」、JAERI-Tech 96-007 (1996)
- 2) 境裕、他：「NUCEF 分析業務報告書－平成 14 年度－」、JAERI-Tech 2004-006 (2004)
- 3) SHIGEKAZU USUDA, NOBUAKI KOHNO : "Anion-Exchange Separation of Nd and the Transplutonium Elements in Spent Nuclear Fuels for Burn-up Determination", SEPARATION SCIENCE AND TECHNOLOGY,23(10&11),pp.1119-1131 (1988)
- 4) Haruo NATSUME, et al. : "Sequential Ion-Exchange Separation of Heavy Elements and Selected Fission Products for Burnup Measurement", J.Nucl.Sci.Technol.,9(12),p.737~742 (1972)
- 5) H.NATUME , et al. : "SYSTEMATIC RADIOCHEMICAL ANALYSIS OF FISSION PRODUCTS", J. Radioanal.Chem.,Vol.7 (1971)
- 6) SHIMADZU Ion Chromatograph Application Data book
- 7) 液体クロマトグラフ研究会編：「液体クロマトグラフィーデータ集 無機化学編」、㈱ ICP (1986)
- 8) 武藤義一、及川紀久雄編：「イオンクロマトグラフィー」、講談社サイエンティフィック (1983)
- 9) 大高怜子、他：「HPLC 分析における内標準法の有効性について」、Yakugaku Zasshi 123(5)349-355 (2003)
- 10) 石森富太郎、他：「Data of Inorganic Solvent Extraction(1)」、JAERI 1047 (1963)
- 11) 久保田益充、他：「高レベル廃液からの超ウラン元素の抽出に関する基礎研究」、JAERI-M 88-002 (1988)
- 12) D.SCARGILL, et al. : "TRI-n-BUTYL PHOSPHATE AS AN EXTRACTING SOLVENT FOR INORGANIC NITRATES- II ", J.Inorg.Nucl.Chem.,Vol.4,pp.304-314 (1957)

表1 分析方法・分析装置

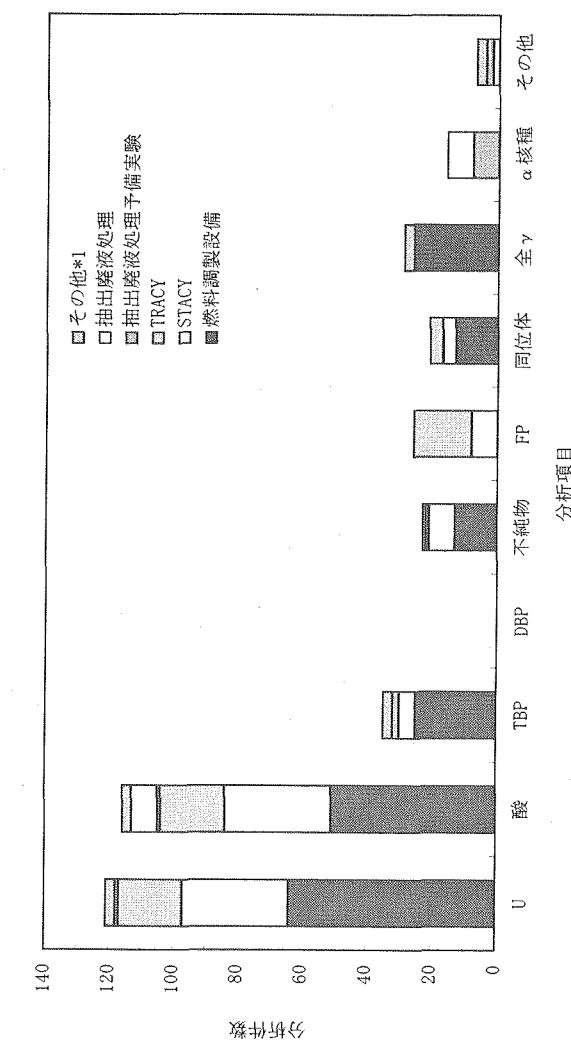
分析項目	濃度範囲	分析方法	分析装置
ウラン濃度	0.5 $\mu\text{g}/\text{mL}$ ~ 数mg ~ 数100mg/L	同位体希釈質量分析法 (IDMS)	表面電離型質量分析装置
	数g ~ 数100g/L	硫酸アンモニウム添加一アルカリ中和滴定法 鉄(II)還元一二クロム酸カリウム酸化滴定法	自動電位差滴定装置
	10 $\mu\text{g}$ ~ 400 $\mu\text{g}/\text{mL}$	ジベンゾイルメタン発色一紫外・可視分光光度法	自動電位差滴定装置
酸濃度	10 $\mu\text{g}$ ~ 400 $\mu\text{g}/\text{mL}$	中和滴定法	紫外可視分光光度計
	数10mg ~ 数1000mg/L	分光光度法 (溶媒抽出法)	自動電位差滴定装置
TBP濃度	数% ~ 数10%	酸平衡一アルカリ滴定法	赤外分光光度計
		分光光度法 (溶媒抽出法)	ICP発光分光分析装置
DBP濃度		ICP発光分光分析法	ICP発光分光分析装置
		$\gamma$ 線スペクトロメトリ	$\gamma$ 線スペクトロメータ
不純物元素濃度			表面電離型質量分析装置
			NaI(Tl)シンチレーション計数装置
			表面電離型質量分析装置
核分裂生成物		質量分析法	表面電離型質量分析装置
		全 $\gamma$ 分析法	表面電離型質量分析装置
同位体組成	0.5 $\mu\text{g}/\text{mL}$ ~ 10 $\mu\text{g}$ ~ 400 $\mu\text{g}/\text{mL}$	同位体希釈質量分析法 (IDMS)	表面電離型質量分析装置
	Ce(IV) 添加一紫外・可視分光光度法	$\gamma$ 線 $\alpha$ 線測定法	紫外可視分光光度計
		$\alpha$ 線スペクトロメトリ	$\gamma$ 線スペクトロメータ
$\alpha$ 核種	アメリシウム濃度	総 $\alpha$ 線測定法	2 $\pi$ ガスフローカウンタ
	ネプツニウム濃度	$\alpha$ 線スペクトロメトリ	$\alpha$ 線スペクトロメータ
		$\gamma$ 線スペクトロメトリ	$\gamma$ 線スペクトロメータ

表2 平成16年度試料分析実績

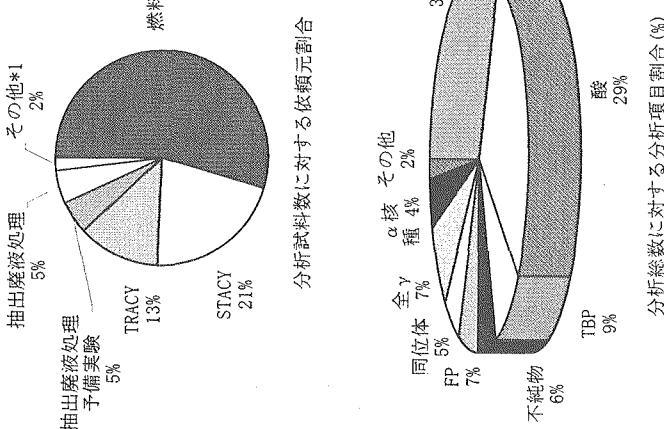
\*\*：分析項目略記号

依頼元	分析試料数	分析件数										分析総数
		U	酸	TBP	DBP	不純物	FP	同位体	全γ	α核種	その他	
燃料調製設備	87	64	51	25	0	13	0	13	26	0	0	192
STACY	34	33	33	5	0	8	8	4	0	0	0	93
TRACY	20	20	20	2	0	1	18	4	0	0	2	67
抽出塩溶液予備実験	8	1	1	0	0	1	0	0	0	8	0	11
抽出塩溶液処理	8	0	8	0	0	0	0	0	0	8	0	16
その他*	3	3	3	0	0	0	0	0	3	0	3	15
計	160	121	116	35	0	23	26	21	29	16	7	394

\*1：その他は、NUCEF内で実施されている、NUCEF関連技術開発に係わる分析等を示す。



分析項目毎の分析件数



分析試料数に対する依頼元割合

分析総数に対する分析項目割合 (%)

表3 STACY燃料の分析結果

試料番号	測定日	分析室(I)		密度 (g/cm <sup>3</sup> )	ウラン濃度 (gU/L)	硝酸濃度 (N)	試料採取場所
		温度 (°C)	湿度 (%)				
776～782	H16.05.07	21.8	37.2	1.63607	454.0	0.95	STACYダンプ槽IB
783～784	H16.05.11	23.6	59.4	1.63628	453.1	0.97	STACYダンプ槽IB
786～787	H16.05.19	24.3	39.9	1.63775	455.3	0.98	STACYダンプ槽IB
788～789	H16.05.20	23.8	42.6	1.63785	454.8	1.00	STACYダンプ槽IB
790～791	H16.06.03	23.9	24.1	1.63947	458.2	1.00	STACYダンプ槽IB
792～793	H16.06.04	23.9	24.7	1.64047	457.7	1.00	STACYダンプ槽IB
796～797	H16.07.08	24.3	46.4	1.64508	459.7	1.01	STACYダンプ槽IB
798～799	H16.07.30	24.9	52.1	1.64822	463.1	1.01	STACYダンプ槽IB
800～802	H16.08.03	25.1	48.0	1.61346	436.6	1.02	STACYダンプ槽IB
803～804	H16.08.06	25.8	45.0	1.61464	438.8	1.01	STACYダンプ槽IB
805～806	H16.08.10	25.6	47.1	1.58245	412.0	1.01	STACYダンプ槽IB
810～812	H16.09.02	24.3	48.6	1.63984	455.3	1.06	STACYダンプ槽II
807～809	H16.09.03	24.3	52.5	1.58571	414.7	1.01	STACYダンプ槽IB
813～814	H16.09.27	24.8	63.6	1.58899	416.2	1.02	STACYダンプ槽IB
815	H16.10.06	23.8	43.6	1.59016	417.4	1.03	STACYダンプ槽IB
816	H16.10.13	23.8	54.5	1.59109	421.7	1.00	STACYダンプ槽IB
817～818	H16.10.20	22.2	53.7	1.55272	388.4	1.02	STACYダンプ槽IB
819	H16.10.26	22.0	41.6	1.55362	389.3	1.01	STACYダンプ槽IB
820	H16.10.26	22.0	41.6	1.53461	374.5	1.03	STACYダンプ槽IB
821	H16.11.02	23.7	48.1	1.53527	374.2	1.05	STACYダンプ槽IB
822	H16.11.12	24.7	51.6	1.63497	451.6	1.05	STACYダンプ槽II
823～824	H16.11.16	22.4	40.8	1.53781	376.6	1.02	STACYダンプ槽IB
825～826	H16.11.19	22.0	46.6	1.53830	378.0	1.02	STACYダンプ槽IB
827～828	H16.11.24	22.1	40.7	1.51378	358.8	1.03	STACYダンプ槽IA
829～830	H16.11.24	22.1	40.7	1.51651	361.3	1.03	STACYダンプ槽IB
831	H16.11.29	22.3	41.1	1.51685	361.6	1.03	STACYダンプ槽IA
832	H16.11.29	22.3	41.1	1.51676	361.4	1.04	STACYダンプ槽IB
833	H16.11.29	22.3	41.1	1.50536	352.6	1.04	STACYダンプ槽IA
834	H16.12.01	22.5	41.3	1.50280	350.7	1.04	STACYダンプ槽IB
835～837	H16.12.07	22.4	39.4	1.50499	352.8	1.05	STACYダンプ槽IB
838～840	H16.12.07	22.4	39.4	1.50518	353.0	1.05	STACYダンプ槽IA
841～843	H17.03.29	22.8	38.1	1.00393	4.4	0.04	STACYダンプ槽IA

表4 TRACY燃料の分析結果

試料番号	測定日	分析室(I)		密度 (g/cm <sup>3</sup> )	ウラン濃度 (gU/L)	硝酸濃度 (N)	備考
		温度 (°C)	湿度 (%)				
632～634	H16.04.16	22.5	40.6	1.51131	368.3	0.56	TRACYダンプ槽III
635～637	H16.04.19	24.5	48.5	1.52878	382.8	0.55	TRACYダンプ槽III
638～639	H16.04.22	24.9	41.5	1.52328	379.1	0.54	TRACYダンプ槽III
640～641	H16.05.11	23.6	59.4	1.52358	378.1	0.54	TRACYダンプ槽III
642～643	H16.06.04	23.9	24.7	1.52366	378.0	0.56	TRACYダンプ槽III
644～645	H16.06.21	24.1	40.6	1.52385	379.3	0.54	TRACYダンプ槽III
646～647	H16.08.10	25.6	47.1	1.52392	379.2	0.57	TRACYダンプ槽III
648～649	H16.09.02	24.3	48.6	1.52402	378.3	0.55	TRACYダンプ槽III
650～651	H16.09.27	24.8	63.6	1.52368	376.6	0.57	TRACYダンプ槽III
652～653	H16.10.06	23.8	43.6	1.52438	379.1	0.55	TRACYダンプ槽III
654～655	H16.10.08	23.3	48.2	1.52415	377.8	0.56	TRACYダンプ槽III
656～657	H16.10.19	21.9	47.6	1.52468	378.3	0.55	TRACYダンプ槽III
658～659	H16.11.02	23.7	48.1	1.52507	378.8	0.55	TRACYダンプ槽III
660～661	H16.11.16	22.4	40.8	1.52488	379.0	0.55	TRACYダンプ槽III
662～663	H16.11.29	22.3	41.1	1.52517	379.5	0.54	TRACYダンプ槽III
664～665	H16.12.01	22.5	41.3	1.52520	380.1	0.55	TRACYダンプ槽III
666～667	H16.12.03	22.3	39.9	1.52593	379.7	0.56	TRACYダンプ槽III
668～669	H16.12.09	22.4	39.1	1.52609	379.9	0.56	TRACYダンプ槽III
670～674	H17.03.28	22.9	38.7	1.03254	21.2	0.20	TRACYダンプ槽III

表5 平成16年度第1四半期試料分析実績

\*\* : 分析項目略記号

依頼元	分析試料数	分析件数										分析総数
		U	酸	TBP	DBP	不純物	FP	同位体	全γ	α核種	その他	
燃料調製設備	20	13	11	4	0	4	0	0	7	0	0	39
STACY	7	6	6	1	0	1	6	2	0	0	0	22
TRACY	6	6	6	0	0	1	5	1	0	0	0	19
抽出降液処理予備実験	7	1	1	0	0	1	0	0	0	7	0	10
抽出降液処理	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
その他*	1	1	1	1	0	0	0	0	1	0	1	5
計	41	27	25	6	0	7	11	3	8	7	1	95

\*1: その他は、NUCEF内で実施されている、NUCEF関連技術開発に係わる分析等を示す。

40

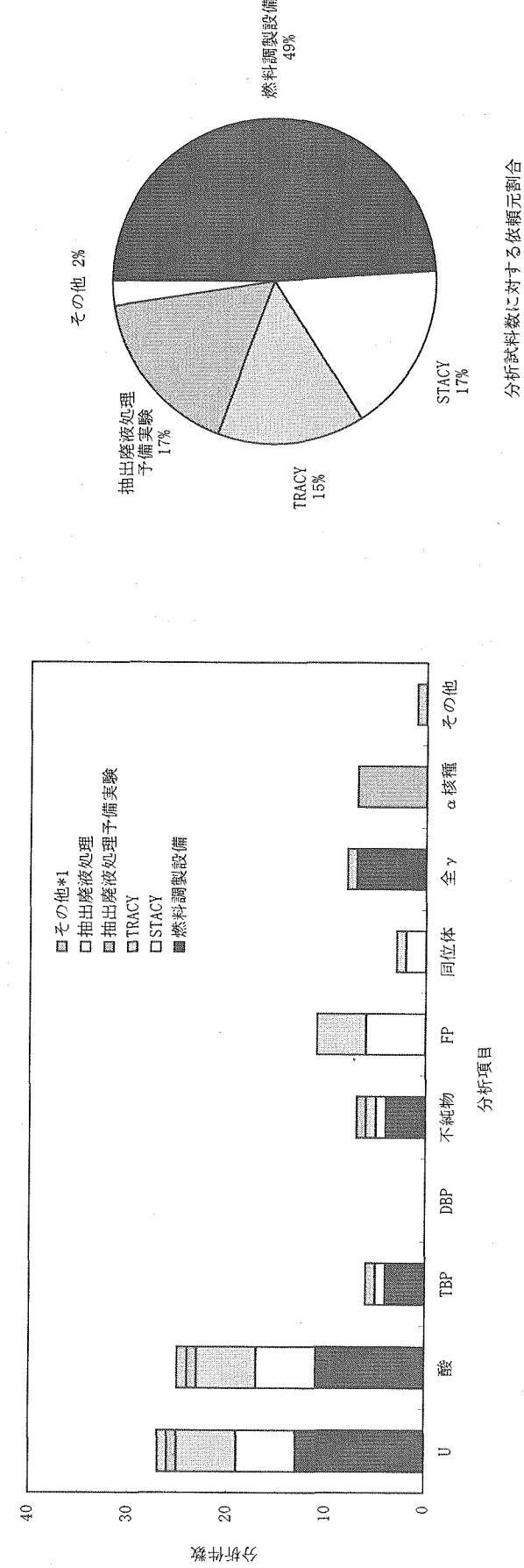


表6 平成16年度第2四半期試料分析実績

\*\* : 分析項目略記号

依頼元	分析試料数	分析件数								
		U	酸	TBP	DBP	不純物	FP	同位体	全γ	α核種
燃料調製設備	17	14	7	3	0	4	0	8	5	0
STACY	8	8	0	0	2	0	2	0	0	0
TRACY	3	3	0	0	0	0	2	1	0	0
抽出廃液処理予備実験	1	0	0	0	0	0	0	0	1	1
抽出廃液処理	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
その他*	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
計	29	25	18	3	0	6	2	11	5	1

\*1: その他は、NUCEF内で実施されている、NUCEF関連技術開発に係る分析等を示す。

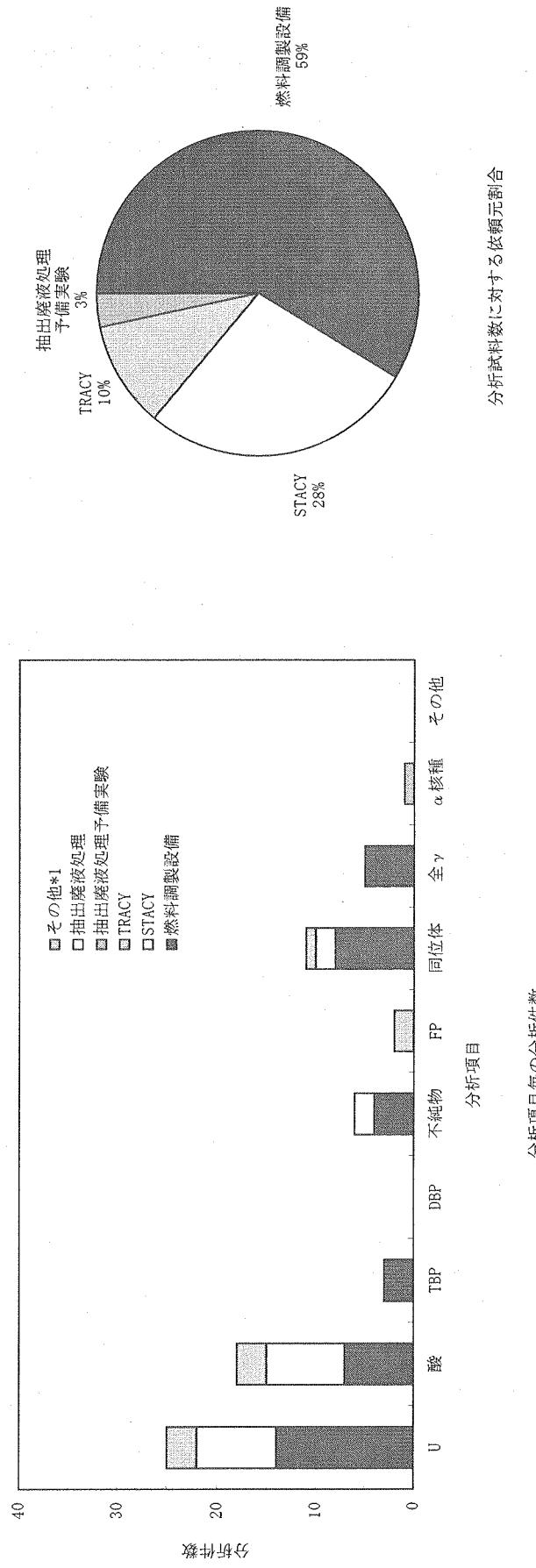


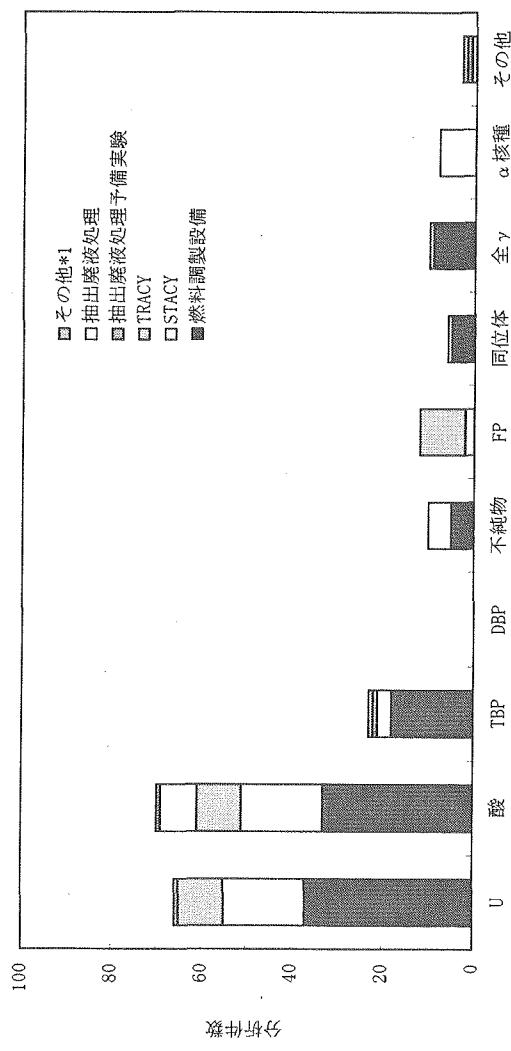
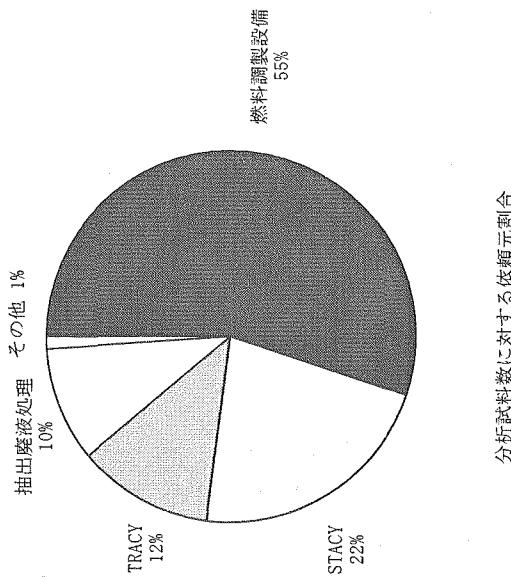
表7 平成16年度第3四半期試料分析実績

\*\*：分析項目略記号

依頼元	分析試料数	分析件数									分析総数
		U	酸	TBP	DBP	不純物	FP	同位体	全γ	α核種	
燃料調製設備	45	37	33	18	0	5	0	5	9	0	0
STACY	18	18	18	3	0	5	2	0	0	0	107
TRACY	10	10	10	1	0	0	10	1	0	1	47
抽出陥液処理予備実験	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	33
抽出陥液処理	8	0	8	0	0	0	0	0	8	0	16
その他*	1	1	1	1	0	0	0	0	1	0	5
計	82	66	70	23	0	10	12	6	10	8	208

\*1：その他は、NUCEF内で実施されている、NUCEF関連技術開発に係わる分析等を示す。

U	ウラン濃度分析	硝酸濃度分析
TBP	TBP濃度分析	
DBP	DBP濃度分析	
不純物	不純物元素分析	
FP	γ核種分析	
同位体	同位体組成分析	
金γ	金γ放射能測定	
α核種	Pu, Am, Np等の分析	
その他	上記以外の分析	



分析項目毎の分析件数

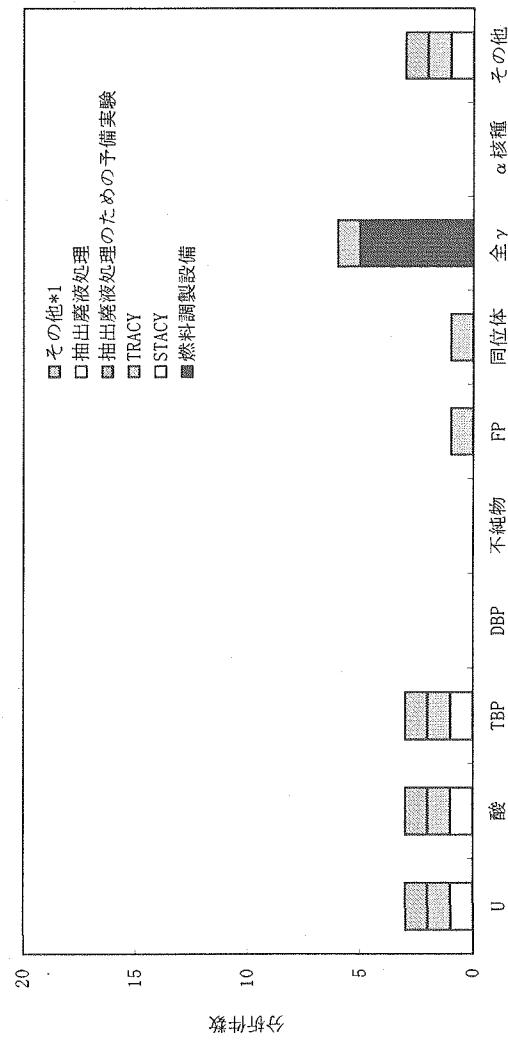
分析試料数に対する依頼元割合

表8 平成16年度第4四半期試料分析実績

\*\*：分析項目略記號

依頼元	分析試料数	分析件数										U	ウラン濃度分析
		U	酸	TBP	DBP	不純物	FP	同位体	全γ	α核種	その他		
燃料調製設備	5	0	0	0	0	0	0	0	5	0	0	TBP	硝酸濃度分析
STACY	1	1	1	1	0	0	0	0	0	0	1	DBP	TBP濃度分析
TRACY	1	1	1	1	0	0	1	1	0	0	1	不純物	DBP濃度分析
抽出溶液處理のための予備実験	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	FP	不純物元素分析
抽出溶液處理	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	同位体	γ核種分析
その他*	1	1	1	1	0	0	0	0	1	0	1	全γ	同位体組成分析
計	8	3	3	3	0	0	1	1	6	0	3	20	全γ放射能測定
										a核種	Pu, Am, Np等の分析		
										その他	上記以外の分析		

NUCEF連携技術開発委員会に係わる分析等を示す。



### 分析項目毎の分析件数

分析試料數に対する依頼元割合

表9 平成16年度気送設備運転状況

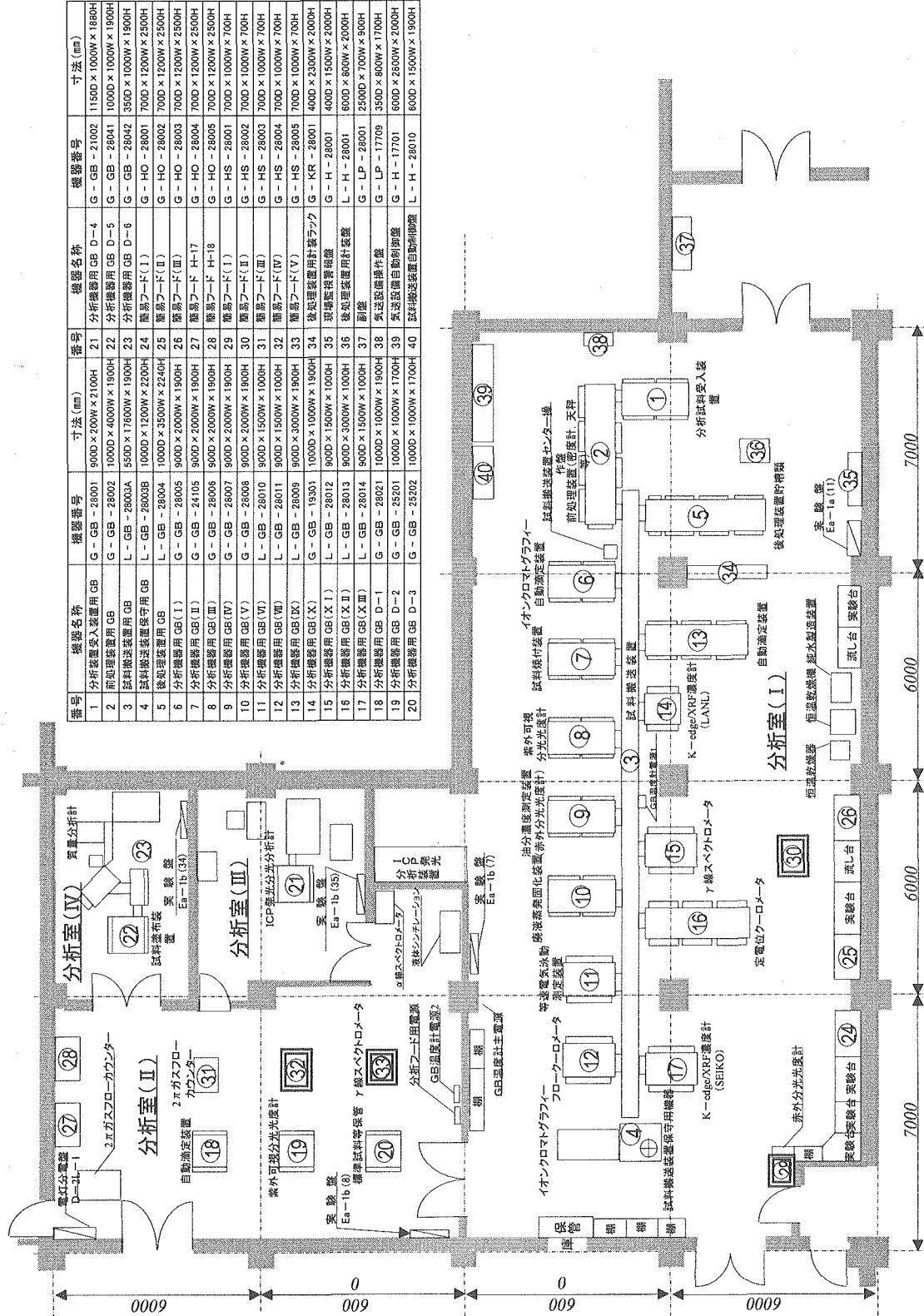
系統	送信側	気送子番号	年間運転回数												走行距離 (km)	
			4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月		
1	試葉供給室 (A)	No. 6	1	1	3	0	0	0	1	5	6	0	0	0	3.740	
2	実験室 (II)	No. 0	0	0	0	0	0	0	0	3	0	0	0	3	0.504	
3	燃取室 (V)	No. 3	0	0	0	0	0	0	0	3	0	0	0	3	0.306	
4		No. 9	0	1	0	8	8	0	2	11	0	0	0	38	3.876	
6 *1	TRACY	No. 11	8	2	6	0	2	4	6	6	—	—	—	34	9.248	
7	STACY	No. 20	—	—	—	—	—	—	2	4	0	0	0	5	2.992	
8	燃取付属室 (VI)	No. 10	0	13	6	4	7	9	9	14	6	0	0	3	17.892	
	月間運転回数	No. 7	6	7	6	0	0	0	8	11	0	0	0	45	2.700	
		合計	15	24	22	18	17	21	16	37	44	0	0	8	222	41.258

\*1：第6系統 (TRACY) の気送子を11月30日に交換を行った。

表10 平成16年度固体廃棄物引渡量

種類	$\alpha$	$\beta \cdot \gamma$				合計
		第4四半期	第1四半期	第2四半期	第3四半期	
可燃物	19	44	35	50	46	175
不燃物 *2	33	—	—	—	—	—
フィルタ	1	0	2	0	0	2
合計	53	44	37	50	46	177

\*2：平成15年度第2四半期以降引渡を行っていない。



## 圖1 分析機器等配置圖

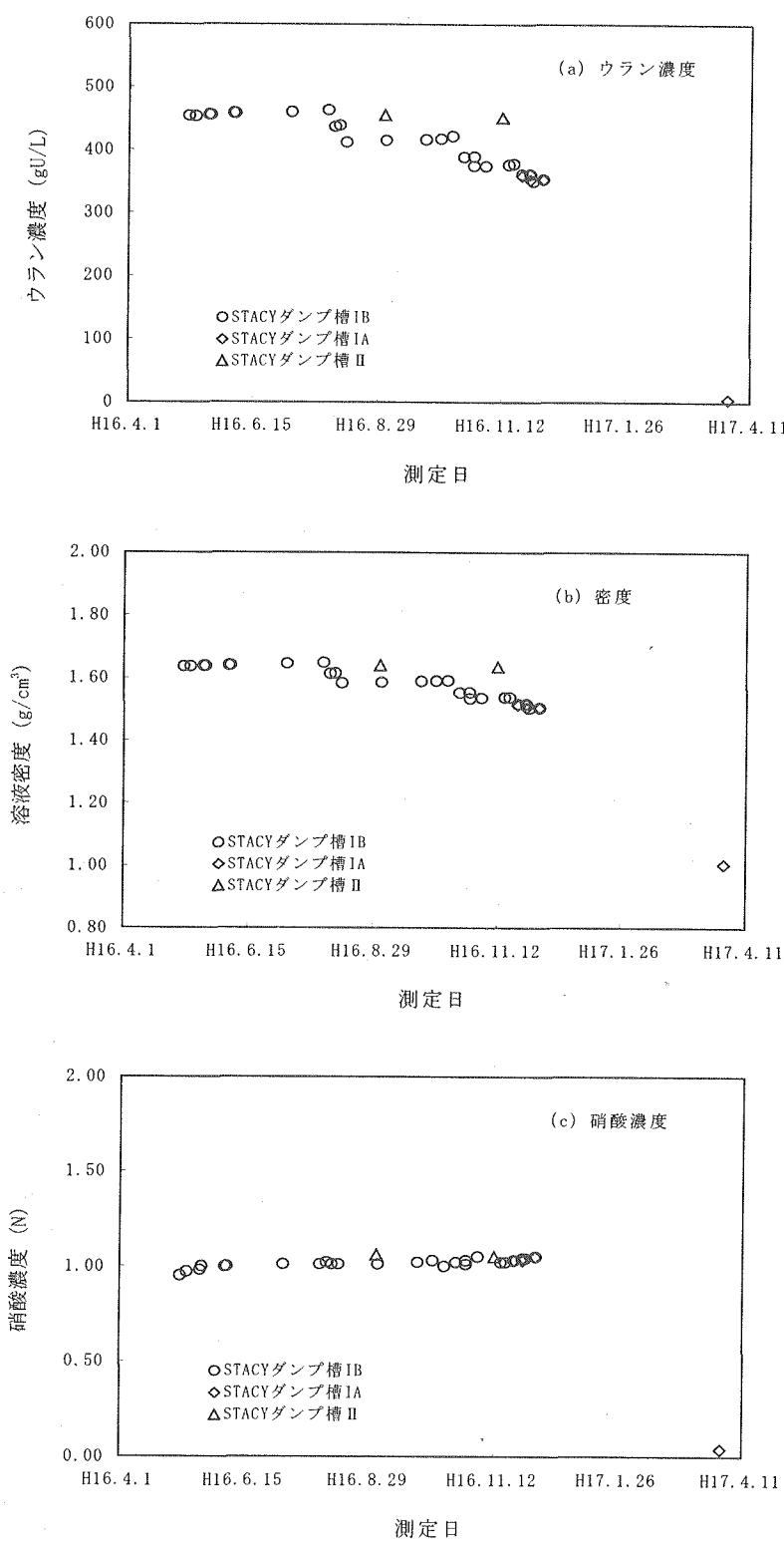


図 2 STACY 燃料分析結果

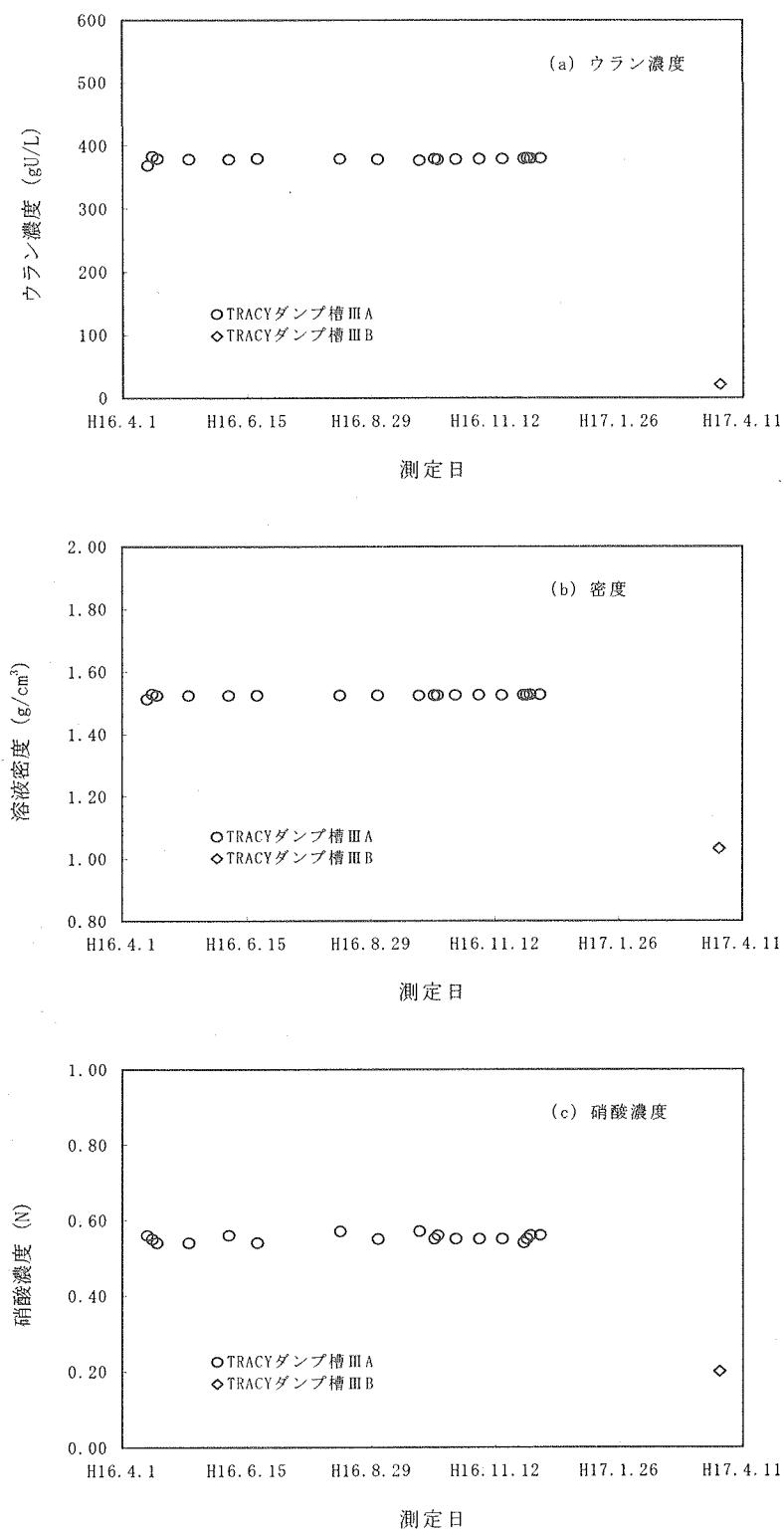


図3 TRACY燃料分析結果

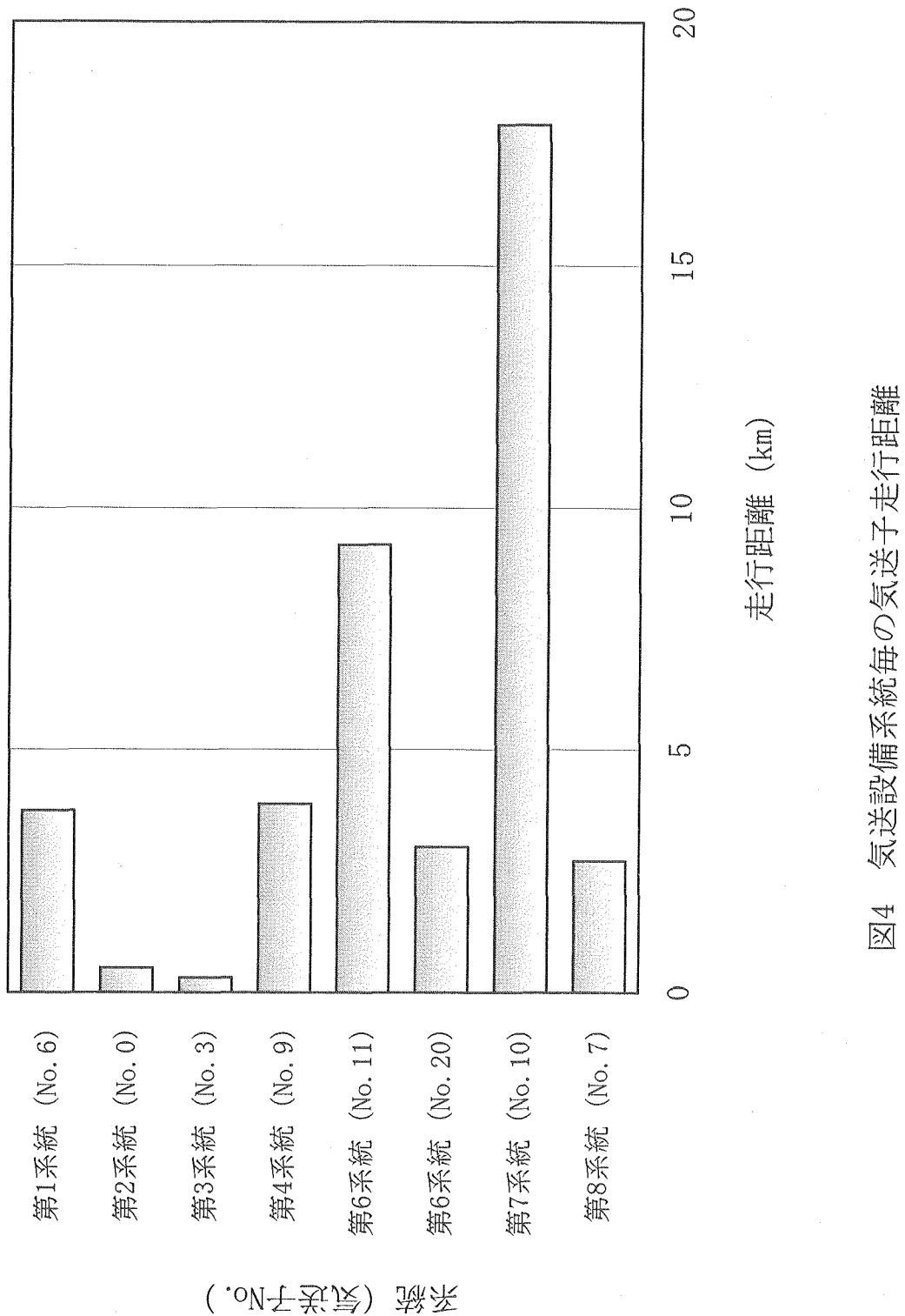


図4 気送設備系統毎の気送子走行距離

## 付録 分析管理データ

### (1) 室温及び相対湿度

分析室（I）及び分析室（II）の室温及び相対湿度の年間変動を図A1に示す。分析室（I）及び分析室（II）の年間平均室温は約24°C、相対湿度約40%であり、分析機器運転及び試薬調製等分析操作に有効な環境に保たれていると考えられる。

### (2) 自動電位差滴定装置の安定性

ウラン濃度分析は、重要な分析項目の一つである。NUCEF管理課では、次のようにしてウラン濃度分析に用いる自動電位差滴定装置の安定性を確認している。

ウラン作業用標準溶液(WSD)の調製日におけるウラン濃度( $U_A$ )及び試料の分析当日のウラン濃度( $U_B$ )の測定を自動電位差滴定装置で行う。 $U_A$ と $U_B$ との誤差( $\Delta U$ )を式(1)で求め、 $\Delta U$ が0.3%以下である場合は装置が安定していると判断する。平成16年度は図A2より自動電位差滴定装置が誤差の範囲で安定したことが分かる。

$$\Delta U = (U_B - U_A) / U_A \times 100 (\%) \quad \cdots (1)$$

### (3) 滴定分析に用いる標準溶液の調製及び標定

自動電位差滴定装置を用いた滴定分析では、ウラン濃度分析には二クロム酸カリウム溶液、硝酸濃度分析には水酸化ナトリウム溶液を滴定液として用いている。滴定液の濃度を正確に評価するため、二クロム酸カリウム溶液については金属ウラン標準試料JAERI-U4から調製したウラン濃度が既知の標準硝酸ウラニル溶液、水酸化ナトリウム溶液については濃度が既知のアミド硫酸を用いて、滴定液の調製の都度標定を行っている。表A1及び表A2に、二クロム酸カリウム標準溶液及び水酸化ナトリウム標準溶液の標定結果を示す。

表A1 二クロム酸カリウム標準溶液の標定結果

測定日	滴定装置	標準硝酸ウラニル溶液による二クロム酸カリウム標準溶液の標定結果			
		標定値 (N)	標準偏差 $\sigma n^{-1}$ (N)	変動係数 (%)	計算値との差 (%)
H16. 05. 17	No. 5	0.03282	0.00011	0.101	-0.075
H16. 10. 05		0.03263	0.00006	0.179	0.044
H16. 11. 10		0.03263	0.00004	0.124	0.104
H17. 03. 28		0.03267	0.00004	0.137	-0.098

表A2 水酸化ナトリウム標準溶液の標定結果

測定日	滴定装置	アミド硫酸による水酸化ナトリウムの標定結果		
		標定値 (N)	標準偏差 $\sigma n^{-1}$ (N)	変動係数 (%)
H16. 05. 14	No. 1	0.10676	0.0001	0.123
H16. 07. 08		0.11019	0.0002	0.142
H16. 08. 03		0.11043	0.0001	0.098
H16. 11. 02		0.11161	0.0001	0.056
H16. 12. 01		0.11218	0.0001	0.058
H17. 03. 28		0.10867	0.0001	0.084
H16. 04. 28	No. 4	0.10264	0.0003	0.327
H16. 05. 13		0.10171	0.0001	0.131
H16. 06. 10		0.10184	0.0001	0.054
H16. 07. 05		0.10530	0.0004	0.372
H16. 07. 08		0.09919	0.0000	0.004
H16. 10. 26		0.09818	0.0001	0.113
H16. 10. 29		0.09932	0.0001	0.069
H16. 11. 11		0.10839	0.0001	0.062
H16. 11. 25		0.10839	0.0002	0.158
H17. 03. 08		0.10896	0.0001	0.106

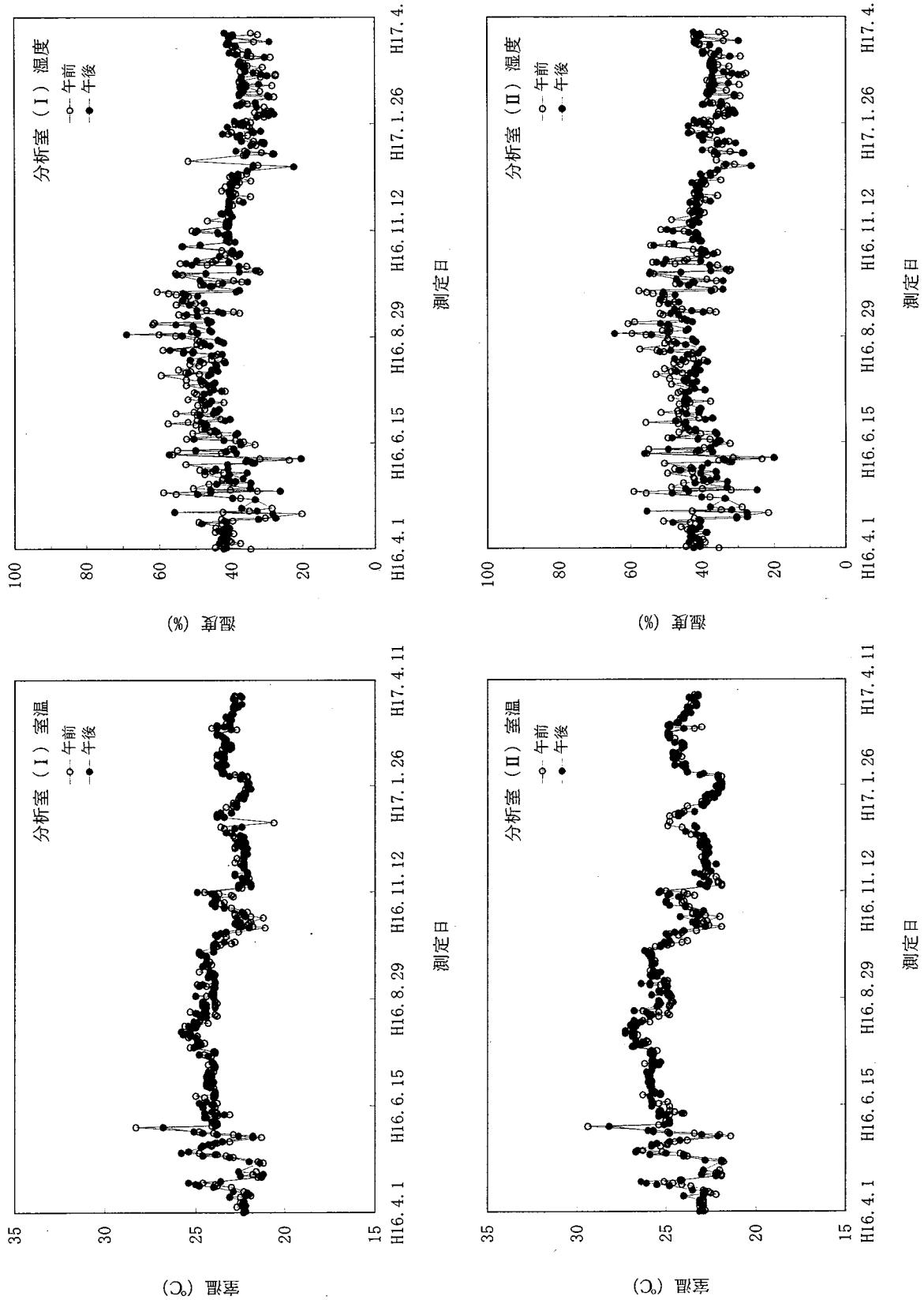
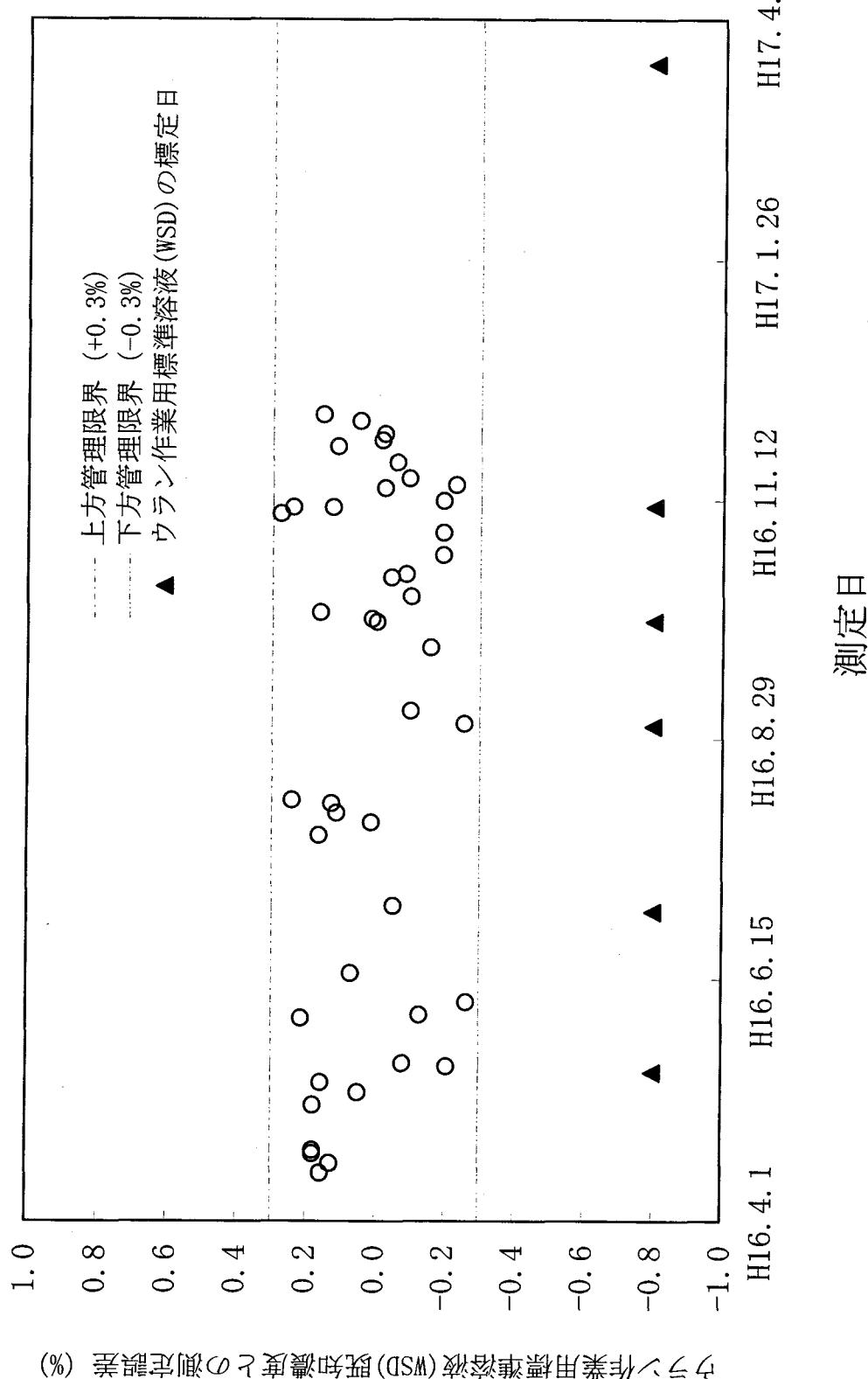


図 A1 分析室 (I) (II) の室温・湿度



図A2 ヴラン作業用標準溶液の分析結果