

NUCEFにおける分析

—平成18年度—

Analytical Work at NUCEF in FY2006

坂爪 克則 青木 博道 芳賀 孝久 深谷 洋行 薗田 晓
清水 香織 新妻 泰* 伊藤 光雄 井上 猛

Yoshinori SAKAZUME, Hiromichi AOKI, Takahisa HAGA, Hiroyuki FUKAYA
Takashi SONODA, Kaori SHIMIZU, Yasushi NIITSUMA*, Mitsuo ITO
and Takeshi INOUE

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

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp/index.shtml>)
より発信されています。このほか財団法人原子力弘済会資料センター*では実費による複写頒布を行つ
ております。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地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
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920

*〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4 日本原子力研究開発機構内

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency
Inquiries about availability and or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel.029-282-6387, Fax.029-282-5920

NUCEFにおける分析

－ 平成 18 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

坂爪 克則・青木 博道※・芳賀 孝久※・深谷 洋行

薗田 晓・清水 香織・新妻 泰*・伊藤 光雄

井上 猛⁺

(2007年12月19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 18 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等を行うとともに、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。

平成 18 年度における総分析試料数は、254 試料であった。

本報告書は、平成 18 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

+ 核不拡散科学技術センター

※ 技術開発協力員

* 平成 18 年 9 月退職

Analytical Work at NUCEF in FY 2006

Yoshinori SAKAZUME , Hiromichi AOKI*, Takahisa HAGA*, Hiroyuki FUKAYA,
Takashi SONODA , Kaori SHIMIZU , Yasushi NIITSUMA*,
Mitsuo ITO and Takeshi INOUE⁺

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 December19, 2007)

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 2006 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. The total number of the samples analyzed in FY 2006 was 254.

This report summarizes works related to the analysis and management of the analytical laboratory in the FY 2006.

Keywords : Analysis, NUCEF, STACY, TRACY, Uranium, Criticality

+ Nuclear Nonproliferation Science and Technology Center
※ Collaborating Engineer
* Retirement in September 2006.

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 18 年度の分析実績	2
2.4 燃料調製設備の精製運転に係る分析	2
2.5 高燃焼度燃料の燃焼度測定に係る分析	3
2.6 国際規制物資の計量管理	3
3. 分析法の検討	3
3.1 Gd 濃度の定量法の検討	4
3.2 模擬 FP 及び Gd 添加低濃度ウラン溶液燃料の分析法の検討	4
4. 分析設備の運転・保守・管理	5
4.1 分析設備	5
4.2 廃棄物の発生量	6
5. 分析設備の整備	7
6. あとがき	8
謝辞	8
参考文献	9
付録 1 MIBK 抽出-アルセナゾⅢ発色法による微量ウラン定量法	26
付録 2 MIBK 抽出-アルセナゾⅢ発色法による微量ウラン定量法の検討	29
付録 3 分析管理データ	41

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 2006	2
2.4 Analysis related to the refinement operation at fuel preparation facilities	2
2.5 Analysis related to the high burnup fuel	3
2.6 Analysis for the nuclear material accountancy.....	3
3. Study on analytical methods	3
3.1 Study on the quantitative analysis of Gd element	4
3.2 Study on the analytical method for simulated FP elements and Gd addition solution fuel	4
4. Operation, maintenance and management of analytical equipments	5
4.1 Analytical equipments	5
4.2 Amount of radioactive waste produced by analytical work	6
5. Renewal and upgrade of analytical equipment	7
6. Closing remarks	8
Acknowledgments	8
References	9
Appendix 1	26
Appendix 2	29
Appendix 3	41

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を、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）では、分離プロセス、放射性廃棄物及び超ウラン元素（TRU）化学に関する研究を行っている。

平成 18 年度の分析業務の背景となる各装置等の稼働状況は以下のとおりである。

STACY では可溶性毒物（Gd）を添加した硝酸ウラニル（ ^{235}U 濃縮度：6%）溶液燃料とウラン（ ^{235}U 濃縮度：5%）棒状燃料を用いて非均質炉心での臨界実験が行われ、TRACY では硝酸ウラニル（ ^{235}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。燃料調製設備では STACY での臨界実験に使用される硝酸ウラニル（ ^{235}U 濃縮度：6%）溶液燃料の調整、硝酸ウラニル溶液燃料への Gd 添加作業及び同 Gd の調製が行われた。また、STACY では平成 17 年度に核分裂生成物（Fission Products : FP）を模擬した物質（以下、模擬 FP という）を添加した硝酸ウラニル溶液燃料による臨界実験が実施され、これに伴い発生した洗浄液の精製運転も行われた。なお、この精製運転に先立ち、精製運転に係る予備試験が実施された。

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を実施した。燃料調製設備の運転に関する分析として各種運転状況を確認する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、計量槽に移送した硝酸ウラニル溶液の分析を実施した。さらに、分析設備の保守・管理・整備に係わる作業も行った。

本報告書は、平成 18 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、燃料調製設備で調整した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が実施されている。STACY 及び TRACY の実験解析に伴う分析項目は、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、模擬 FP 濃度分析、Gd 濃度分析、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、リン酸トリブチル（TBP）濃度分析、全 γ 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、ウラン濃度分析、同位体組成分析である。これらの分析には、分析試料の性状、濃度及び共存物質の有無、依頼元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一覧を表 1 に示す。

2.2 分析設備の概要

分析設備¹⁾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。分析設備の分析機器等の配置を図 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 18 年度の分析実績

平成 18 年度の試料分析実績を表 2 に示す。平成 18 年度の総分析試料数は 254 試料、分析総数は 608 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 51%、STACY 及び TRACY の臨界実験に係わるものが 14% 及び 10%、精製運転の予備試験に係わるものが 13%、NUCEF 関連技術開発等に係わる分析（表 2 の「その他」に分類）が 12% であった。分析項目別でみると、ウラン濃度分析と硝酸濃度分析（酸分析）が全体の約 55% を占め、次いで模擬 FP 濃度分析、同位体組成分析、TBP 濃度分析、不純物元素濃度分析、FP 分析、全γ 放射能測定、リン酸ジブチル（DBP）濃度分析の順となっている。また、上記以外の依頼項目は全体の 2% であった。

表 3 及び図 2 に STACY 燃料のウラン濃度、密度、硝酸及び Gd 濃度の分析結果を、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 80 試料、分析総数は 196 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 92 試料、分析総数は 221 であった。

なお、第 2 四半期の分析実績には、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 56 試料、分析総数は 146 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 26 試料、分析総数は 31 であった。

いずれも要求される精度以内で分析を行うことができた。

2.4 燃料調製設備の精製運転に係る分析

STACY では平成 17 年度に模擬 FP としてサマリウム (Sm)、セシウム (Cs)、ロジウム (Rh) 及びユウロピウム (Eu) が硝酸ウラニル溶液燃料に順次添加され、臨界実験が行われた。この臨界実験に伴い発生した洗浄液の精製運転が H18 年度に行われた。精製運転は TBP-n-ドデカンを抽出剤としたミキサセトラによるピューレックス法であり、分析項目として、ウラン濃度、硝酸濃度、模擬 FP 濃度等がある。このうち、模擬 FP 濃度の分析については、Sm、Eu を同位体希釈質量分析法あるいは ICP 発光分光分析法で行い、Cs をイオンクロマトグラフィーで、Rh を ICP 発光分光分析法で行った。

また、精製運転に先立ち、模擬 FP の TBP-n-ドデカンへの抽出率、TBP-n-ドデカンの劣化に関する性能試験等の予備試験が行われ、これらの試験に係る分析も実施した。

(1) 模擬 FP 抽出予備試験

模擬 FP 入り 6% ウラン燃料の精製運転に備えて、平成 18 年 5 月に模擬 FP 抽出予備試験が

実施された。TBP-硝酸系における模擬 FP は、TBP にわずかに抽出されることが文献²⁾等により分かっており、本試験では、精製運転時の模擬 FP の挙動を把握することを目的として TBP-n-ドデカンに対する模擬 FP の分配比を調べた。この予備試験に伴いウラン濃度、硝酸濃度及び模擬 FP 濃度の分析を実施した。

(2) TBP-n-ドデカンの性能確認試験

平成 14 年度の精製運転で使用した抽出剤 TBP-n-ドデカンを平成 18 年度の精製運転に再使用できるかどうかを確認するために、平成 18 年 6 月と 7 月の 2 回、使用済み TBP-n-ドデカンと新規に調製した TBP-n-ドデカンの性能確認試験が実施された。これに伴うウラン濃度及び硝酸濃度の分析を実施した。

2.5 高燃焼度燃料の燃焼度測定に係る分析

安全研究センター原子炉施設安全評価研究ユニット燃料安全評価研究グループから、原子炉安全性研究炉（NSRR）で照射された高燃焼度燃料の燃焼度測定のための質量分析の依頼を受け、平成 18 年度に、2 回にわたり計 28 試料を受け入れ、ウラン及びプルトニウムの同位体組成分析を実施した。

本分析では、ウラン及びプルトニウムの化学分離操作を含む前処理作業を依頼元が実施し、試料を乾固物の状態で分析設備に搬入した。これらの試料については、分析設備において溶解、濃度調整を行った後に質量分析を実施した。質量分析終了後は残試料を乾固物とし、依頼元に返却した。

2.6 國際規制物資の計量管理

東海研究開発センター原子力科学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 18 年 9 月 1 日～9 月 20 日に行った。また、平成 18 年 9 月 21 日～9 月 22 日には、国際原子力機関（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。これに伴う硝酸ウラニル溶液の分析を実施した。

平成 18 年度から、原子炉等規制法第 68 条第 1 項及び第 12 項に基づき、IAEA と文部科学省の保障措置室（JSGO）及び指定保障措置検査等実施機関である財団法人核物質管理センター（NMCC）東海保障措置センターにより試料の収去が行われることになった。JSGO 及び NMCC の収去試料の分析は、同位体希釈質量分析法（IDMS）により行われるため、事前に NMCC からスパイク（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）試料を受け入れ、収去試料の前処理を行った。

図 4 に作業用ワークシート、図 5 に IAEA 用ワークシート、図 6 に収去試料処理手順を示す。収去試料については、IAEA 保障措置分析所並びに NMCC 東海保障措置センターにそれぞれ払い出した。

3. 分析法の検討

Gd を添加した溶液燃料による STACY での臨界実験に備えて、前年度に引き続き Gd 濃度の定

量法を検討した。また、平成 17 年度に模擬 FP を添加した臨界実験が STACY で実施され、その溶液燃料の精製が平成 19 年度に予定されている。このため、模擬 FP 共存下でのウラン濃度の定量法を検討した。

3.1 Gd 濃度の定量法の検討

(1) 同位体希釈質量分析法

質量分析計を用いた同位体希釈質量分析法 (IDMS) による Gd 濃度の定量法を検討した。H17 年度は、質量分析計における測定条件の検討、スペイク (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、入手、調製等を行った。本年度は、測定条件及び分離手順を確立し、Gd 濃度の測定への対応を実施した。

(2) ICP 発光分光分析法

ICP 発光分光分析装置を用いて Gd 濃度の定量法を検討した。

本年度は、TBP-n-ドデカンを用いてウランの溶媒抽出分離を検討し、Gd 濃度の測定を実施した。既知濃度の試料を分析した結果、既知濃度との相対差が±5%以内であることを確認した。また、溶液燃料中の Fe, Ni, Cr, Mn, Cu 及び Co の影響について調べた結果、10mg/l 以下の濃度であれば相互影響はないことを確認した。さらにウランについても同様に相互影響を検討し、10mg/l 以下の濃度であれば問題のないことを確認した。

3.2 模擬 FP 及び Gd 添加低濃度ウラン溶液燃料の分析方法の検討

STACY の燃料調製に係る溶液燃料中のウラン濃度分析では、高濃度試料 (数 g/l 以上) については鉄 (II) 還元一二クロム酸カリウム酸化滴定法³⁾又は、硫酸アンモニウム添加一アルカリ中和滴定法⁴⁾を、低濃度試料 (~400mg/l) については、アルセナゾⅢを発色剤に用いる紫外可視分光光度法を主に採用している。アルセナゾⅢ発色による紫外可視分光光度法は高感度であり、溶液燃料に測定の妨害となる元素がほとんど存在しない場合には、直接発色が可能なため、簡便であり工程管理分析としては有効である。

模擬 FP、Gd 添加臨界実験後の燃料調製 (精製運転) においては、模擬 FP、Gd を含む低濃度のウラン分析が必要となるため、アルセナゾⅢ発色法では、希土類元素がウランの吸収と類似した吸収帯を持つことからウランの定量に影響を与える⁵⁾⁶⁾。このため、メチルイソブチルケトン (MIBK) 抽出によるアルセナゾⅢ発色法及び 2π ガスフローカウンタを用いた低濃度のウラン分析法を検討した。

(1) 紫外可視分光光度法 (アルセナゾⅢ発色法)

紫外可視分光光度計を用いた低濃度ウランの定量法を検討した。

大過剰の塩析剤と MIBK を組み合わせたレドックス法により希土類元素とウランを分離する前処理操作の検討を試みた^{7)~14)}。検討では模擬 FP、Gd の抽出挙動、MIBK によるウラン抽出条件及びウラン抽出における回収率を調べた。また発色条件については、硝酸濃度、2-n-ブトキシエタノールと MIBK の相互溶解性及びアルセナゾⅢの添加量を調べた。

その結果、一回の抽出操作で 94%以上のウラン回収率が確認された。また、ウランを抽出し

た MIBK 相をアルセナゾⅢで直接発色することが可能であり、この操作での分析誤差は、従来の発色手順と同様に±10%以内であった。

(2) 2π ガスフローカウンタ法

2π ガスフローカウンタを用いた低濃度ウランの定量法を検討した。

試料中のウランを TBP-n-ドデカンで有機相に抽出することにより、模擬 FP 及び希土類元素とウランを分離し、抽出後の有機相からウランを水相に逆抽出する。逆抽出した水相をタンタル板に蒸発乾固後、テトラエチレンジリコールで覆い、ガスバーナーで焼付け、 2π ガスフローカウンタでウランを測定する方法を検討した。

その結果、自己吸収等の影響を補正することにより測定可能であることを確認した。また、試料中の模擬 FP の存在量が少なく、自己吸収が極端に多く生じない場合には直接測定が可能であることを確認した。

上記の 2 法を比較検討した結果、手順の簡便性等を考慮し、MIBK 抽出によるアルセナゾⅢ発色法を適用することとした。

MIBK 抽出－アルセナゾⅢ発色法による微量ウラン定量法を付録 1 に、MIBK 抽出－アルセナゾⅢ発色法による微量ウラン定量法についての検討結果を付録 2 に示す。

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¹⁵⁾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、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 18 年度に気送設備を利用して分析試料を STACY、TRACY 及び燃料調製設備から分析室（I）へ搬送した回数は 445 回、気送子の総走行距離は約 72km 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 7 に示す。

日常点検、月例点検及びメーカーによる点検（気送設備全体の総合点検及び気送子の移送・返送操作の作動試験）により気送設備の維持管理を行った。

(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 基）に接続された試料搬送用グローブボックス内をロボットが移動して、グローブボックス間で自動的に試料を運搬するための設備である。

日常点検、月例点検及びメーカーによる点検（試料搬送装置全体の総合点検及び模擬試料の移送・返送の作動試験）により試料搬送装置の維持管理を行った。

(3) 分析機器

各分析機器については、機器の操作開始前及び終了後の点検、週例点検、月例点検等を行うと共に、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た。

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、性能及び精度を維持するために、メーカーによる装置の保守点検を行うと共に、標準試料により機器の性能・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の間、一時的に貯蔵しておく貯槽類から構成されている。

日常点検及び月例点検により後処理装置の維持管理を行った。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 基、分析室（II）に 3 基、分析室（III）に 1 基、分析室（IV）に 2 基の計 23 基のグローブボックスがあり、グローブボックス内には主要な分析機器が設置されている。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ルバッグの汚染検査は、日常の分析作業の開始前及び終了後に行っており、また、ピンホールの有無、劣化によるひび割れ等は、毎月の点検により確認している。

また、BECKY 施設定期自主検査及び自主的な検査として、グローブボックス用計器（圧力指示計等）及び警報盤の点検校正、負圧計の作動試験を実施し、機器が正常に動作することを確認した。さらに、グローブボックスの気密検査を実施し、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 基、分析室（II）に 2 基の計 5 基のフードがあり、試料の分取、保管、前処理、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、必要に応じてフード内を養生しているビニールの交換を行った。

さらに、月例点検により全フードについてフードの前面扉を 1/2 開口した時の風速を測定し、 0.5 m/s 以上であることを確認した。また、メーカーによるフード用電源設備の点検及びマノスターゲージの校正、調整を実施した。

4.2 廃棄物の発生量

平成 18 年度に分析業務で発生した β γ 固体廃棄物の引渡量は、可燃物（赤カートンボックス）が 192 個、200L ドラム缶に封入した難燃性廃棄物が 2 本、グローブボックス及びフード用フィルタが 10 個であった。また、 α 固体廃棄物量は、可燃物が 24 袋、ビニルバッグが 13 袋、金属が 8 袋、ガラスが 2 袋、イオン交換樹脂が 1 袋（1 袋当たりの容量は約 50 L）、廃液の固化体が 1

個（固化体は 3ℓ のポリ瓶）であった。四半期毎の β γ 固体廃棄物及び α 固体廃棄物の引渡量を表 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は主にリン酸、硫酸及び鉄を多量に含有しているもので、水酸化ナトリウムで中和し、生成した沈殿物を濾別した後、沈殿物をセメントで固化、固体廃棄物として廃棄物処理場へ搬出した。上澄み液については蒸発濃縮等の処理を行っている。

平成 19 年 1 月～平成 19 年 3 月に中和処理作業とセメント固化作業及び中和作業で発生した上澄み液の濃縮作業を実施した。中和処理を行った液体廃棄物量は約 40ℓ であった。また、平成 17 年度に発生した中和処理済み廃液約 110ℓ、上澄み液約 80ℓ もあわせて処理した。発生したセメント固化体（3ℓ ポリ瓶）は約 30 本、上澄み液は約 100ℓ であった。上澄み液の濃縮作業は平成 19 年度も引き続き実施する予定である。

平成 18 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

分析設備の整備として、平成 18 年度は試料中に含有する無機陰・陽イオン種の定量を目的としてイオンクロマトグラフの整備を行った。

本装置はノンサプレッサータイプのイオンクロマトグラフであり、送液ポンプ 2 台、脱気装置 1 台、カラム恒温槽 1 台、自動試料注入部 1 台及び紫外可視検出器、電気化学検出器、伝導度検出器の 3 種類の検出器各 1 台と、これらの各ユニットを制御するワークステーションから成る。本装置は平成 19 年度以降に実施予定である Gd を添加した硝酸ウラニル溶液燃料の精製運転に係る工程管理分析に備えるものである。

6. あとがき

平成 18 年度に実施した STACY、TRACY 及び燃料調製設備等の試験・運転に係わる試料分析、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 19 年度は、平成 18 年度に引き続き STACY において Gd 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。さらに、燃料調製設備においても平成 18 年度に STACY で使用した模擬 FP 添加燃料の精製運転が予定されており、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は、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いたします。

参考文献

- 1) 宮内正勝, 他 : JAERI-Tech 96-007 , "NUCEF 分析設備" (1996).
- 2) 日本原子力研究所 : JAERI 1047 , "Data of Inotganic Solvent Extraction(1) "(1963).
- 3) ISO 7097-1 : "Nuclear fuel technology - Determination of uranium in solutions, uranium hexafluoride and solids - part1 : Iron(II) reduction/potassium dichromate oxidation titrimetric method", ISO, Geneva(2004).
- 4) K.Motojima, K.Izawa, : "Anal.Chem. ",36,PP.733-735(1964)
- 5) 文部科学省 :"ウラン分析法", (2002).
- 6) 無機応用比色分析編集委員会/編 "無機応用比色分析", 共立出版 (株) (1980).
- 7) S.B.Savvin: "Talanta", 8,PP.673-685(1961).
- 8) 大西 寛, 樋田行雄: "分析化学", 14, PP.1141-1145(1965).
- 9) 本島健次, 山本 忠, 加藤義春: "分析化学", 18, PP.208-213(1969).
- 10) A.A.Nemodruk, L.P.Glukhova: "Zh. Anal.Khim ", 18,PP.93-98(1963).
- 11) 大西 寛, 樋田行雄: "分化化学", 18, PP.592-595(1969).
- 12) 園部保, 他 : 私信 (1993).
- 13) N.Ichinose: "Z.Anal.Chem ".255,PP.109-113 (1971).
- 14) 星野忠也, 他 : PNC TN8420 95-002,"核種分離抽出剤の調査"(1995).
- 15) 岡本久人, 他 : 私信(1993).

表1 分析項目別の分析方法一覧

分析項目	要求精度		濃度範囲	分析方法	分析装置
	実験解析分析	工程管理分析			
ウラン濃度	密度	±0.05%	±0.05%	±0.05% ～3g/cm ³	固有振動型密度計による密度測定法
		±0.3%	—	±0.3% 1mg/L～	固有振動型密度計
		—	±5%	数mg/L～数100mg/L	同位体希釈質量分析法 (IDMS)
		±0.3%	±0.3%	数g/L～数100g/L	硫酸アソニモニアム添加アルカリ中和滴定法
	TBP濃度	—	±10%	— 1.0mg/L～400mg/L	鉄(II)還元ニクロム酸カリウム酸化滴定法
	DBP濃度	±3%	±5%	— 0.01N～	アルセナゾ発色－紫外・可視分光光度法 中和滴定法
模擬PP濃度	TBP濃度	—	±10%	— 数10mg/L～数1000mg/L	紫外分光光度計
	DBP濃度	—	±5%	— 數%～數10%	自動電位差滴定装置
	不純物元素濃度	±10%	±10%	— 1mg/L～	赤外分光光度計
	Sm, Eu	±1%	±10%	— 1mg/L～	ICP発光分光分析法
	Cs	±5%	±10%	— 2mg/L～	IDMSまたはICP発光分光分析法
	Rh	±5%	±10%	— 1mg/L～	イオンクロマトグラフィー
核分裂生成物	Gd濃度	±3%	±10%	— 1mg/L～	ICP発光分光分析法
	全 γ	±10%	±10%	— 1Bq/mL～	IDMSまたはICP発光分光分析法
	同位体組成	±0.1%	±0.1%	— —	全 γ 分析法
	ブルトニウム濃度	±0.3%	±5%	±0.3% 1mg/L～	同位体希釈質量分析法 (IDMS)
	α 核種	±10%	±10%	— 1.0mg/L～400mg/L	Ce(IV)添加－紫外・可視分光光度法
	アメリシウム濃度	±10%	±10%	— 1.0mg/L～	γ線スペクトロメトリ
ネプツニウム濃度	—	—	— 1mg/L～	γ線スペクトロメータ	
	—	—	— 1mg/L～	総 α 線測定法	

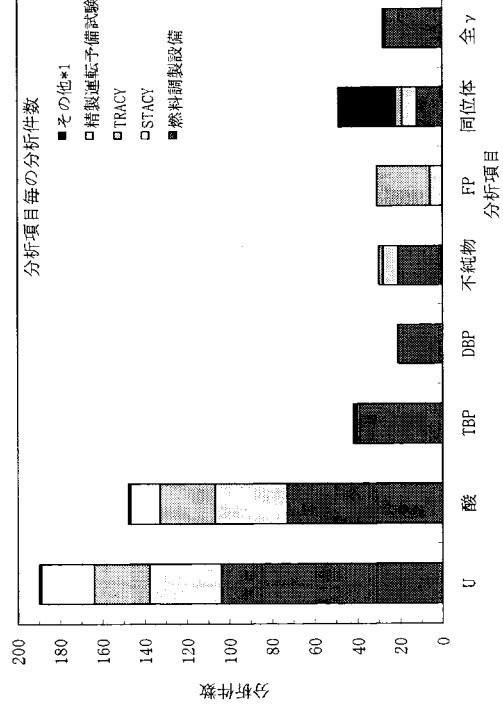
表2 平成18年度試料分析実績

**：分析項目略記号

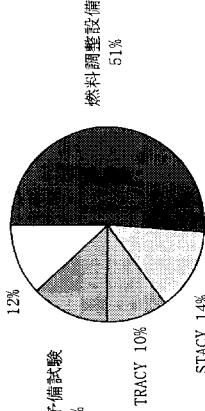
依頼元	分析試料数	分析件数										分析総数
		U	酸	TBP	DBP	不純物	FP	同位体	全γ	α核種	模擬FP	
燃料調製設備	130	104	73	39	21	0	12	7	27	0	16	0
STACY	35	34	1	0	7	6	0	0	0	0	28	5
TRACY	26	26	1	0	2	25	3	0	0	0	0	58
精製運転予備試験	33	25	14	0	0	0	0	0	0	0	15	54
その他*1	30	1	1	0	0	0	0	0	0	0	0	31
計	254	190	148	42	21	30	31	49	28	0	59	10
												608

*1：その他は、NCFE内実施されている、NCFE開発技術開発に係る分析及びNSRRハルス照射燃焼燃料実験における発熱量評価実験に係る分析等を示す。

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 (%)

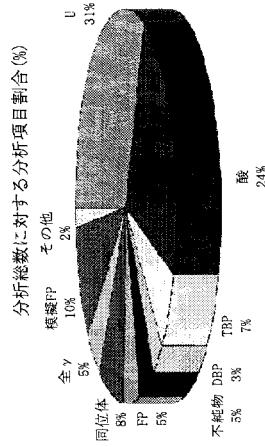


表3 STACY燃料の分析結果

試料番号	測定日	分析室温度 ^{*1} (°C)	密度 (g/cm ³)	ウラン濃度 ^{*2} (gU/L)	硝酸濃度 ^{*3} (N)	毒物濃度 (mg/L) Gd	試料採取場所
001~003	H18. 5. 15	23. 8	1.4971±0.0007	325.7±0.3	1.99±0.02	—	STACYダンプ槽IA
006~007	H18. 5. 18	24. 4	1.4977±0.0007	324.5±0.4	2.00±0.01	—	STACYダンプ槽IA
010~011	H18. 6. 1	24. 0	1.4999±0.0007	327.7±0.8	1.99±0.01	—	STACYダンプ槽IA
012~013	H18. 6. 12	23. 9	1.5022±0.0007	329.5±0.6	1.99±0.02	—	STACYダンプ槽IA
017~019	H18. 6. 20	24. 0	1.5013±0.0007	330.8±0.9	1.96±0.01	—	STACYダンプ槽IA
020~022	H18. 6. 26	24. 0	1.5031±0.0007	330.5±0.6	1.97±0.01	—	STACYダンプ槽IA
023~025	H18. 7. 1	24. 1	1.5041±0.0007	330.7±0.6	1.99±0.01	—	STACYダンプ槽IA
026~027	H18. 7. 4	24. 4	1.5035±0.0007	330.1±0.3	1.97±0.02	37.8±3%	STACYダンプ槽IA
028~029	H18. 7. 11	24. 4	1.5050±0.0007	330.6±0.2	1.98±0.01	37.7±3%	STACYダンプ槽IA
030~031	H18. 7. 19	24. 1	1.4995±0.0007	327.3±0.9	1.96±0.02	55.6±3%	STACYダンプ槽IA
032~034	H18. 7. 18	24. 1	1.5054±0.0007	331.3±0.1	2.00±0.01	56.6±3%	STACYダンプ槽IA
035~036	H18. 7. 25	24. 3	1.5063±0.0007	331.8±0.3	2.00±0.02	56.3±3%	STACYダンプ槽IA
037~038	H18. 7. 25	24. 3	1.5025±0.0007	329.0±0.1	1.99±0.01	76.3±3%	STACYダンプ槽IA
039~040	H18. 8. 1	24. 3	1.5037±0.0007	330.2±0.9	1.99±0.01	75.7±3%	STACYダンプ槽IA
041~042	H18. 8. 1	24. 3	1.4982±0.0007	326.6±0.4	1.96±0.02	95.5±3%	STACYダンプ槽IA
043~044	H18. 8. 8	24. 1	1.4992±0.0007	327.1±0.3	1.98±0.01	96.0±3%	STACYダンプ槽IA
047~048	H18. 8. 8	24. 1	1.4959±0.0007	325.4±0.5	1.96±0.01	95.3±3%	STACYダンプ槽IA
045~046	H18. 8. 11	24. 1	1.4965±0.0007	324.7±0.3	1.99±0.02	95.1±3%	STACYダンプ槽IA
052~053	H18. 8. 21	25. 4	1.4981±0.0007	325.2±0.3	1.98±0.02	96.6±3%	STACYダンプ槽IA
049~051	H18. 8. 25	25. 9	1.4855±0.0007	316.3±0.3	1.92±0.02	92.6±3%	STACYダンプ槽IA
054~056	H18. 9. 1	25. 6	1.4865±0.0007	319.2±0.9	1.94±0.02	92.9±3%	STACYダンプ槽IA
060~062	H18. 9. 29	—	1.4908±0.0007	320.2±0.7	1.91±0.01	94.5±3%	STACYダンプ槽IA
063~064	H18. 10. 4	25. 8	1.4915±0.0007	322.2±0.6	1.93±0.01	94.1±3%	STACYダンプ槽IA
065~066	H18. 10. 11	24. 9	1.4928±0.0007	322.5±0.3	1.96±0.01	94.5±3%	STACYダンプ槽IA
067~068	H18. 10. 16	24. 8	1.4939±0.0007	324.0±0.2	1.97±0.02	95.3±3%	STACYダンプ槽IA
069~070	H18. 10. 18	24. 1	1.4900±0.0007	322.0±0.6	1.92±0.02	391±3%	STACYダンプ槽IA
071~072	H18. 10. 23	21. 9	1.4910±0.0007	321.1±0.2	1.93±0.02	393±3%	STACYダンプ槽IA
073~074	H18. 10. 24	22. 8	1.4900±0.0007	320.0±0.2	1.90±0.02	689±3%	STACYダンプ槽IA
075~077	H18. 10. 30	22. 1	1.4911±0.0007	320.8±0.3	1.94±0.02	686±3%	STACYダンプ槽IA

*1 : 8/8までは分析室（I）、それ以降は分析室（II）で測定。

*2 : ウラン濃度の分析精度は、希釈試料を5回繰り返し測定した標準偏差を記載している。

*3 : 硝酸濃度の分析精度は、希釈試料を5回繰り返し測定した標準偏差を記載している。

表4 TRACY燃料の分析結果

試料番号	測定日	分析室温度 ^{*1}	密度	ウラン濃度 ^{*2}	硝酸濃度 ^{*3}	試料採取場所
		(℃)	(g/cm ³)	(gU/L)	(N)	
001～005	H18. 4. 17	22. 5	1. 0247±0. 0007	17. 0±0. 1	0. 13±0. 01	TRACY減衰槽B
006～008	H18. 4. 19	22. 4	1. 5204±0. 0007	376. 4±0. 5	0. 53±0. 01	TRACYダンプ槽III A
009～010	H18. 4. 28	22. 8	1. 5153±0. 0007	373. 9±0. 5	0. 52±0. 01	TRACYダンプ槽III A
011～012	H18. 5. 15	23. 8	1. 5157±0. 0007	371. 7±0. 5	0. 54±0. 01	TRACYダンプ槽III A
013～014	H18. 5. 30	24. 0	1. 5150±0. 0007	374. 7±0. 2	0. 51±0. 01	TRACYダンプ槽III A
015～016	H18. 6. 2	24. 0	1. 5151±0. 0007	372. 8±0. 3	0. 52±0. 01	TRACYダンプ槽III A
017～018	H18. 6. 20	24. 0	1. 5153±0. 0007	373. 8±0. 7	0. 50±0. 01	TRACYダンプ槽III A
019～020	H18. 6. 26	24. 0	1. 5157±0. 0007	373. 2±0. 6	0. 50±0. 01	TRACYダンプ槽III A
021～022	H18. 6. 30	24. 4	1. 5157±0. 0007	373. 5±0. 4	0. 50±0. 01	TRACYダンプ槽III A
023～024	H18. 7. 11	24. 4	1. 5165±0. 0007	373. 9±0. 2	0. 49±0. 01	TRACYダンプ槽III A
025～026	H18. 7. 19	24. 1	1. 5164±0. 0007	373. 4±0. 5	0. 50±0. 01	TRACYダンプ槽III A
027～028	H18. 8. 4	24. 2	1. 5162±0. 0007	374. 8±0. 9	0. 50±0. 01	TRACYダンプ槽III A
029～030	H18. 8. 11	25. 4	1. 5164±0. 0007	374. 0±0. 5	0. 51±0. 01	TRACYダンプ槽III A
031～032	H18. 8. 25	25. 9	1. 5165±0. 0007	373. 6±0. 3	0. 50±0. 01	TRACYダンプ槽III A
033～034	H18. 9. 7	25. 8	1. 5163±0. 0007	375. 2±0. 3	0. 49±0. 01	TRACYダンプ槽III A
035～036	H18. 9. 29	—	1. 5166±0. 0007	375. 0±1. 0	0. 48±0. 01	TRACYダンプ槽III A
037～038	H18. 10. 10	24. 8	1. 5166±0. 0007	374. 4±0. 4	0. 50±0. 01	TRACYダンプ槽III A
039～040	H18. 10. 16	24. 8	1. 5168±0. 0007	375. 7±0. 3	0. 48±0. 01	TRACYダンプ槽III A
041～042	H18. 10. 23	24. 1	1. 5170±0. 0007	374. 6±0. 5	0. 49±0. 01	TRACYダンプ槽III A
043～044	H18. 10. 30	23. 7	1. 5165±0. 0007	374. 3±0. 4	0. 50±0. 01	TRACYダンプ槽III A
045～046	H18. 11. 7	25. 1	1. 5174±0. 0007	374. 1±0. 2	0. 50±0. 01	TRACYダンプ槽III A
047～048	H18. 11. 13	22. 4	1. 5175±0. 0007	375. 1±0. 4	0. 49±0. 01	TRACYダンプ槽III A
049～050	H18. 11. 20	22. 7	1. 5176±0. 0007	373. 9±0. 1	0. 51±0. 01	TRACYダンプ槽III A
051～052	H18. 11. 28	22. 8	1. 5178±0. 0007	375. 2±0. 2	0. 50±0. 02	TRACYダンプ槽III A
053～054	H18. 12. 5	—	1. 5182±0. 0007	375. 9±0. 5	0. 49±0. 01	TRACYダンプ槽III A

*1 : 8/8までは分析室（I）、それ以降は分析室（II）で測定。

*2 : ウラン濃度の分析精度は、希釈試料を5回繰り返し測定した標準偏差を記載している。

*3 : 硝酸濃度の分析精度は、希釈試料を5回繰り返し測定した標準偏差を記載している。

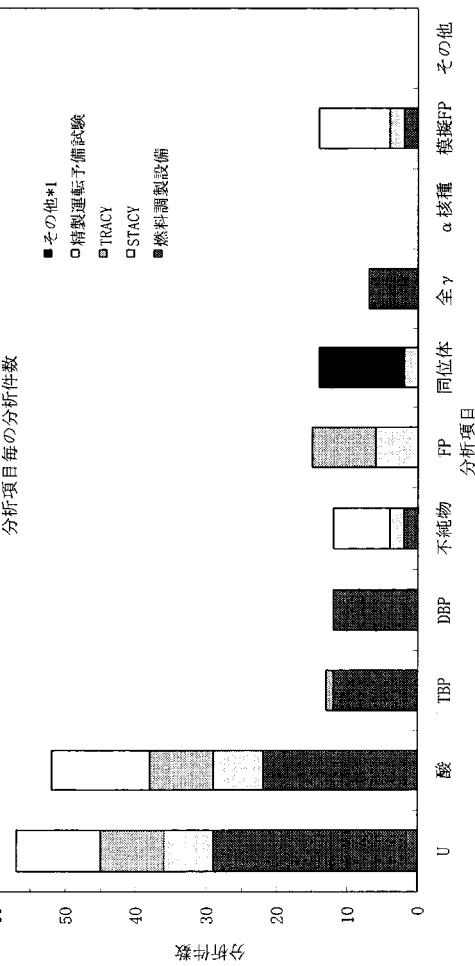
表5 平成18年度第1四半期試料分析実績

** : 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	PP	同位体	全γ	α核種	模擬FP	
燃料調製設備	35	29	22	12	2	0	0	7	0	2	0	86
STACY	8	7	0	0	0	6	2	0	0	2	0	26
TRACY	9	9	1	0	0	9	0	0	0	0	0	28
精製運転予備試験	16	12	14	0	0	8	0	0	0	0	10	44
その他*	12	0	0	0	0	0	0	12	0	0	0	12
計	80	57	52	13	12	12	15	14	7	0	14	0
												196

*1：その他は、NUCEF内で実施されている、NUCEF開運技術開発に係る分析及びNSRRハルス照射燃料実験における発熱量評価実験に係る分析等を示す。

分析項目毎の分析件数



分析試料数に対する依頼元割合

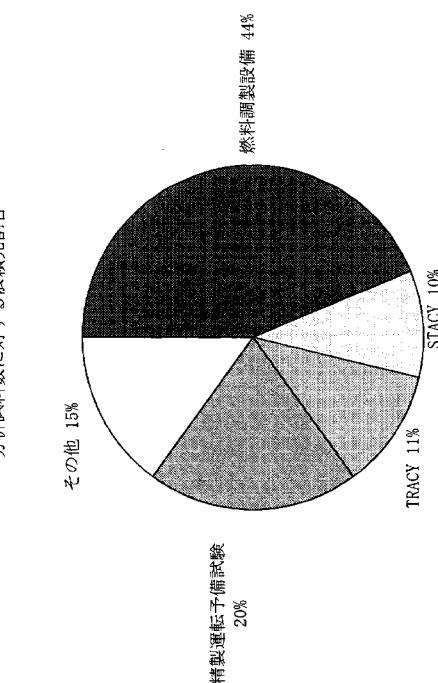


表6 平成18年度第2四半期試料分析実績

** : 分析項目略記号

依頼元	分析試料数	分析件数										分析総数
		U	酸	TBP	DBP	不純物	FP	同位体	全γ	α核種	模擬FP	
燃料調製設備	53	47	30	19	5	9	0	8	8	0	1	0
STACY	16	16	16	0	0	4	0	4	0	0	16	0
TRACY	7	7	7	0	0	0	7	1	0	0	0	0
精製運転予備試験	16	13	0	0	0	0	0	0	0	0	3	0
その他*	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
計	92	83	53	19	5	13	7	13	8	0	20	0
												221

*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及びNSRRパルス照射清燃料実験における発熱量評価実験に係わる分析等を示す。

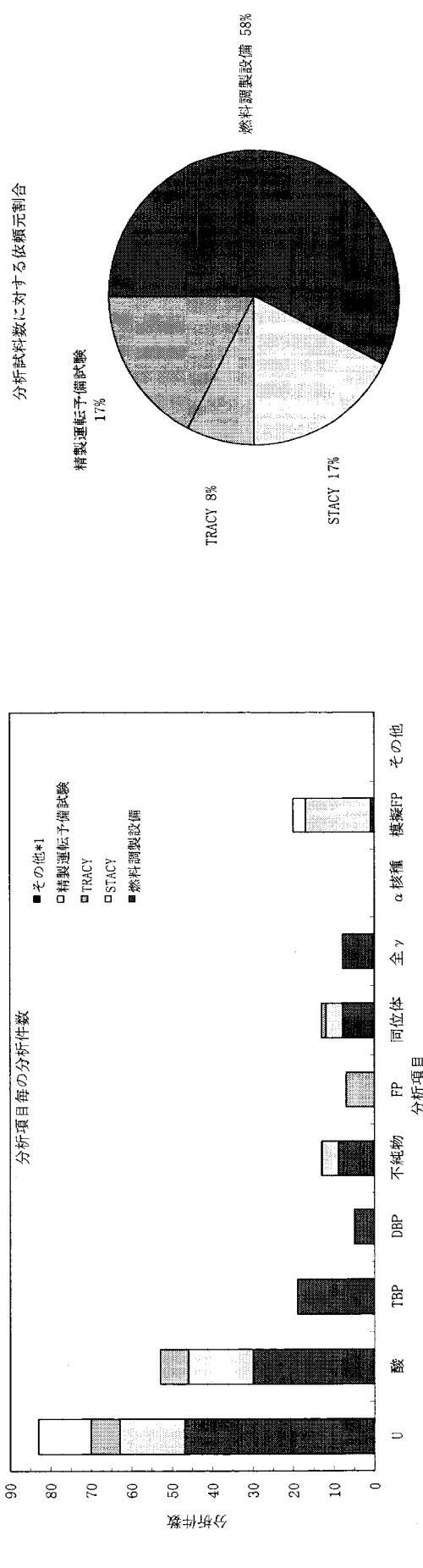


表7 平成18年度第3四半期試料分析実績

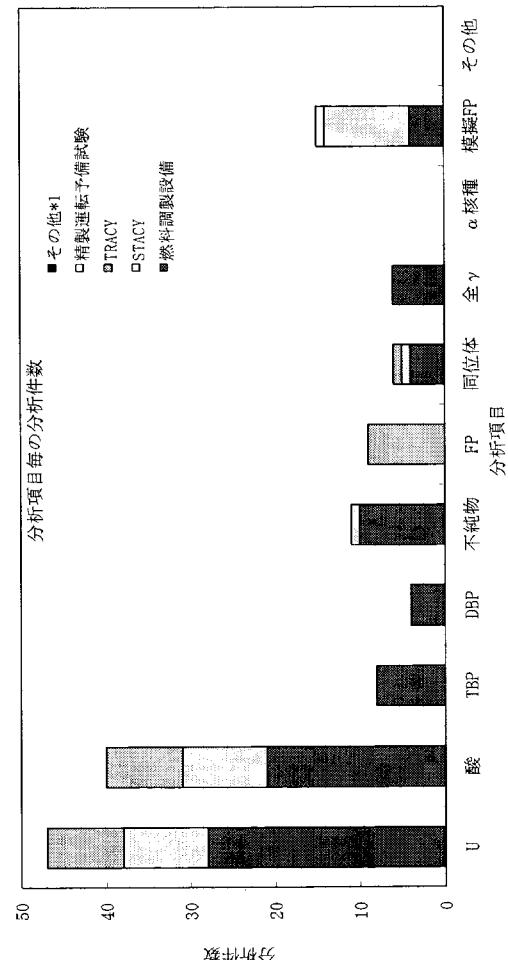
** : 分析項目略記号

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	模擬FP	
燃料調製設備	36	28	21	8	4	10	0	4	6	0	4	0
STACY	10	10	10	0	0	1	0	1	0	0	10	0
TRACY	9	9	9	0	0	0	0	9	1	0	0	0
精製運転予備試験	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	1
その他*	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
計	56	47	40	8	4	11	9	6	0	15	0	146

*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及びNSRRハルス照射済燃料実験における発熱量評価実験に係わる分析等を示す。

分析項目	U		酸		TBP		DBP		不純物		FP		同位体	全γ	α核種	模擬FP	その他
	酸	硫酸濃度分析	酸	硫酸濃度分析	TBP	硫酸濃度分析	DBP	硫酸濃度分析	不純物	硫酸濃度分析	DBP	TBP					
硫酸濃度分析																	
TBP濃度分析																	
DBP濃度分析																	
不純物元素分析																	
γ核種分析																	
同位体組成分析																	
全γ放射能測定																	
α核種																	
Pu, Am, Np等の分析																	
模擬FP																	
Si, Mn, Cs, Rn, Eu濃度分析																	
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

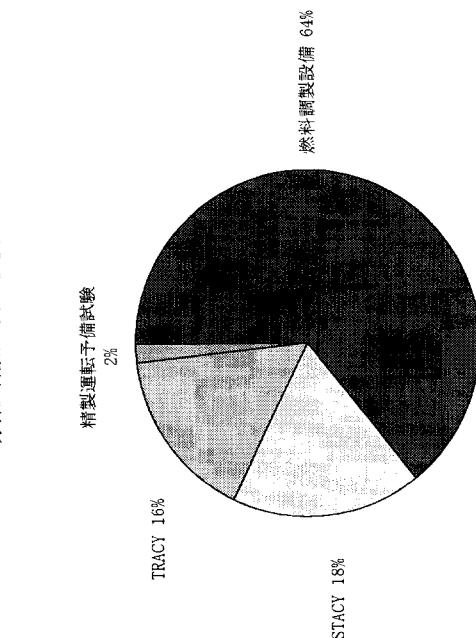


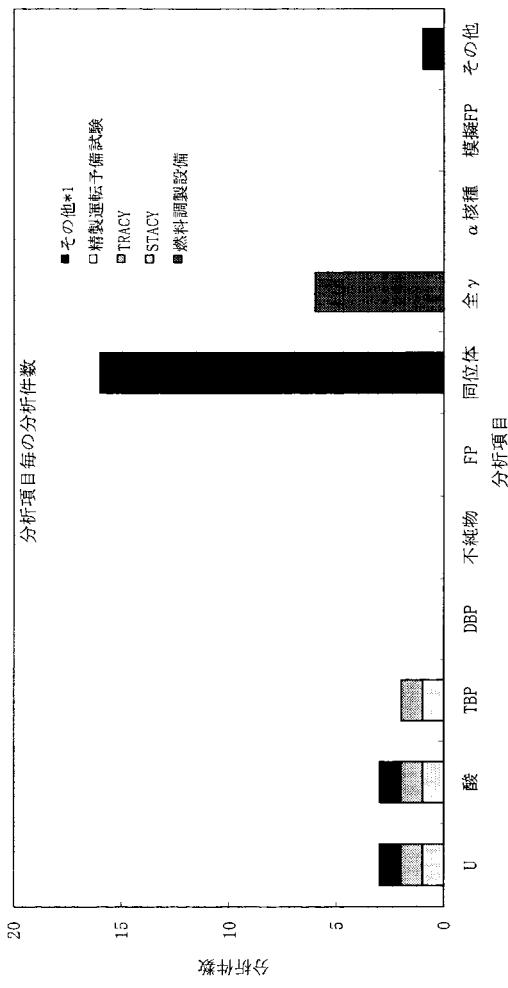
表8 平成18年度第4四半期試料分析実績

** : 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	6	0	0	0	0	0	0	0	6	0	0
STACY	1	1	1	1	0	0	0	0	0	0	6
TRACY	1	1	1	1	0	0	0	0	0	0	3
精製運転予備試験	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
その他*1	18	1	1	0	0	0	0	16	0	0	19
計	26	3	3	2	0	0	0	16	6	0	31

*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及びUNSRRハルス照射溶融燃料実験における発熱量評価実験に係わる分析等を示す。

20 分析項目毎の分析件数



分析試料数に対する依頼元割合

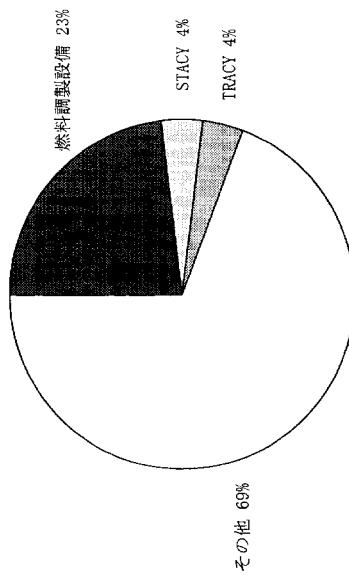


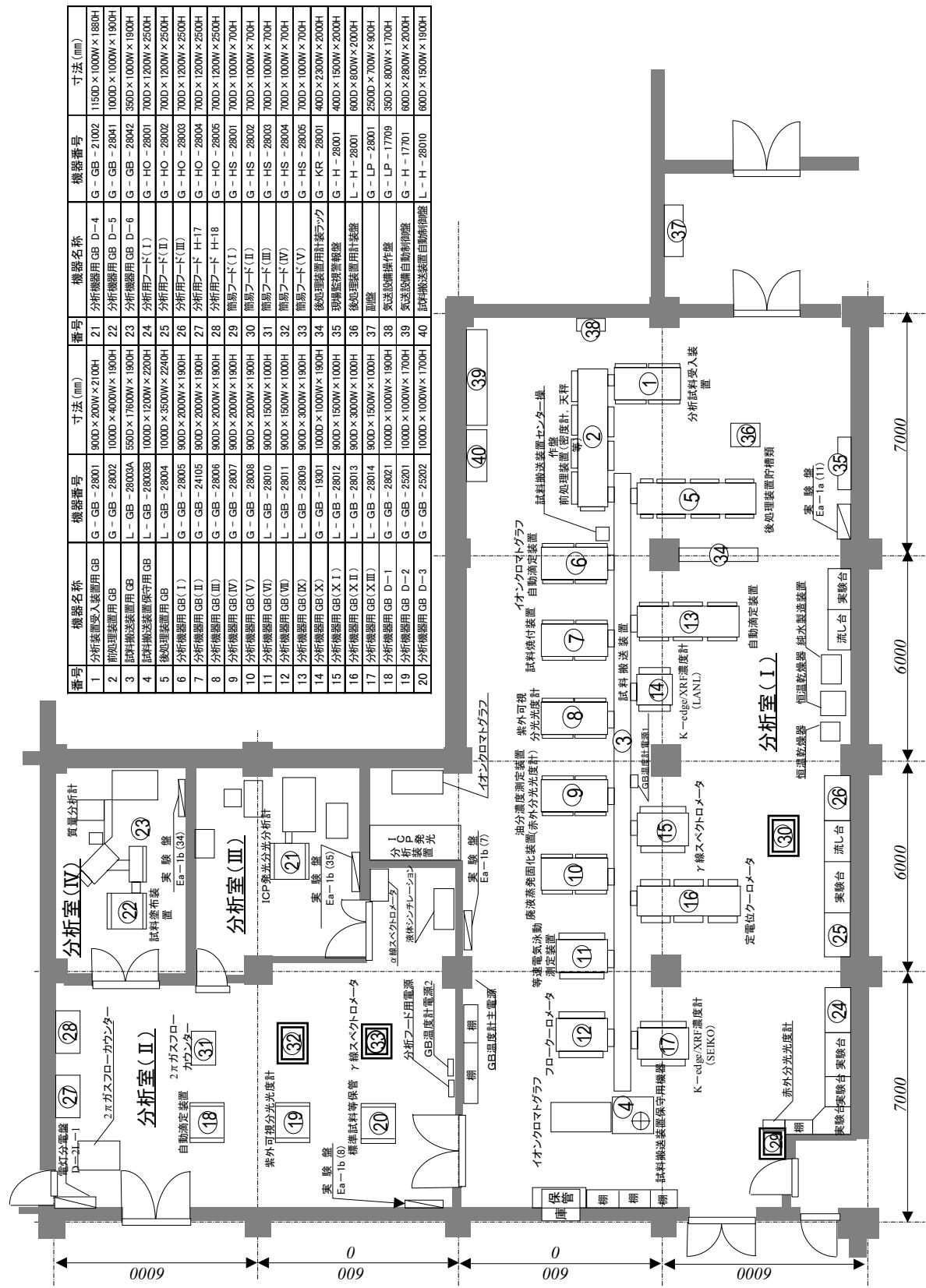
表9 平成18年度気送設備運転状況

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	試薬供給室 (A)	No. 6	3	1	0	1	6	1	0	1	3	0	6	0	22
2	実験室 (III)	No. 0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	7	0	4,840
3	燃取室 (V)	No. 3	3	0	9	9	0	0	3	3	0	6	0	0	7
4		No. 9	1	22	36	8	30	8	3	19	12	0	6	0	1,176
5															3,366
6	TRACY	No. 20	10	4	8	4	6	4	8	8	2	0	0	5	14,790
7	STACY	No. 10	0	15	14	19	11	12	15	12	7	0	0	5	16,048
8	燃取付属室 (VI)	No. 7	10	0	0	9	12	0	12	13	6	0	7	0	110
	月間運転回数		27	42	67	50	65	25	38	56	33	0	32	10	27,720
															4,140
															72,080

表10 平成18年度固体廃棄物引渡量

種類	α			$\beta \cdot \gamma$			合計
	5月22日	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	合計	
可燃物	24	58	47	56	31	216	
不燃物	13	2*	0	0	0	15	
フィルタ	0	10	0	0	0	10	
金属	8	0	0	0	0	8	
ガラス	2	0	0	0	0	2	
固化体	1	0	0	0	0	1	
樹脂	1	0	0	0	0	1	
合計	49	70	47	56	31	253	

* 200L ドラム缶に封入して引き渡した。



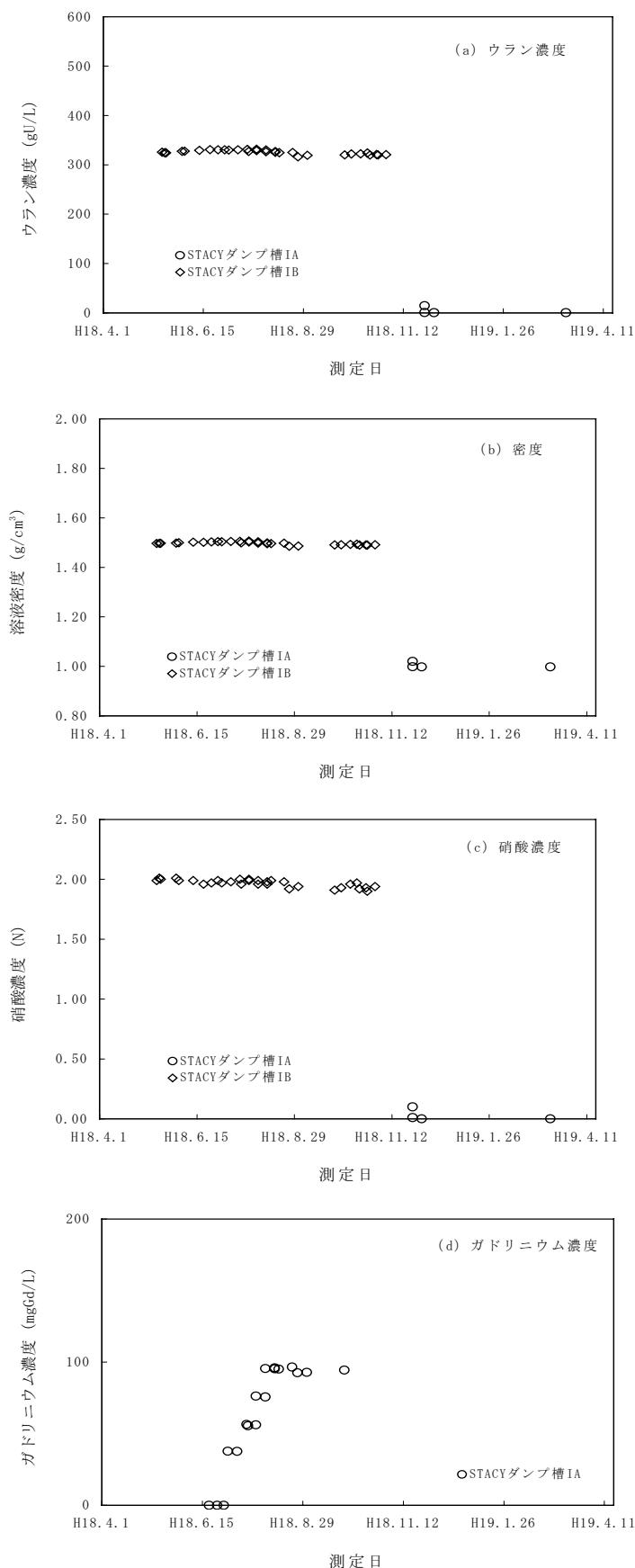


図 2 STACY 燃料の分析結果

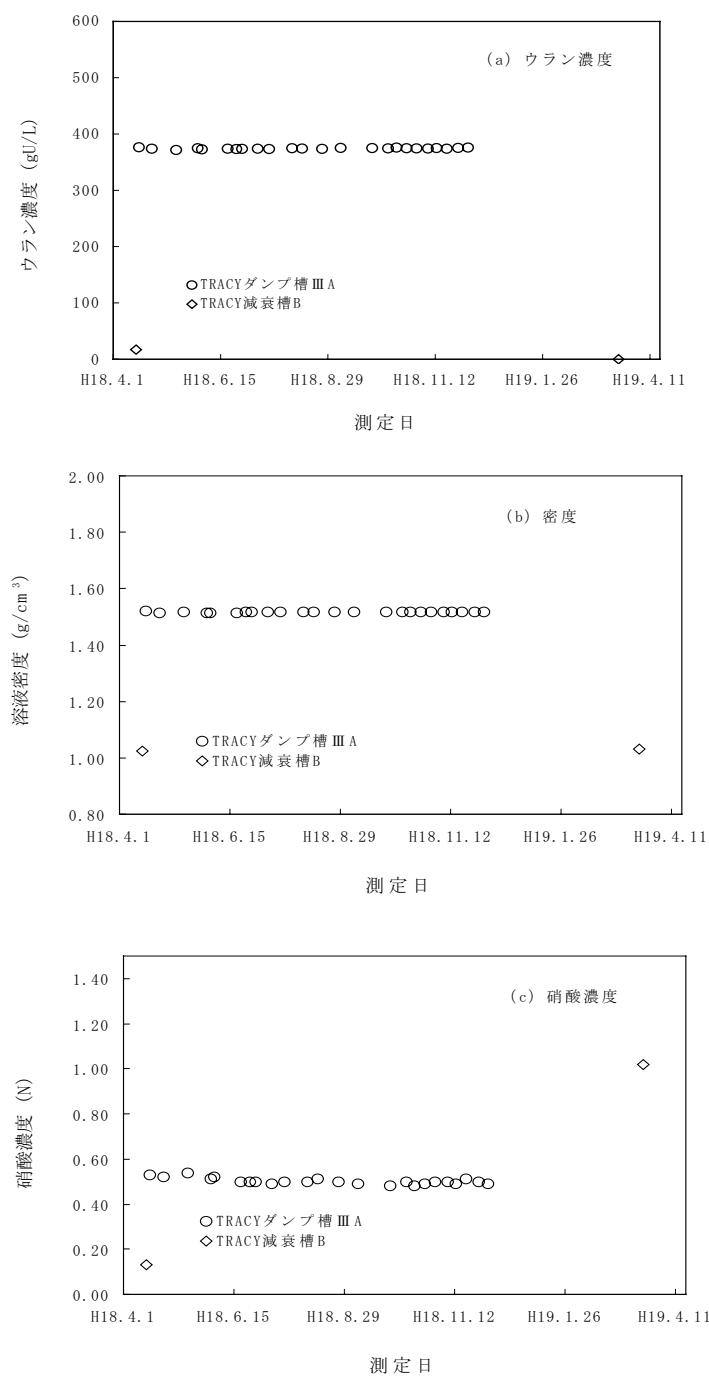


図 3 TRACY 燃料の分析結果

作業用ワークシート		ワークシート5 IAEA吸去用重量測定					
ワークシート1 天秤検査結果		ワークシート6 NMCC希釈用重量測定					
検査実施日	実施者	バイアルシリアルNo	風袋重量	試料+風袋	試料重量	前処理GB内天秤で測定	
		1					
		2					
		3					
		4					
		5					
		6					
		Step 5で記載					
		Step 6で記載					
ワークシート2 空バイアルチェック		1次希釈データ					
		容器ID					
		試料分取 (g)					
		希釈後重量 (g)					
ワークシート3 IAEA用密度測定		2次希釈データ					
		容器ID					
		試料分取 (g)					
		希釈後重量 (g)					
ワークシート4 NMCC用密度測定		1段目希釈率					
		2段目希釈率					
		合計希釈率					
ワークシート7		スパイクID					
		希釈液分取 (g)					
		溶離液受け容器ID					
		記入					
ワークシート8 水密度測定		1					
		2					
		3					
ワークシート9 IAEA申告密度		2～3は複数回実行時に					
		平均重量 (g)					
		ピッセト設定容量 (μL)					
		水測定結果 (5回)					
		平均重量 (g)					
		ピッセト設定容量 (μL)					
		ウラン試料測定結果 (3回)					
ワークシート10 密度測定結果		g/cm^3					
		乾燥空気密度測定					
		純水密度測定					
		試料密度測定1					
		試料密度測定2					
		試料密度測定3					
		試料密度測定4					

図4 作業用ワークシート

Worksheet (WS) for DA Sampling

Manual input
Measured
Calculated

WS1 Balance Check

Vial number	<input type="text"/>	
Weight (Inspector declared)	<input type="text"/>	Difference
Measured weight (H-17)	<input type="text"/>	←Pre-measurement
Measured weight (GB)	<input type="text"/>	←Balance in GB: used for WS2 & WS3

WS2 Density Measurement

Set Volume (Pipet) ($\mu\ell$)	<input type="text"/>	1m ℓ pipetting
Measured weight of pipetted water (5 times) (g)	<input type="text"/> <input type="text"/> <input type="text"/> <input type="text"/> <input type="text"/>	Known Density at 25°C 0.99704 g/cm ³
W.average (g)	<input type="text"/>	
Calculated Pipet volume ($\mu\ell$)	<input type="text"/>	= W.Average / 0.99704
Measured weight of Sampled solution (g)	<input type="text"/> <input type="text"/> <input type="text"/> <input type="text"/> <input type="text"/>	1m ℓ pipeting
S.average (g)	<input type="text"/>	
Density (g/cm ³)	<input type="text"/>	= S.Average / Calc.Pipet.Vol

WS3 Shipping Sample Data (weight : g)

	Vial number	Tare	Gross	Net	
1	<input type="text"/>	<input type="text"/>	<input type="text"/>	<input type="text"/>	0.5m ℓ pepeting for each vial
2	<input type="text"/>	<input type="text"/>	<input type="text"/>	<input type="text"/>	
3	<input type="text"/>	<input type="text"/>	<input type="text"/>	<input type="text"/>	
4	<input type="text"/>	<input type="text"/>	<input type="text"/>	<input type="text"/>	
5	<input type="text"/>	<input type="text"/>	<input type="text"/>	<input type="text"/>	
6	<input type="text"/>	<input type="text"/>	<input type="text"/>	<input type="text"/>	Red for shipping

IAEA

JS GO

Date

Operator

図5 IAEA用ワークシート

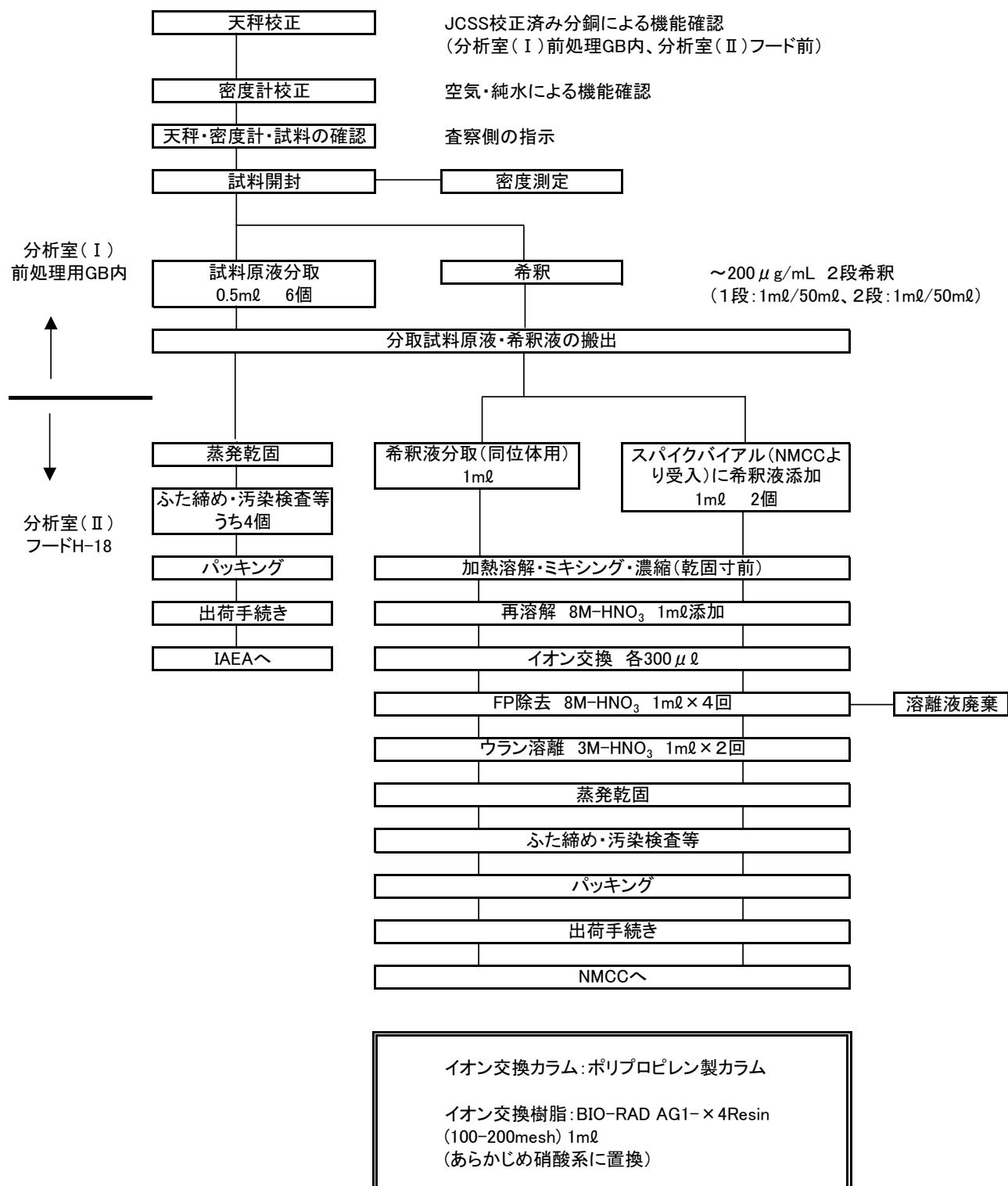


図6 収去試料処理手順

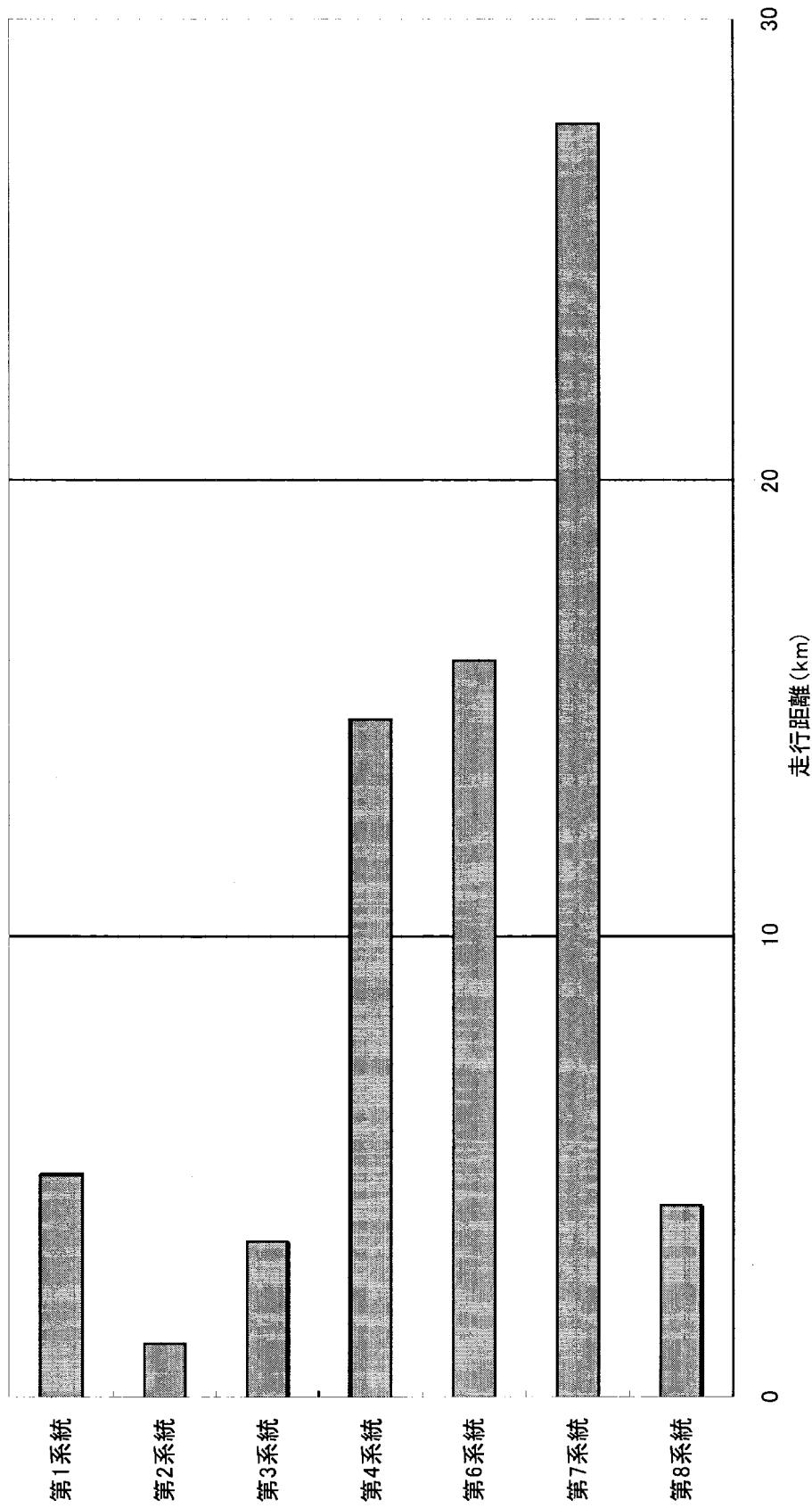


図7 気送設備系統毎の気送子走行距離

付録1 MIBK 抽出-アルセナゾⅢ発色法による微量ウラン定量法

1. 方法の概要

本法は、試料を分取し加熱、蒸発乾固する。放冷後、硝酸で溶解し 0.3N 硝酸酸性に調整し、これに硝酸アンモニウムを加え、メチルイソブチルケトン(MIBK)でウランを抽出する。ウランを抽出した有機相を分取し、アルセナゾⅢ溶液を加え、2-n-ブトキシエタノール溶液で定容する。生成したアルセナゾ-ウラン錯体の 660nm 近傍における吸光度を測定し、検量線からウラン濃度を定量するものである。

本法は、従来のアルセナゾⅢ発色法で妨害となる希土類元素、カルシウム及びジルコニウム等の共存は影響しない。

2. 適応範囲

ウラン 3μg から 180μg 含有する水相試料に適応できる。含有するウラン量が 180μg を越える場合は、分取または希釈操作等で調整する。

3. 装置

- (1) 島津製作所株製 紫外可視分光光度計 UV-1600
- (2) ガラスセル 10mm

4. 試薬及び調整方法

- (1) 0.3N 硝酸
- (2) 硝酸アンモニウム
- (3) メチルイソブチルケトン
- (4) 0.125%アルセナゾⅢ溶液

アルセナゾⅢ(C22H18As2N4O14S2)試薬 0.031g を秤取り、水で溶解し 25mℓ とする。

- (5) 2-n-ブトキシエタノール
- (6) ウラン標準溶液(20mg/g)

金属ウラン標準試料 (JAERI-U4) 約 2g を硝酸 (1+1) に浸し、5~10 分間加温して表面酸化物を除き金属光沢を出す。水、ついでアセトンで洗浄、脱水後、風乾しシリカゲル入りデシケータ中で 30 分間乾燥する。酸化被膜を除いた金属ウラン片の重量を正しく秤量し、溶解用ビーカーに移して硝酸(1+1) 10mℓ を加えて加熱溶解する。溶解した後に全液量が 100mℓ 程度になるように水で希釈し秤量する。

秤量後、試薬保存瓶等に移し入れ保存する。

(6)-1 ウラン標準溶液 ($200 \mu \text{g/g}$)

ウラン標準溶液 (20mg/g) 約 1ml を重量ベースで採取し、硝酸約 1ml と純水約 99ml を重量ベースで加え攪拌する。

(6)-2 検量線用ウラン標準溶液

ウラン標準溶液 ($200 \mu \text{g/g}$) から 2.5ml 、 5ml 、 25ml 及び 45ml を段階的になるように、別々の共栓付きフラスコに重量ベースで分取し、それぞれトータル重量が 100g となるように純水を加え希釈する。ここで調製する検量線用ウラン標準溶液のウラン濃度は、5、10、50、 $90 \mu \text{g/g}$ である。

5. 分析操作

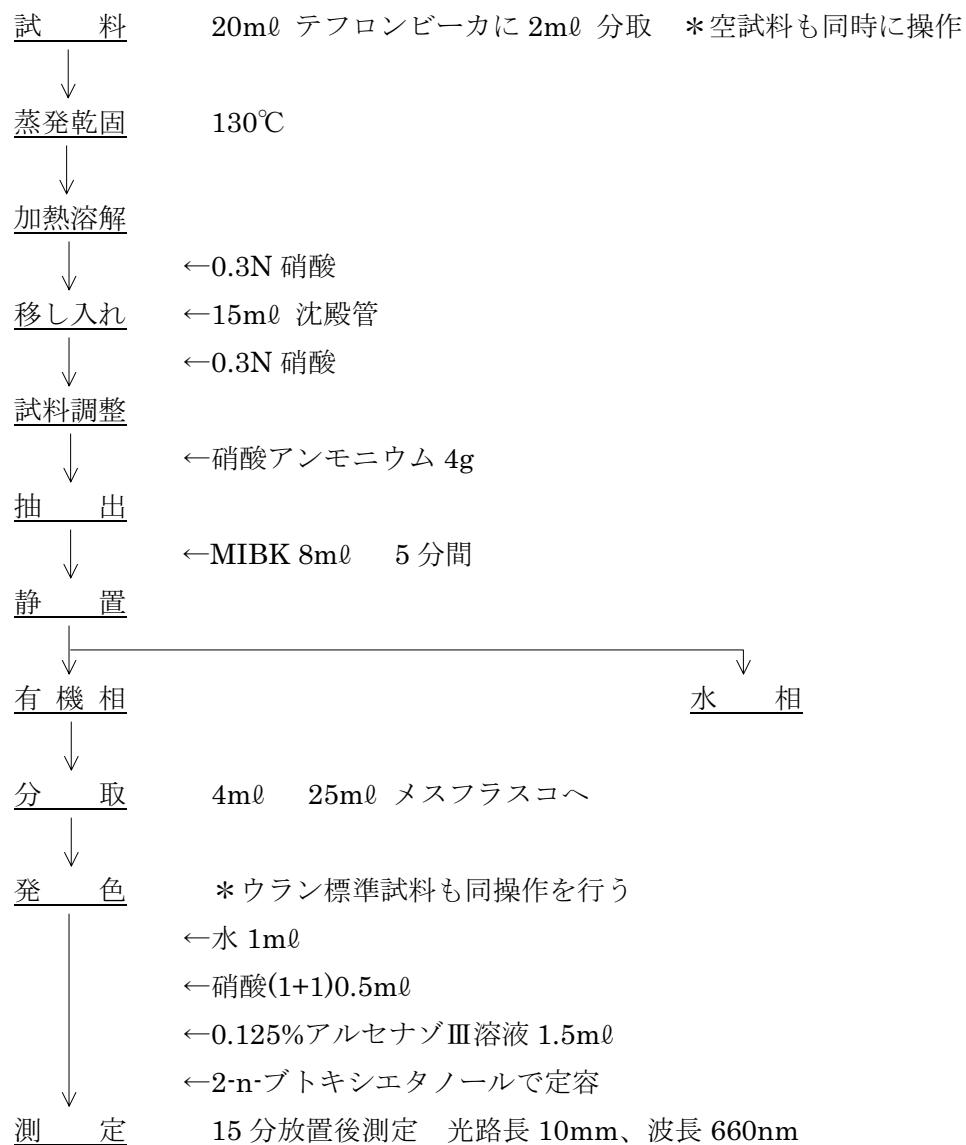
5.1 操作手順

- (1) 試料 2ml を 20ml テフロンビーカに分取する。
- (2) 130°Cに設定したホットプレート上で、加熱濃縮する。
- (3) 蒸発乾固した試料を 0.3N 硝酸 1ml で加熱溶解する。
- (4) 溶解した試料を 15ml 沈殿管に移し入れ、0.3N 硝酸 1ml で洗い込む。
- (5) 硝酸アンモニウム 4g を沈殿管に加える。
- (6) MIBK 8ml を加え、5 分間振り混ぜる。
- (7) 静置後、有機相 4ml を 25ml メスフラスコに分取する。
- (8) 水 1 ml を加える。
- (9) 硝酸(1+1)0.5ml を加える。
- (10) 0.125%アルセナゾⅢ溶液を 1.5ml 加える。
- (11) 2-n-ブトキシエタノールで 25ml に定容する。
- (12) 15 分放置した後、660nm 近傍の吸光度を測定する。

5.2 検量線

(6)-2 で調整したウラン標準溶液をメスフラスコ(25ml)にそれぞれ秤取り、操作手順(8)～(12)に従い、ウラン (VI) の量と吸光度の関係線を作成し検量線とする。

6. 操作フロー



7. 計算

試料溶液中のウラン濃度は次式から算出する。

$$\text{ウラン濃度} (\mu\text{g}/\text{m}\ell) = (\text{試料溶液の吸光度}) \times F / \text{試料分取量} (\text{m}\ell)$$

F:検量線から求めた吸光度当たりのウラン量(μg)

試料分取量は、はじめの試料分取量に(4/8)を乗することになる。

8. 備考

- (1) 測定波長には、その都度調製する標準試料のスペクトルを調べ、最大吸収がある波長を用いる。

付録 2 MIBK 抽出－アルセナゾⅢ発色法による微量ウラン定量法の検討

1. 概要

これまで NUCEF における工程管理分析を目的とした微量ウランの定量には、試料に直接アルセナゾⅢ溶液を加え、ウラン・アルセナゾ錯体を形成させ、2-n-ブトキシエタノールで定容後、660nm 近傍の吸光度を測定するアルセナゾⅢ発色吸光光度法を採用している。しかし本法は、試料に共存する希土類元素、カルシウム、ジルコニウム等の妨害を受けることが報告されており、希土類元素等を含む試料への適用は難しい。

STACY で平成 17 年から平成 18 年にかけて行われた臨界実験に使用した、模擬 FP 及び中性子毒物を添加した硝酸ウラニル溶液燃料の精製に伴い、希土類元素等を含む微量ウラン濃度分析依頼が予想される。今回は簡便で迅速な分析が可能であり高感度な従来法アルセナゾⅢ発色吸光光度法を応用した分析法を検討した。

分析法の概要は、水相試料を希薄な硝酸酸性に調整し、塩析剤として硝酸アンモニウム溶液を加え、メチルイソブチルケトン(MIBK)でウランを抽出する。抽出した有機相にアルセナゾⅢ溶液を加え、ウラン・アルセナゾ錯体を生成させて 2-n-ブトキシエタノールで定容後、660nm 近傍の吸光度を測定しウランを定量するものである。

本報告では、希土類元素等含有ウラン溶液中のウランの簡便かつ迅速な定量法を確立することを目的として、MIBK 抽出－アルセナゾⅢ発色法を検討した結果について述べる。

2. 装置及び試薬

2.1 装置

- (1)島津製作所㈱製 紫外可視分光光度計 UV-1600
- (2)ガラスまたは石英セル 10mm
- (3)ホットプレート
- (4)振とう機

2.2 試薬

- (1) アルセナゾⅢ溶液(0.125%)

アルセナゾⅢ0.1g を水 100mℓ に溶解し、1N 硝酸 50mℓ を加え 2-n-ブトキシエタノールで 1ℓ に定容する。

- (2) メチルイソブチルケトン(MIBK)

一般に市販されている特級試薬を用いる。

- (3) 2-n-ブトキシエタノール

- (4) ウラン標準溶液(20mg/g)

金属ウラン標準試料 (JAERI-U4) 約 2g を硝酸 (1+1) に浸し、5~10 分間加温して表面酸化物を除き金属光沢を出す。水、ついでアセトンで洗った後、風乾し、シリ

カゲル入りデシケータ中で 30 分間乾燥する。酸化被膜を除いた金属ウラン片の重量を正しく秤量し、溶解用ビーカーに移して硝酸(1+1) 10mℓ を加えて加熱溶解する。溶解した後に全液量が 100mℓ 程度になるように水で希釈し秤量する。秤量後、試薬保存瓶等に移し入れて保存する。

(4)-1 ウラン標準溶液 (200 μ g/g)

ウラン標準溶液 (20mg/g) 約 1mℓ を重量ベースで採取し、硝酸約 1mℓ と純水約 99mℓ を重量ベースで加え、攪拌して調製する。

(4)-2 検量線用ウラン標準溶液

ウラン標準溶液 (200 μ g/g) を共栓付きフラスコに 2.5、5、25、45mℓ を重量ベースで分取し、それぞれ全重量が 100g となるように純水を加え希釈する。ここで調製する検量線用ウラン標準溶液のウラン濃度は、5、10、50、90 μ g/g である。

(5)模擬 FP、中性子毒物試料

原子吸光用標準溶液 (Sm、Cs、Eu、Rh、Gd) を希釈して、それぞれ 40、100、200 μ g/ℓ を調製する。

3. 分析操作

分析操作は以下の通りである。

- (1) 試料を分取し、ホットプレート上で加熱濃縮乾固する。
- (2) 硝酸(0.1、0.3、1.0、2.0、4.0N)1mℓ で溶解する。
- (3) 溶解した試料を硝酸(0.1、0.3、1.0、2.0、4.0N)1mℓ で遠沈管に移し入れる。
- (4) 硝酸アンモニウムを（水相容積に対して 25、30、70、80、90%になるように）加える。
- (5) MIBK を加え、激しく振り混ぜる。
- (6) 静置後、有機相を分取し、NUCEF 分析マニュアル-基本分析マニュアル-¹²⁾に記載される USO3 法に従って操作、測定する。

4. 実験及び結果

4.1 吸収曲線

ウラン・アルセナゾ錯体の吸収曲線を確認するために、ウラン 90 μ g を 2 試料秤取り、1 試料は水 1mℓ 、硝酸(1+1)0.5mℓ 、0.125%アルセナゾⅢ溶液 1.5mℓ を加え発色させ、2-n-ブトキシエタノールで 25mℓ に定容した。もう一方は MIBK8mℓ に抽出し、MIBK 相から 4mℓ 分取し同様に発色操作を行い、それぞれの吸収曲線を求めた。その結果は、図 1 に示すように直接発色時の最大吸収波長は 651.6nm(左)、MIBK 抽出液発色時の最大吸収波長は 650.6nm(右)であった。またスペクトルからは、特異的なカーブは認められず、発色時の MIBK による影響は、殆どないものと思われる。従って直接発色した試料(標準試料)から得られる最大吸収波長で定量することとした。

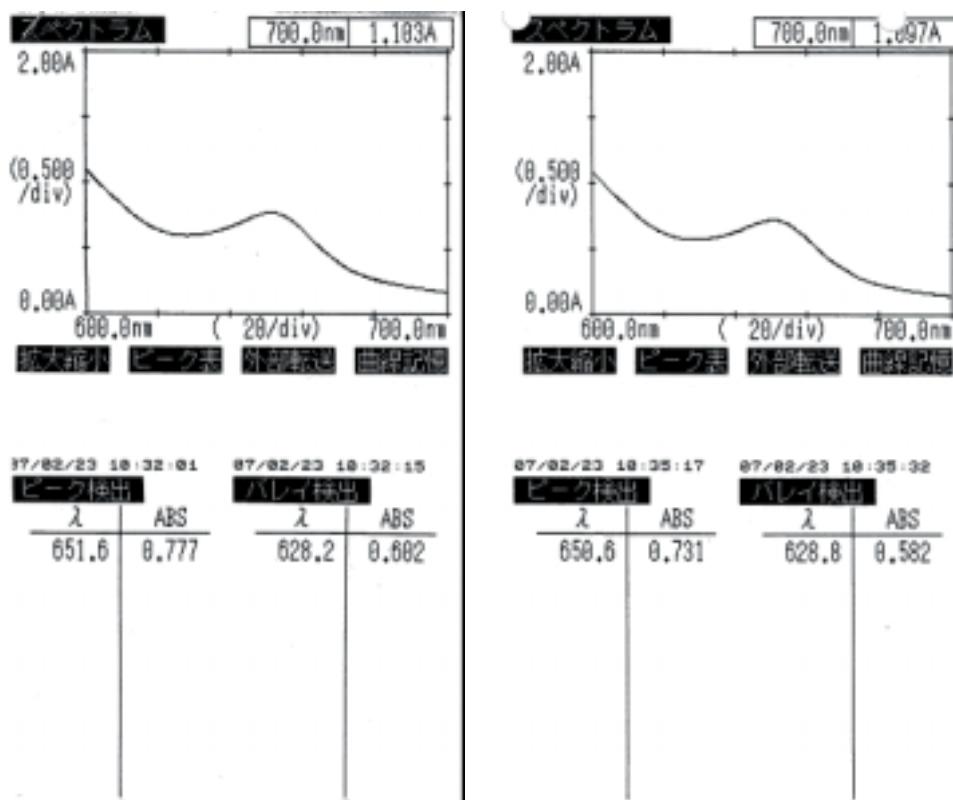


図 1 アルセナゾウラン錯体の吸収曲線

4.2 模擬 FP 及び中性子毒物とアルセナゾ III の発色挙動

模擬 FP 及び中性子毒物の発色挙動を確認するために、各元素 40、200 μg (ウランについては 10、100 μg)を含む模擬試料を発色し吸光度を測定した。その結果は、表 1 に示すようにアルセナゾ III と希土類元素の発色反応は顕著であり、希土類元素共存下でのウランの定量は難しい。なお、Cs、Rh については、従来法におけるブランク試料と同等の吸光度であった。

表 1 アルセナゾⅢ発色時の吸光度

	添加量(μg)	ABS ^{*1}	濃度 ^{*2} (μg/ml)	備考
Blank	0	0.074	—	
Sm	40	1.017	—	
	200	1.845	—	懸濁物あり
Cs	40	0.079	—	
	200	0.076	—	
Eu	40	1.026	—	
	200	1.823	—	懸濁物あり
Rh	40	0.078	—	
	200	0.075	—	
Gd	40	0.958	—	
	200	1.995	—	懸濁物あり
U	12	0.162	11.57	
	99	0.850	99.226	

*1 651.4nm における吸光度

*2 濃度換算は、U(VI)の検量線を用いて算出した。

4.3 抽出試験

4.3.1 MIBK によるウランの抽出条件

MIBK によるウラン抽出では、硝酸濃度、抽出時間及び塩析剤である硝酸アンモニウム濃度が重要な要素になる。ウラン抽出における最適な条件を確認するために抽出時間を 2 分間として、硝酸濃度、硝酸アンモニウムの添加量をそれぞれ変えて「3. 分析操作」によりウラン濃度を求め抽出率を評価した。その結果は表 2 に示すように、硝酸アンモニウム濃度が 30%以下では塩析はほとんどないが、67%以上になると塩析が見られることが分かった（硝酸アンモニウムの添加により硝酸イオンが増大し抽出化学種である硝酸ウラニルの生成が促進したといえる）。硝酸濃度の影響については、高い硝酸濃度の方が抽出率は向上するが、塩析効果がある領域では、低い硝酸濃度の方が、抽出率が向上することを確認した。得られた結果を図 2 に示す。

表 2 塩析剤濃度、硝酸濃度毎の抽出率

抽出時の塩析 剤濃度(%)	硝酸濃度(N)	分配比		抽出百分率 E(%)
		D	E(%)	
25	0.1	0.131	11.571	
	0.3	0.183	15.487	
	1.0	0.250	20.009	
	2.0	0.407	28.905	
	4.0	0.744	42.676	
30	0.1	0.405	28.842	
	0.3	0.436	30.358	
	1.0	0.730	42.188	
	2.0	0.693	40.917	
	4.0	1.158	53.660	
67	0.1	3.422	77.385	
	0.3	2.212	68.863	
	1.0	2.383	70.443	
	2.0	1.746	63.580	
	4.0	3.524	77.895	
79	0.1	7.059	87.592	
	0.3	6.251	86.209	
	1.0	4.621	82.210	
	2.0	3.668	78.578	
	4.0	3.114	75.695	
89	0.1	9.314	90.305	
	0.3	7.656	88.447	
	1.0	5.957	85.626	
	2.0	4.205	80.789	
	4.0	2.762	73.421	

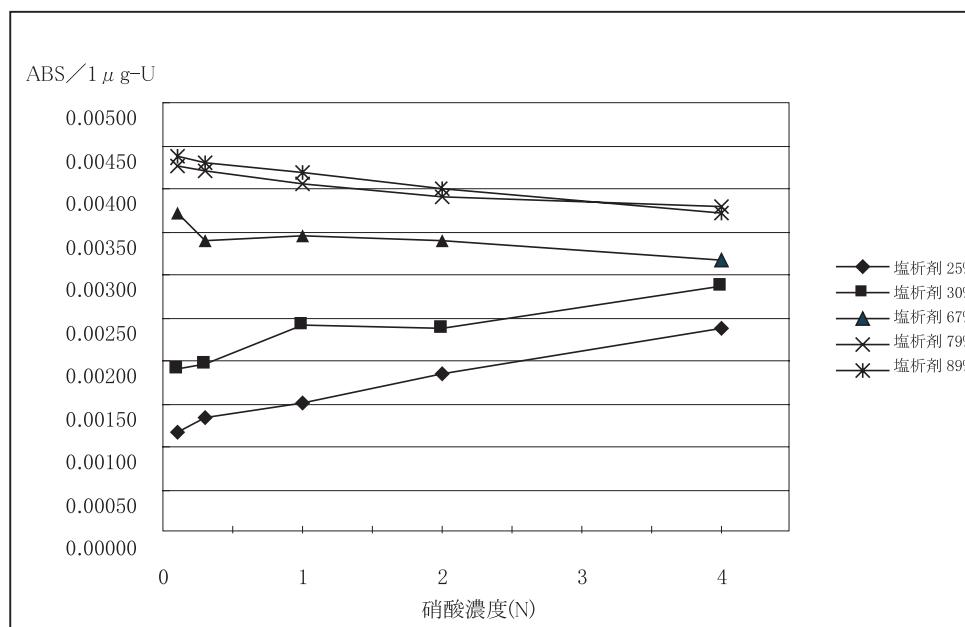


図 2 塩析剤各濃度における硝酸濃度の影響

4.3.2 抽出におけるウランの回収率

4.3.1 の結果をもとに抽出条件を次のように設定した。

- ・抽出時間 5 分間
- ・硝酸濃度 0.3N
- ・塩析剤濃度 90%以上（ほぼ飽和状態）

水相と有機相の体積比 1 : 2 (操作上 4ml : 8ml となる)

本条件による操作では、以下の式により 94%の抽出率が期待できる。

$$\text{分配比 } D \equiv \frac{C_{s,o}}{C_{s,w}} = 7.7$$

$C_{s,o}$: 有機相における溶質の総濃度

$C_{s,w}$: 水相における溶質の総濃度

$$\text{抽出百分率 } E(\%) = \frac{100D}{V_w + \frac{D}{V_o}} = 94$$

V_w : 水相の容積

V_o : 有機相の容積

ウランの回収率を確認するために、本条件で抽出操作を行いウランの定量を行った。その結果は、表3に示すように回収率は約94%(Blank 補正無し)とほぼ満足すべき値であった。従って、以後の検討は、本条件で行うこととした。

表3 抽出におけるウラン回収率

	採取量(μg)	ABS ^{*1}	濃度 ^{*2} (μg/ml)	回収率(%)
Blank	0	0.085	—	
U-1	45	0.402	42.467	94.37
U-2	45	0.410	43.402	96.45

*1 651.2nm における吸光度

*2 濃度換算は、U(VI)の検量線を用いて算出した。

4.3.3 ウランの抽出容量

分析操作における抽出可能なウラン量を確認するために、ウラン 800 μg を 4.3.2 に示す抽出条件で抽出操作を行い、抽出した MIBK 相から 0.5ml (ウラン 50 μg 相当) 分取し測定した。このウラン含有量は、試料を抽出し MIBK 相から 1ml を分取して分析する場合、検量線範囲を超える濃度であるが、回収率は約 94%であり(Blank 補正無し)、実試料分析において予想濃度を上回った場合でも抽出不十分により低値を与え

ることはない。

4.3.4 MIBK による模擬 FP、中性子毒物の抽出挙動

模擬 FP、中性子毒物それぞれの元素 $100 \mu\text{g}$ を含む模擬試料を調製し、4.3.2 に示す抽出条件で抽出操作を行った。抽出した MIBK 相 $4\text{m}\ell$ を分取し、アルセナゾⅢを加えて発色させた後、 660nm 近傍の吸光度を測定した。その結果は表 4 に示すように、従来法におけるブランク試料と同等の吸光度であり、この条件において模擬 FP、毒物は MIBK によって抽出されないことを確認した。しかし従来法と比較して、ブランク値が僅かに高くなる傾向にあった。

表 4 MIBK による抽出液の吸光度

	添加量(μg)	ABS ^{*1}
Blank	0	0.085
Sm	100	0.085
Cs	100	0.084
Eu	100	0.084
Rh	100	0.084
Gd	100	0.085

*1 651.2nm における吸光度

4.4 アルセナゾⅢ発色試験

4.4.1 2-n-ブトキシエタノールによる水と MIBK の相互的な溶解

2-n-ブトキシエタノールで MIBK 相と水相が均一な溶液になる範囲を検討した。

- 1) 2-n-ブトキシエタノール $20\text{m}\ell$ に MIBK を $1\text{m}\ell$ ずつ添加して調べた結果、 $20\text{m}\ell$ までの MIBK が溶解することを確認した。
- 2) 2-n-ブトキシエタノール $20\text{m}\ell$ と MIBK $20\text{m}\ell$ の混合溶液に水を $1\text{m}\ell$ ずつ添加した結果、水 $4\text{m}\ell$ までは、相互的に溶解できることを確認した。但し水 $5\text{m}\ell$ 添加後から白濁が認められた。

4.4.2 アルセナゾⅢの添加量

発色操作におけるアルセナゾⅢの適切な添加量を確認するために、ウラン $90 \mu\text{g}$ に MIBK $4\text{m}\ell$ 、2-n-ブトキシエタノール $10\text{m}\ell$ 、水 $2.5\sim 0\text{m}\ell$ 及び硝酸(1+1) $0.5\text{m}\ell$ を加え 0.125% アルセナゾⅢ溶液を $0.5\sim 3\text{m}\ell$ 添加し発色した。アルセナゾⅢの添加量に対応して水の添加量を $2.5\sim 0\text{m}\ell$ 加えた後、ブチルセルゾルプで $25\text{m}\ell$ に定容し波長 660nm 近傍の吸光度を測定した。その結果は、図 3 に示すように $90 \mu\text{g}$ のウランに対して 0.125% アルセナゾⅢ添加量 $1.5\text{m}\ell$ 以上で、吸光度が安定傾向になることを確認した。

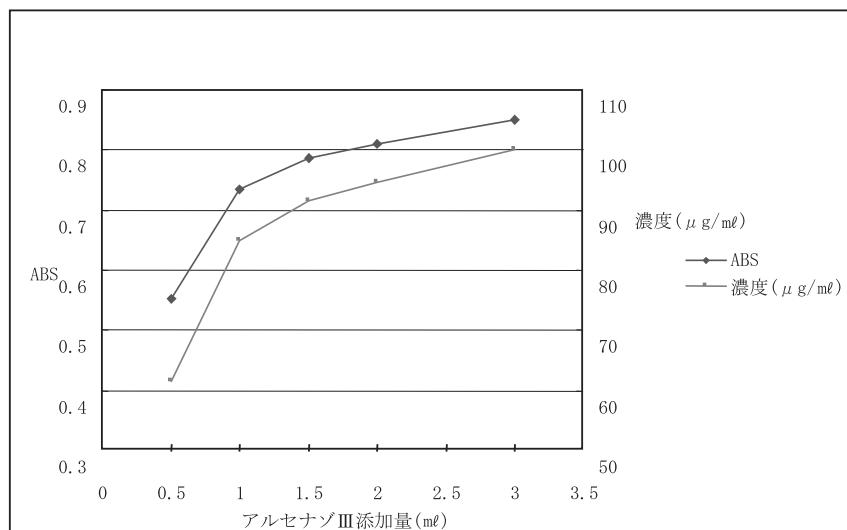


図3 アルセナゾⅢ添加量と吸光度の関係

4.4.3 空試験

検量線法による定量では、試薬ブランク値は低い方が望ましい。本法では MIBK を用いてウラン抽出し、その抽出液が発色試料となる。発色までの操作で使用する試薬の影響を確認するために塩析剤と硝酸の空試験を行った。その結果は、図 4 に示すように塩析剤濃度 25% と 30%においては特別な傾向はなく、抽出操作によって塩析剤が MIBK 相に移行しないものと考えられる。また発色時の硝酸の添加量については、図 5 に示すように 0.05N で吸光度は急激に低くなり、更に硝酸濃度が高くなると徐々に吸光度が低くなる傾向にあった。

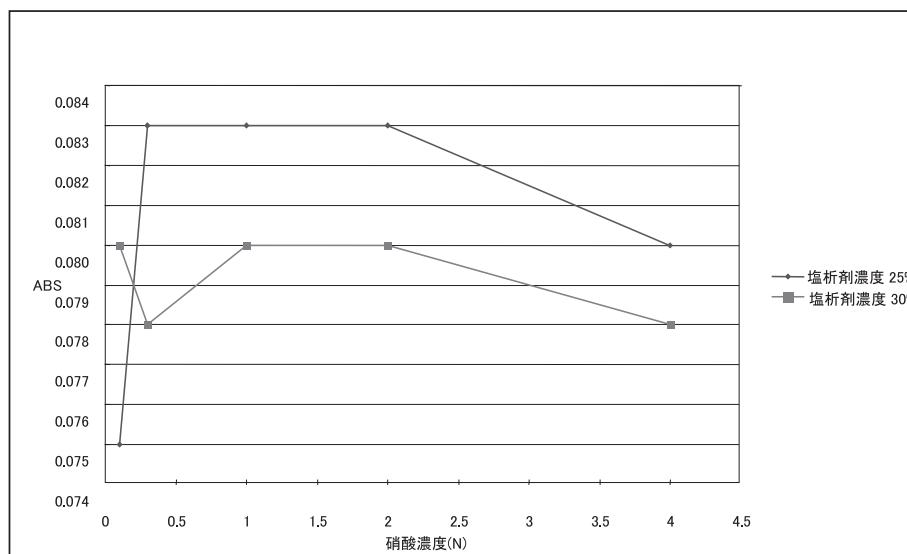


図4 各硝酸濃度における MIBK 抽出液の吸光度

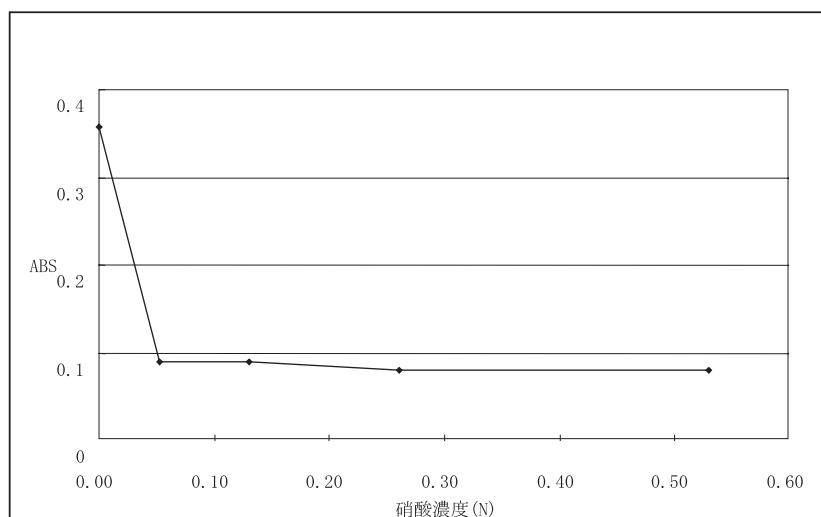


図 5 発色時の硝酸濃度の影響

4.4.4 アルセナゾⅢ発色時の MIBK の影響

ウラン $180\text{ }\mu\text{g}$ を含む水溶液を MIBK 用いて抽出し、抽出した MIBK 相から 1 、 2 、 $4\text{m}\ell$ を分取し、それぞれにアルセナゾⅢ溶液を添加し発色させウランを定量した。定量結果から回収率を求め、MIBK の影響を確認した。その結果は、表 5 に示すように分取量 $1\sim 4\text{m}\ell$ で 94% 以上のウラン回収率を得た(Blank 補正無し)。このことは実試料分析において、抽出後の MIBK 相の分取操作により濃度調整が可能であるといえる。

表 5 MIBK 相の分取量におけるウラン回収率

分取量 ($\text{m}\ell$)	理論値 (μg)	測定値 (μg)	回収率 (%)
1	22.2	20.9	94.1
2	37.9	36.0	95.0
4	89.1	86.3	96.9

4.5 分析精度の確認試験

4.5.1 繰り返し精度の確認

ウラン $90\text{ }\mu\text{g}$ を含む水溶液を MIBK で抽出し、MIBK 相 $4\text{m}\ell$ を分取し、アルセナゾⅢ溶液を添加し発色させウランを定量した。この操作を 5 回行い、定量値の繰り返し精度を確認した。その結果は、表 6 に示すように標準偏差 0.34 、変動係数 0.39% であった。

表 6 MIBK 抽出による繰り返し精度

試料 No	理論値 (μg)	測定値 (μg)	回収率 (%)
1	89.3	85.5	95.7
2	89.4	85.8	96.0
3	89.0	85.2	95.7
4	88.9	85.3	96.0
5	89.2	86.0	96.4
	平均値	85.6	
	標準偏差	0.34	
	変動係数	0.39	

4.5.2 定量下限値領域での定量

精製運転において、要求される分析精度は誤差10%以内、定量下限は3mg/lである。この領域(濃度)における定量性を検討した。その結果は、表7に示すようにウラン2.5~5.0 μg の低濃度では、10~30%高めに定量されることが分かった。これは、図6に示すように僅かなBlank信号によるものと考えられ、空試料を同様に操作し補正することとした。補正した結果は表8に示すようにウラン2.5~45 μg の範囲で回収率約90%であった。

表7 低濃度における分析結果

試料 No	理論値 (μg)	測定値 (μg)	回収率 (%)
1	2.52	3.26	129.3
2	5.11	5.67	111.1
3	2.52	3.10	123.1
4	5.09	5.33	104.7

表8 Blank補正前後の回収率

試料 No	理論値 (μg)	<Blank補正前>		<Blank補正後>	
		補正 ABS	測定値 (μg)	回収率 (%)	測定値 (μg)
Blank	0.005				
1	2.53	0.101	0.096	3.14	124.2
2	5.11	0.118	0.113	5.36	104.9
3	25.47	0.264	0.259	24.36	95.6
4	45.95	0.413	0.408	43.81	95.4

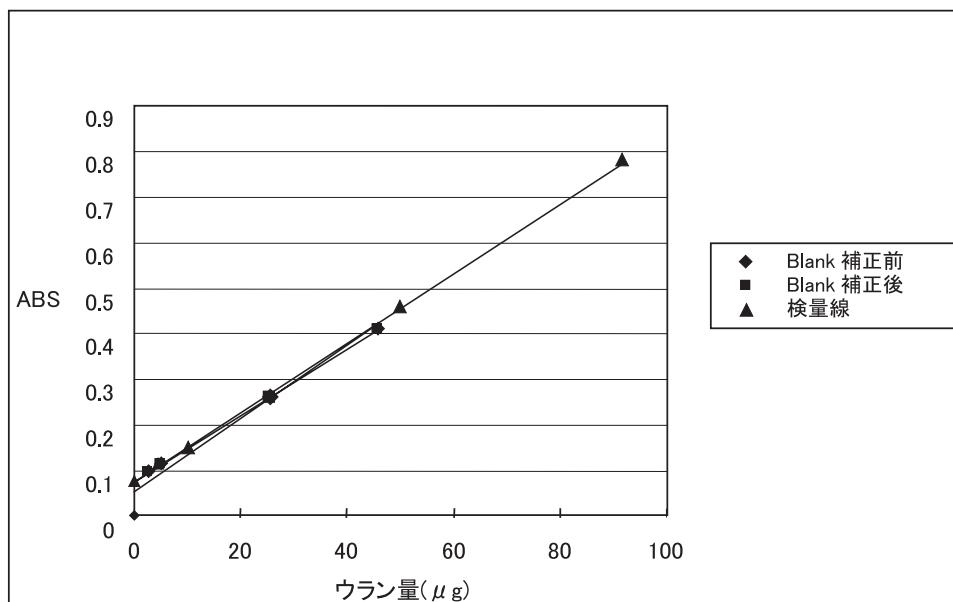


図 6 Blank 補正前後の吸光度

5. 分析結果

5.1 硝酸ウラン溶液燃料の分析結果

燃料調製設備から受け入れた依頼分析試料 F4-56 (U 溶液受槽 A) について、従来法と本法での比較分析を行った。その結果は、表 9 に示すように絶対検量線法との比較では約 10%、標準添加法との比較では約 5% の負の差があった。

表 9 ウラン濃度分析結果

		ウラン濃度 (mg/l)	(1)法との差 (%)	(2)法との差 (%)
従来法	絶対検量線法(1)	910	—	—
	標準添加法(2)	870	—	—
	本法(MIBK 抽出)	830	9.6	4.8

5.2 抽残液模擬試料の分析結果

模擬 FP 臨界実験、可溶性中性子毒物臨界実験に用いた溶液燃料の精製運転を模擬した模擬抽残液を調製した。模擬抽残液組成を表 10 に示す (U 以外の元素については、予想濃度の 60~90 倍とした)。調製した模擬抽残液について、本法により 3 回繰り返し分析を行った。その結果は、表 11 に示すように回収率は 90% 以上であった。

表 10 模擬抽残液組成

元素	(mg/l)
U	20
Sm	0.19
Cs	3.80
Rh	0.03
Gd	0.86

表 11 抽残液模擬試料のウラン分析結果

No	理論値 (mg/l)	補正		測定値 (mg/l)	回収率 (%)	<Blank 補正無し>		<Blank 補正有り>	
		ABS	ABS			測定値 (mg/l)	回収率 (%)	測定値 (mg/l)	回収率 (%)
Blank	0	0.004		2.12				0	
1	19.89	0.147	0.143	19.15	96.3	18.026	90.6		
2	19.86	0.148	0.144	19.25	96.9	18.286	92.1		
3	19.83	0.149	0.145	19.66	99.2	18.545	93.5		

6.まとめ

希土類元素等を含む水溶液中のウラン濃度を定量するために MIBK 抽出－アルセナゾⅢ発色吸光光度法について種々検討した結果、次のような知見を得た。

- (1) 水相試料からの MIBK によるウランの抽出は、硝酸濃度が 0.3N 以上、抽出時間 2 分程度で抽出平衡に達する。また塩析剤濃度については、高濃度の方が高い抽出率が得られた。硝酸濃度 0.3N、液量を 2ml とし、塩析剤 4g を添加し MIBK8ml を加え、ウラン抽出を行ったときの回収率は 90%以上であった。
- (2) 発色時の硝酸濃度は、高いほど吸光度が低下するため検量線、試料の硝酸濃度の調整が必要であることが分かった。
- (3) ウランを抽出した MIBK 相の分取量は、測定液量を 25ml とした場合、4ml までは影響がなく、このときの 660nm 近傍におけるモル吸光係数は 3.4×10^4 であった。
- (4) 本法で分析操作を行ったところ再現性、繰り返し精度ともに良好であり、分析誤差 10%以内での定量が可能である。
- (5) 「MIBK 抽出－アルセナゾⅢ発色による水溶液中の微量ウラン定量法」の手順書を作成した。

付録 3 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。分析設備では、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（ΔU）を式(1)で求め、ΔU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。図A2より、平成18年度は自動電位差滴定装置が誤差の範囲内で安定していることが分かる。

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

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を用い、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	標準ウラン溶液U4による二クロム酸カリウム標準溶液の 標定結果			
		標定値	標準偏差 σ_{n-1}	変動係数	計算値との 差
		(N)	(N)	(%)	(%)
H18. 5. 22	No. 5	0.03268	0.00003	0.098	-0.031
H18. 5. 31		0.03269	0.00002	0.050	0.001
H18. 7. 13		0.03265	0.00004	0.120	0.000
H18. 9. 06		0.03270	0.00003	0.078	0.153
H18. 11. 07	No. 4	0.03269	0.00003	0.097	-0.002

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	標準偏差 σ_{n-1}	変動係数
		(N)	(N)	(%)
H18. 5. 17	No. 1	0.09656	0.0001	0.078
H18. 6. 12		0.10383	0.0001	0.058
H18. 7. 18		0.10417	0.0001	0.041
H18. 7. 26		0.10454	0.0001	0.063
H18. 8. 04		0.08854	0.0001	0.030
H18. 8. 25		0.08882	0.0001	0.103
H18. 10. 04		0.08924	0.0001	0.081
H18. 10. 17		0.09672	0.0001	0.147
H18. 10. 30		0.09668	0.0001	0.064
H18. 12. 05		0.09637	0.0002	0.156
H19. 3. 20		0.1056	0.0001	0.019
H18. 4. 06	No. 4	0.09648	0.0001	0.138
H18. 5. 22		0.09994	0.0001	0.056
H18. 6. 16		0.10041	0.0001	0.053
H18. 6. 28		0.09996	0.0001	0.050
H18. 7. 20		0.10021	0.0002	0.162
H18. 8. 30		0.09788	0.0001	0.030
H18. 10. 23		0.09839	0.0002	0.217
H18. 10. 30		0.09865	0.0001	0.041
H18. 12. 04		0.09844	0.0001	0.114

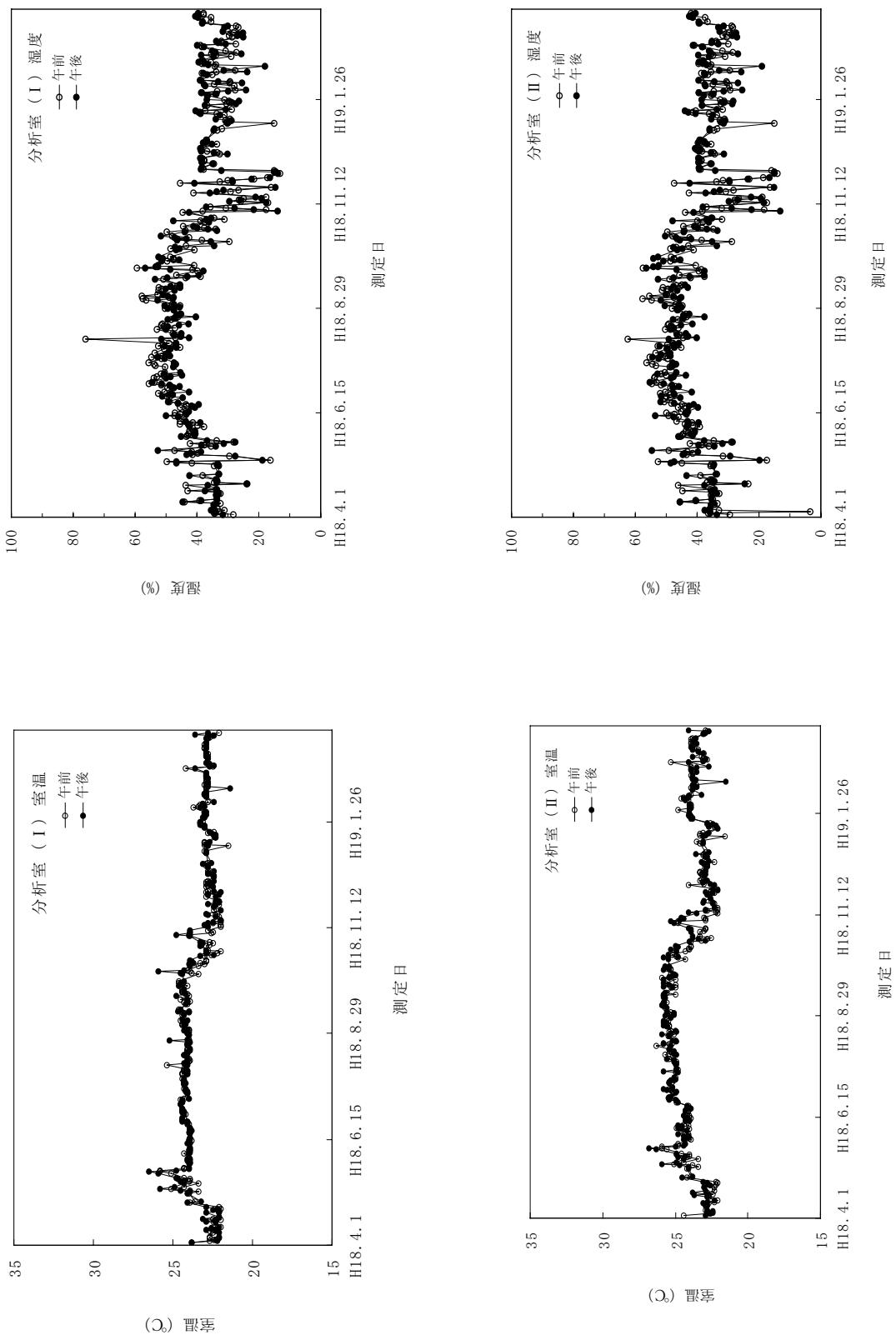
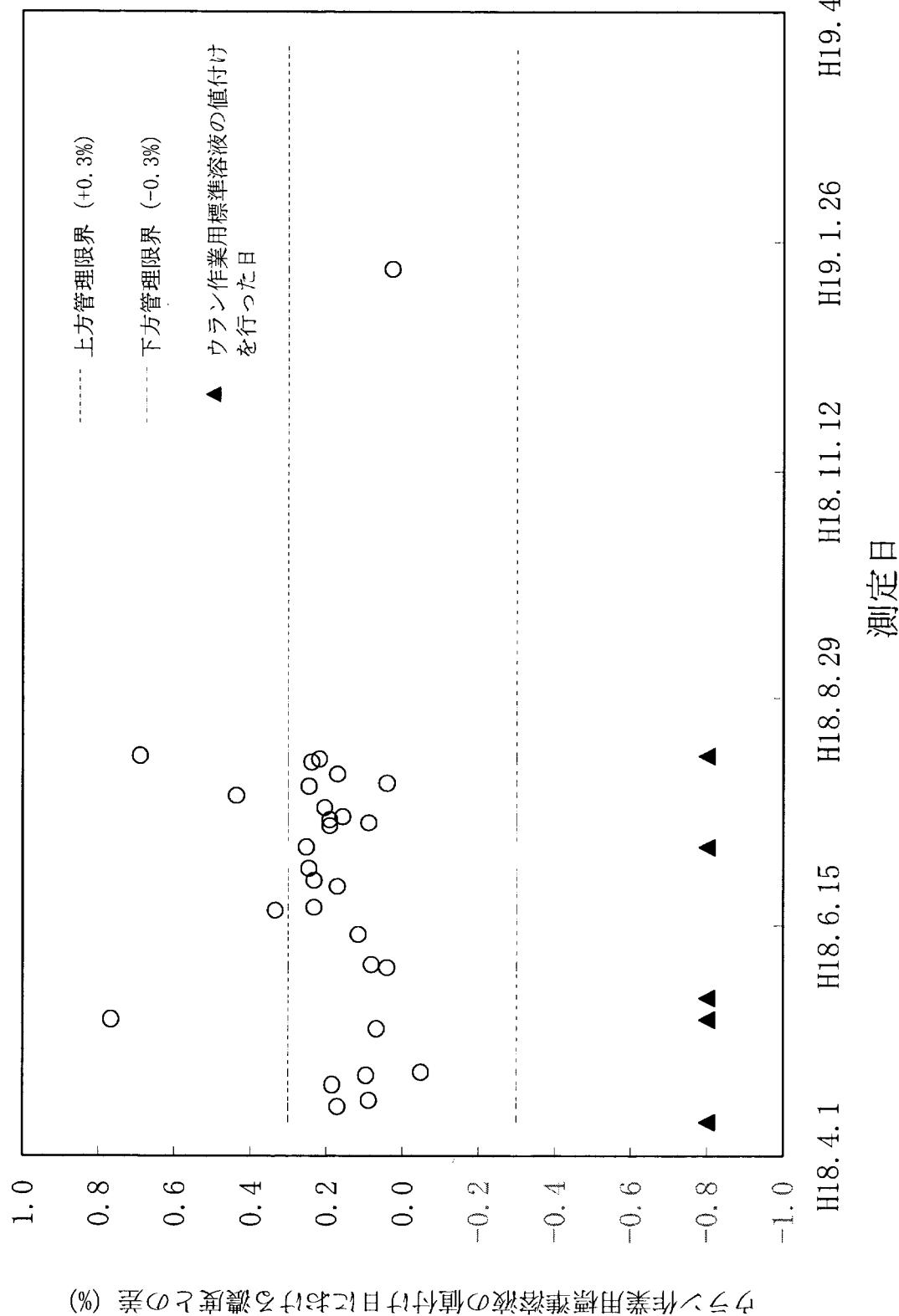


図 A1 分析室 (I) (II) の室温・湿度



図A2 ワラン作業用標準溶液の分析結果

国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度(質量密度)	キログラム毎立方米	kg/m ³
質量体積(比体積)	立法メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
(物質量)の濃度	モル毎立法メートル	mol/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率	(数の)1	1

表3. 固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	他のSI単位による表し方
平面角	ラジアン ^(a)	rad	$m \cdot m^{-1} = 1^{(b)}$
立体角	ステラジアン ^(a)	sr ^(c)	$m^2 \cdot m^{-2} = 1^{(b)}$
周波数	ヘルツ	Hz	s^{-1}
力	ニュートン	N	$N \cdot m$
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m^2
エネルギー, 仕事, 熱量	ジユール	J	$N \cdot m$
工率, 放射束	ワット	W	$N \cdot s$
電荷, 電気量	クーロン	C	$C \cdot A$
電位差(電圧), 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	$N \cdot m^2 \cdot A^{-2}$
コンダクタンス	ジemens	S	A/V
磁束密度	テラス	T	Wb/m^2
インダクタンス	ヘンリ	H	Wb/m^2
セルシウス温度	セルシウス度	°C	K
光強度	ルーメン	lm	$cd \cdot sr^{(c)}$
(放射性核種)の放射能	ベクレル	Bq	$lm \cdot m^2$
吸収線量, 質量エネルギー一分率, カーマ	レイ	Gy	J/kg
線量当量, 周辺線量当量	シーベルト	Sv	J/kg
方向性線量当量, 個人線量当量, 組織線量当量			$m^2 \cdot s^{-2}$

(a)ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なった性質をもつた量を区別するときの組立単位の表し方として利点がある。組立単位を形作るときのいくつかの用例は表4に示されている。

(b)実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号“1”は明記されない。

(c)測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。

(d)この単位は、例としてミリセルシウス度m°CのようにSI接頭語を伴って用いても良い。

表4. 単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa · s	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-1}$
力のモーメント	ニュートンメートル	N · m	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2}$
表面張力	ニューン每メートル	N/m	$kg \cdot m^{-2}$
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	$m \cdot m^{-1} \cdot s^{-1} = s^{-1}$
角加速度	ラジアン毎平方秒	rad/s ²	$m \cdot m^{-1} \cdot s^{-2} = s^{-2}$
熱流密度, 放射照度	ワット每平方メートル	W/m ²	$kg \cdot s^{-3}$
熱容量, エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
質量熱容量(比熱容量), 質量エントロピー	ジュール每キログラム	J/(kg · K)	$m^2 \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
熱量当量, エネルギー(比エネルギー)	モル毎ケルビン	J/mol	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot mol^{-1}$
熱伝導率	ワット每メートル毎ケルビン	W/(m · K)	$m \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot K^{-1}$
体積エネルギー	ジュール每立法メートル	J/m ³	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-2}$
電界の強さ	ボルト每メートル	V/m	$m \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^{-1}$
体積電荷	クーロン每立方メートル	C/m ³	$m^{-3} \cdot s \cdot A$
電気変位	クーロン每平方メートル	C/m ²	$m^{-2} \cdot s \cdot A$
誘電率	ファラード每メートル	F/m	$m^{-3} \cdot kg \cdot s^4 \cdot A^2$
透磁率	ヘンリー每メートル	H/m	$m \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-2}$
モルエネルギー	ジュール每モル	J/mol	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot mol^{-1}$
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール每モル毎ケルビン	J/(mol · K)	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$
照射線量(X線及びγ線)	クーロン每キログラム	C/kg	$kg^{-1} \cdot s \cdot A$
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	$m^2 \cdot s^{-3}$
放射強度	ワット每ステラジアン	W/sr	$m^4 \cdot m^{-2} \cdot kg \cdot s^{-3} = m^2 \cdot kg \cdot s^{-3}$
放射輝度	ワット每平方メートル每ステラジアン	W/(m ² · sr)	$m^2 \cdot m^{-2} \cdot kg \cdot s^{-3} = kg \cdot s^{-3}$

表5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 ⁻²⁴	ヨクタ	Y	10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²¹	ゼタ	Z	10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻¹⁸	エクサ	E	10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻¹⁵	ベクタ	P	10 ⁻⁴	マイクロ	μ
10 ⁻¹²	テラ	T	10 ⁻⁵	ナノ	n
10 ⁻⁹	ギガ	G	10 ⁻⁶	ピコ	p
10 ⁻⁶	メガ	M	10 ⁻⁷	フェムト	f
10 ⁻³	キロ	k	10 ⁻⁸	アト	a
10 ⁻²	ヘクト	h	10 ⁻⁹	ゼット	z
10 ⁻¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

表6. 国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

名称	記号	SI単位による値
分	min	1 min=60 s
時	h	1 h = 60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648000) rad
リットル	L	1L=1 dm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1t=10 ⁻³ kg
ネーバ	Np	1Np=1
ペル	B	1B=(1/2)ln10(Np)

表7. 国際単位系と併用されこれに属さない単位でSI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
電子ボルト	eV	1eV=1.6021773(49)×10 ⁻¹⁹ J
統一原子質量単位	u	1u=1.6605402(10)×10 ⁻²⁷ kg
天文単位	ua	1ua=1.49597870691(30)×10 ⁻¹¹ m

表8. 国際単位系に属さないが国際単位系と併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
海里	里	1海里=1852m
ノット	ト	1ノット=1海里毎時=(1852/3600) m/s
アール	a	1a=1 dam ³ =10 ⁹ m ³
ヘクタール	ha	1ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
バル	bar	1bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10 ⁵ Pa
オングストローム	Å	1Å=0.1nm=10 ⁻¹⁰ m
バーン	b	1b=100fm ² =10 ⁻²⁸ m ²

表9. 固有の名称を含むCGS組立単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイナ	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ボアズ	P	1 P=1 dyn · s/cm ² =1Pa · s
ストーカス	St	1 St = 1cm ² /s=10 ⁻⁴ m ² /s
ガウス	G	1 G=10 ⁻⁴ T
エルステッド	Oe	1 Oe=(1000/4π)A/m
マックスウェル	Mx	1 Mx=1 Wb
スチール	sb	1 sb=1cd/cm ² =10 ⁴ cd/m ²
ホタル	ph	1 ph=10 ⁻¹ lx
ガル	Gal	1 Gal=1cm/s ² =10 ⁻² m/s ²

表10. 国際単位に属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
キュリ	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レンントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻² C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
X線単位	IX unit	1X unit=1.002×10 ⁻⁴ nm
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
ジャンスキ	Jy	1 Jy=10 ⁻²⁶ W · m ⁻² · Hz ⁻¹
フェルミ	fm	1 fermi=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット	Torr	1 metric carat=200 mg=2×10 ⁴ kg
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
力口リーン	cal	1 cal=10 ⁻⁴ J
ミクロ口ン	μ	1 μ=1 μm=10 ⁻⁶ m

