

分離精製工場における使用済燃料せん断粉末の 取出しに係る分析業務報告

Analysis Work Report on Removal of Spent Fuel Sheared Powder
for Decommissioning of Main Plant

青谷 樹里 森 天海 佐藤 日向 河野 壮馬
諸角 詩央里 堀籠 和志 後藤 雄一 山本 昌彦
田口 茂郎

Juri AOYA, Amami MORI, Hinata SATO, Soma KONO
Shiori MOROKADO, Kazushi HORIZOME, Yuichi GOTO, Masahiko YAMAMOTO
and Shigeo TAGUCHI

核燃料・バックエンド研究開発部門
核燃料サイクル工学研究所
再処理廃止措置技術開発センター
施設管理部

Facility Management Department
TRP Decommissioning Center
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development

June 2023

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Technology

本レポートは国立研究開発法人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。
本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際ライセンスの下に提供されています。
本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の
条件で利用してください。（<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>）
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（<https://www.jaea.go.jp>）
より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課
〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.

This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License
(<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).

Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the
same terms and conditions as CC-BY.

For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section,
JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.

2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan

Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

分離精製工場における使用済燃料せん断粉末の取出しに係る分析業務報告

日本原子力研究開発機構
核燃料・バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所
再処理廃止措置技術開発センター 施設管理部

青谷 樹里、森 天海、佐藤 日向、河野 壮馬、諸角 詩央里
堀籠 和志、後藤 雄一、山本 昌彦、田口 茂郎

(2023 年 3 月 31 日受理)

東海再処理施設の分離精製工場では、廃止措置の第 1 段階として再処理工程内に残存する回収可能核燃料物質を取り出す工程洗浄を実施している。工程洗浄では、工程内に残存する使用済燃料のせん断粉末、プルトニウム溶液、ウラン溶液、その他の核燃料物質の取出しを予定しており、このうちせん断粉末の取出しを 2022 年 6 月から同年 9 月に実施した。せん断粉末の取出しにあたっては、プロセスの状態把握に必要な工程管理を目的としたウラン濃度分析、プルトニウム濃度分析、酸濃度分析、放射能濃度分析、密度測定等の分析業務を実施した。また、核物質の計量管理を目的としたウラン濃度分析、プルトニウム濃度分析とその同位体組成の分析、密度測定等の分析業務、保障措置のための IAEA の分析施設への分析試料輸送にあたっての分析試料前処理等の分析業務を実施した。本報では、せん断粉末の取出しにおいて実施したこれら分析業務及び分析装置の校正、分析要員の教育、訓練等の分析関連業務の実績について報告する。

Analysis Work Report on Removal of Spent Fuel Sheared Powder
for Decommissioning of Main Plant

Juri AOYA, Amami MORI, Hinata SATO, Soma KONO, Shiori MOROKADO,
Kazushi Horigome, Yuichi GOTO, Masahiko YAMAMOTO and Shigeo TAGUCHI

Facility Management Department,
TRP Decommissioning Center, Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories,
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development,
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received March 31, 2023)

Flush-out, by which nuclear materials in the Tokai Reprocessing Plant process are recovered, has been started in June 2022 as the first step of decommissioning. Flush-out consists of removal of spent fuel sheared powder, plutonium solution, uranium solution, and the other nuclear materials. Removal of spent fuel sheared powder has been completed in September 2022. During removal of spent fuel sheared powder, uranium concentration, plutonium concentration, acid concentration, radioactivity concentration, and solution density have been analyzed for process control. For nuclear material accountancy, uranium concentration, plutonium concentration, isotope ratio, and solution density have been analyzed. Analysis work including sample pretreatment before transportation to IAEA analytical facility for safeguards, and the other operations related to Flush-out such as calibration of analytical instruments, education, and training of operators are reported.

Keywords: Tokai Reprocessing Plant, Flush-out, Analysis Work, Decommissioning

目次

1. はじめに	1
2. セン断粉末の取出し及びその他の核燃料物質の取出し	1
3. 分析業務実績	2
3.1 工程管理分析	2
3.1.1 分析方法の選定	2
3.1.2 分析処理件数	6
3.2 計量管理分析	6
3.2.1 分析方法の選定	6
3.2.2 分析処理件数	9
4. 収去処理	9
4.1 調整槽（入量計量槽）から採取した試料の収去処理	9
4.2 高放射性廃液蒸発缶から採取された試料の収去処理	10
5. 分析装置の校正	10
6. 分析設備	11
7. 廃棄物発生量	11
8. 教育・訓練	11
8.1 分析技能認定	11
8.2 異常時対応訓練	12
9. まとめ	12
謝辞	12
参考文献	13

Contents

1. Introduction.....	1
2. Removal of spent fuel sheared powder and other nuclear materials.....	1
3. Analysis work	2
3.1 Process control analysis.....	2
3.1.1 Analytical methods	2
3.1.2 The number of analytical samples	6
3.2 Analysis for nuclear material accountancy	6
3.2.1 Analytical methods	6
3.2.2 The number of analytical samples	9
4. Pretreatment of inspection samples for transportation.....	9
4.1 Pretreatment of samples in adjustment vessel.....	9
4.2 Pretreatment of samples in highly radioactive liquid waste evaporator.....	10
5. Calibration of analytical instruments	10
6. Analytical equipment.....	11
7. Amount of radioactive waste generated by analytical work.....	11
8. Training of analytical operator	11
8.1 Evaluation of analytical operator skills	11
8.2 Training for emergency operation.....	12
9. Conclusion	12
Acknowledgements	12
References.....	13

図リスト

図 1 工程概要図	14
図 2 工程管理分析の分析項目と分析件数	15
図 3 同位体希釈質量分析法 概略フロー	16
図 4 計量管理分析の分析項目と分析件数	17
図 5 IAEA による査察の様子	18
図 6 調整槽（入量計量槽）から採取した試料の収去処理フロー	19
図 7 高放射性廃液蒸発缶から採取した試料の収去処理フロー	20
図 8 せん断粉末の取出し等において使用した主な分析装置	21
図 9 分析所分析設備の概要	22

表リスト

表 1 分析項目と分析方法一覧（工程管理分析）	23
表 2 分析項目と分析方法一覧（計量管理分析）	25
表 3 各サンプリングポイントにおける計量管理分析結果	26
表 4 せん断粉末の取出し等の期間中における収去処理の件数とその内訳	29
表 5 分析装置の校正（健全性の確認）方法、管理基準、頻度	30
表 6 せん断粉末の取出し等の期間中における廃棄物発生量	31
表 7 実技試験の対象とした分析手法、実施年月、認定者数	32
表 8 分析技能認定の認定試験	33
表 9 実施した訓練一覧	34

List of Figures

Figure 1 Overview of process diagram	14
Figure 2 The number of process control samples	15
Figure 3 Analytical scheme of isotope dilution mass spectrometry	16
Figure 4 The number of nuclear material accountancy samples	17
Figure 5 Pretreatment of inspection samples inspected by inspector	18
Figure 6 Pretreatment procedure of inspection sample taken from adjustment vessel.....	19
Figure 7 Pretreatment procedure of inspection sample taken from highly radioactive liquid waste evaporator	20
Figure 8 Analytical instruments.....	21
Figure 9 Overview of analytical laboratory	22

List of Tables

Table 1 Analytical methods for process control	23
Table 2 Analytical methods for nuclear material accountancy	25
Table 3 Analytical results of samples for nuclear material accountancy	26
Table 4 The number of inspection sample preparations	29
Table 5 Calibration methods of analytical instruments	30
Table 6 Amount of radioactive waste generated by analytical work.....	31
Table 7 Analytical methods covered by evaluation test of analytical operator skills	32
Table 8 Evaluation test of analytical operator skills.....	33
Table 9 List of training	34

1. はじめに

日本原子力研究開発機構の東海再処理施設（TRP）は、30%リン酸トリブチル（TBP）ノルマルドデカンを溶媒とした溶媒抽出法により原子力発電所から発生する使用済燃料中のウラン（U）とプルトニウム（Pu）を核分裂生成物から分離、精製する我が国初の使用済燃料の再処理施設であり、1981年に運転を開始した^{1)~3)}。TRPでは2007年までに約1140トンの使用済燃料を再処理し、その間、再処理技術の実用性の実証、日本原燃（株）の六ヶ所再処理工場への技術移転を行う等、国内における再処理技術の確立に先導的役割を果たしてきた。その後、TRPについては、当初の目的をほぼ達成したことから、新規制基準の施行を踏まえた費用対効果を勘案し、2014年に廃止措置に移行する方針を決定し、2017年には東海再処理施設に係る廃止措置計画認可申請書を原子力規制委員会に提出し、TRPは廃止措置に移行した^{4),5)}。TRPでは、保有する高放射性廃液に伴うリスクを速やかに低減させるため、高放射性廃液を貯蔵している高放射性廃液貯蔵場及びガラス固化技術開発施設の安全対策工事とともに高放射性廃液のガラス固化を実施しており、これと並行して施設の解体に向けた準備として2022年6月から再処理工程内に残存する回収可能核燃料物質を取り出すための工程洗浄に着手した。

TRPでは2016年4月から2017年7月までに、過去の運転において使用済燃料のせん断に用いたせん断器等の周辺床面のクリーンアップ作業を実施した⁶⁾。今回着手した工程洗浄は、このクリーンアップ作業の際に回収したせん断粉末を取り出すための第1ステップ、分離精製工場において保有するPu溶液を取り出すための第2ステップ、分離精製工場、ウラン脱硝施設等において保有するウラン溶液及び分離精製工場において保有するウラン粉末を取り出すための第3ステップに分けて、段階的に回収可能核燃料物質の取出しを実施する。また、再処理工程内の洗浄液等、その他の核燃料物質の取出しについてもあわせて実施する⁷⁾。このうちせん断粉末の取出しは2022年6月8日から開始した。せん断粉末の取出しにあたっては、せん断粉末の溶解液の送液処理の各工程管理に必要なU濃度、Pu濃度、放射能濃度、酸（H⁺）濃度の分析、密度の測定等、核物質の計量管理に必要なU濃度、Pu濃度とその同位体組成等の分析、保障措置のためのIAEAの分析施設への分析試料輸送にあたっての分析前処理等の分析業務をTRPの分析所において実施した。

本報では、せん断粉末の取出しにおいて2022年6月8日から同年9月12日までの期間に実施した分析業務及び分析装置の校正、廃棄物発生量の実績、分析要員の教育、訓練等の分析関連業務の実績について報告する。

2. せん断粉末の取出し及びその他の核燃料物質の取出し

せん断粉末の取出しにおいては、図1に示すように使用済燃料のせん断粉末を硝酸に溶解し、その溶解液を調整槽（入量計量槽）、分離第1抽出器、高放射性廃液中間貯槽、高放射性廃液蒸発缶を経由して送液し、最終的に高放射性廃液貯蔵場に貯蔵した。せん断粉末の溶解液の送液後は、この送液経路を硝酸及び純水を用いて繰り返し押し出し洗浄を実施した。また、せん断粉末の取出

しにあわせて、その他の核燃料物質（再処理工程内の洗浄液等）のうち分離精製工場の濃縮液受槽において保有する洗浄液の高放射性廃液貯蔵場への送液と、分析所の中間貯槽（高放射性廃液貯槽）において保有する分析廃液の高放射性廃液貯蔵場への送液及びこの送液経路の押出し洗浄を実施した。

3. 分析業務実績

せん断粉末及びその他の核燃料物質の取出しにあたっては、各工程の状態を把握するための工程管理分析及び工程内の核物質量を把握するための計量管理分析を実施した。工程管理分析では、表 1 に示す通り、調整槽（入量計量槽）、分離第 1 抽出器、高放射性廃液中間貯槽、高放射性廃液蒸発缶から採取したせん断粉末の溶解液及び押出し洗浄液等を分析した。また、これらの核燃料物質の取出しにあたっては、過去の再処理運転と同様に処理したオフガス洗浄液の分析、分析に伴い発生した分析廃液の分析も実施した。計量管理分析では、表 2 に示す通り、調整槽（入量計量槽）、高放射性廃液蒸発缶から採取したせん断粉末の溶解液及び押出し洗浄液等を分析した。以下に工程管理分析、計量管理分析の詳細な実績について記す。

3.1 工程管理分析

工程管理分析はせん断粉末の取出し等における各工程の状態把握を目的としており、主な分析項目は U 濃度、Pu 濃度、H⁺濃度、放射能濃度等である。表 1 に工程管理分析において分析対象とした試料のサンプリングポイント、分析項目、分析方法及び分析装置を示す。工程管理分析により得られた分析値は、分離精製工場等のプロセス操作において次工程に移る際に必要な工程管理上のパラメータとなることから、迅速な分析結果の報告が求められる。せん断粉末の取出し等に係る工程管理分析においては、分析依頼元のニーズであるサンプリングから 3 時間以内の分析結果報告に対応した。

3.1.1 分析方法の選定

せん断粉末の取出し等における工程管理分析で使用した主な分析方法について、その概要と選定理由を以下に示す。

① U 濃度分析

再処理工程における水相試料中の U 濃度分析には、ジベンゾイルメタン（DBM）を錯化剤とした酢酸エチル抽出／DBM 吸光光度法、電位差滴定による U・H⁺同時滴定法等を採用している⁸⁾。酢酸エチル抽出／DBM 吸光光度法では、U 濃度分析において妨害となり得る試料中の Pu や鉄（Fe）を分離するため、予め酢酸エチルにより試料中の U を抽出し、抽出液中の U を DBM と接触させて反応させた後、410 nm における吸光度を紫外・可視分光光度計で測定して定量する。U・H⁺同時滴定法では、試料中に硫酸アンモニウムを添加し U と錯体を形成させた後、水酸化ナトリウムを用いて滴定することで遊離酸濃度を求め、さらに過酸化水素の添加により U 錯体中の

酸を遊離させた後、再び水酸化ナトリウムで滴定し U 濃度を定量する。それぞれの分析法における U 濃度の定量下限値は、酢酸エチル抽出／DBM 吸光光度法が約 0.01 g/L、U・H⁺同時滴定法が約 5 g/L である。

せん断粉末の取出し等では、分析対象試料中の U 濃度は最大でも 30 g/L 程度と見積もられ、過去の運転中に対象とした試料の U 濃度範囲（約 200～400 g/L）よりも低く、特に押出し洗浄液中の U 濃度は、U・H⁺同時滴定法の定量下限値である 5 g/L よりも低いことが推測された。また、せん断粉末の取出し等では、取出し開始時から押出し洗浄終了時までの U 濃度の変化傾向を把握する必要があり、高濃度から低濃度まで同一の方法により測定し、分析値の不確かさを可能な限り一定とすることが求められた。このため、せん断粉末の取出し等における U 濃度分析には、酢酸エチル抽出／DBM 吸光光度法を適用した。各分析は、課内で定める分析品質保証要領書に基づき、試料採取から測定までの操作を 2 回（N=2）実施し、2 回の分析値の差が 10%以内を管理基準値として、分析手順、分析操作の妥当性（コンタミネーションの有無、前処理操作のミスの有無）を確認し、分析値の品質を管理した。

② Pu 濃度分析

再処理工程における水相試料中の Pu 濃度分析には、硝酸アンモニウムセリウム(IV)酸化／Pu(VI)吸光光度法⁹⁾、TTA キシレン抽出／ α 線計測法等を採用している⁸⁾。硝酸アンモニウムセリウム(IV)酸化／Pu(VI)吸光光度法では、硝酸アンモニウムセリウム(IV)を添加することで、試料中の Pu を Pu(VI)に酸化させ、Pu(VI)の最大吸収波長である 830 nm における吸光度を測定して定量する。再処理工程より採取した試料の主要成分である U、不純物として共存する Fe、ニッケル等は、830 nm に吸収を有さないため、硝酸アンモニウムセリウム(IV)酸化／Pu(VI)吸光光度法において、これら共存元素による測定妨害はない。TTA キシレン抽出／ α 線計測法は、高周波により試料皿上に一定量の溶液試料を焼付けた測定試料体を調製し、 α 線計測装置で α 線を測定してその計数値から Pu を定量する。TTA キシレン抽出／ α 線計測法では、他の共存する α 線放出核種や金属元素が測定妨害となるため、計測に先立ちこれらを分離する必要がある。そのため、試料中の Pu をアルコールビン酸溶液及び亜硝酸ナトリウム溶液を用いて Pu(IV)に原子価調整した後、2-テノイルトリフルオロアセトン（TTA）とキシレンの混合溶媒で Pu(IV)を抽出後、 α 線を測定する。それぞれの分析法における Pu 濃度の定量下限値は、硝酸アンモニウムセリウム(IV)酸化／Pu(VI)吸光光度法が約 0.2 g/L、TTA キシレン抽出／ α 線計測法が約 0.05 mg/L である。

せん断粉末の取出し等において、せん断粉末の溶解液中の Pu 濃度は 0.3～0.5 g/L と推測されたことから、Pu 分析には硝酸アンモニウムセリウム(IV)酸化／Pu(VI)吸光光度法を採用した。また、せん断粉末の押出し洗浄液、濃縮液受槽において保有する洗浄液、分析所の中間貯槽（高放射性廃液貯槽等）において保有する分析廃液、オフガス洗浄液中の Pu 濃度は 0.2 mg/L 未満と推測されたことから、TTA キシレン抽出／ α 線計測法を適用した。各分析は、課内で定める分析品質保証要領書に基づき N=2 で実施し、2 回の分析値の差が 10%以内を管理基準値として分析の品質を管理した。

③ Fe 濃度分析

再処理工程における水相試料中の Fe 濃度分析には、*o*-フェナントロリンと Fe のキレート錯体の吸収を利用する *o*-フェナントロリン吸光光度法を採用している⁸⁾。本法では、試料に還元剤としてアスコルビン酸を添加して Fe を 2 価に還元した後、*o*-フェナントロリン溶液を添加して *o*-フェナントロリン-Fe(II)錯体の最大吸収波長 508 nm における吸光度を測定して定量する。

せん断粉末の溶解液及び押出し洗浄液についても *o*-フェナントロリン吸光光度法を適用した。各分析は、課内で定める分析品質保証要領書に基づき N=2 で実施し、2 回の分析値の差が 10% 以内を管理基準値として分析の品質を管理した。

④ H⁺濃度分析

再処理工程における水相試料中の H⁺濃度分析には、試料中の遊離酸を強塩基である水酸化ナトリウム (NaOH) 標準溶液により中和滴定するアルカリ中和滴定法を採用している⁸⁾。本法では、中和滴定の際の電位差をガラス電極で測定し、H⁺濃度を求める。

せん断粉末の取出し等における分析対象試料中には U が含まれるため、滴定液の NaOH 水溶液をそのまま滴下すると U の加水分解が起こり、終点が不安定になることがある。そこで、H⁺濃度分析には予め硫酸アンモニウムを添加し、U を硫酸ウラニル錯体 ([UO₂(CO₃)₃]⁴⁻) とした後に NaOH 標準溶液を添加し、滴定する硫酸アンモニウム添加/アルカリ中和滴定法を適用した。各分析は、課内で定める分析保証要領書に基づき N=2 で実施し、2 回の分析値の差が 10% 以内を管理基準値として分析の品質を管理した。

⑤ 水酸化物イオン (OH⁻) 濃度分析、炭酸イオン (CO₃²⁻) 濃度分析

再処理工程における水相試料中の OH⁻濃度分析及び CO₃²⁻濃度分析には、水相試料中の塩基を強酸により中和滴定する酸中和滴定法を採用している⁸⁾。本法では、中和滴定の際の電位差をガラス電極で測定し OH⁻濃度及び CO₃²⁻濃度を求める。OH⁻と CO₃²⁻が共存している溶液を滴定すると、最初に強塩基である水酸イオンが中和され、その後弱塩基である炭酸イオンが中和されるため 2 段の滴定曲線が得られ、それぞれの終点から濃度を求めることができる。

せん断粉末の取出しにおけるオフガス洗浄液についても酸中和滴定法を適用した。各分析は、課内で定める分析保証要領書に基づき N=2 で実施し、2 回の分析値の差が 10% 以内を管理基準値として分析の品質を管理した。

⑥ 亜硝酸イオン (NO₂⁻) 濃度分析

再処理工程における水相試料中の NO₂⁻濃度分析には、スルファニルアミド N-(1-ナフチル)エチレンジアミンを添加して生じるジアゾ化合物の吸収を利用する N-(1-ナフチル)エチレンジアミン吸光光度法等を採用している⁸⁾。本法では、分析試料にスルファニルアミド(4-アミノベンゼンスルホンアミド)を添加して NO₂⁻をジアゾ化した後、スルファニルアミド N-(1-ナフ

チル)エチレンジアミンを添加して生成するジアゾ化合物の最大吸収波長 540 nm における吸光度を測定して定量する。

せん断粉末の取出しにおけるオフガス洗浄液についても N-(1-ナフチル)エチレンジアミン吸光光度法を適用した。各分析は、課内で定める分析品質保証要領書に基づき N=2 で実施し、2 回の分析値の差が 10%以内を管理基準値として分析の品質を管理した。

⑦ 全 α 放射能濃度分析、全 β 放射能濃度分析

再処理工程における水相試料中の全 α 放射能濃度分析には、ZnS(Ag)を検出器に用いて試料から放出される α 線をエネルギー区分なしに計測する全 α 線計測法を採用している。また、全 β 放射能濃度分析には、試料から放出される β 線をエネルギー区分なしに計測する GM 計数管を検出器に用いた全 β 線計測法を採用している。全 α 放射能濃度分析法、全 β 放射能濃度分析法ともに、測定時間は 1800 秒で計測する。

せん断粉末の取出し等に係る分析に伴い発生した分析廃液についても全 α 線計測法、全 β 線計測法を適用した。各分析は、課内で定める分析品質保証要領書に基づき N=2 で実施し、2 回の分析値の差が 20%以内を管理基準値として分析の品質を管理した。

⑧ 全 γ 放射能濃度分析

再処理工程における水相試料中の全 γ 放射能濃度分析には、NaI(Tl)を検出器に用いて試料から放出される γ 線をエネルギー区分なしに計測する全 γ 線計測法を採用している⁸⁾。本法では、試料を 500～10000 倍に希釈し、測定時間 60 秒で γ 線を計測する。

せん断粉末の溶解液及び押し出し洗浄液、濃縮液受槽において保有する洗浄液、分析所の中間貯槽（高放射性廃液貯槽）において保有する分析廃液、オフガス洗浄液、分析に伴い発生した分析廃液についても全 γ 線計測法を適用した。各分析は、課内で定める分析品質保証要領書に基づき N=2 で実施し、2 回の分析値の差が 20%以内を管理基準値として分析の品質を管理した。

⑨ γ 線核種濃度分析

再処理工程における水相試料中の γ 核種濃度分析には、ゲルマニウム (Ge) 半導体検出器を用いた γ 線スペクトル計測法を採用している⁸⁾。本法では、試料セルに封入した試料溶液から放出される γ 線を Ge 半導体検出器で検出し、核種固有の γ 線エネルギーに応じた計数値を測定することで γ 線放出核種毎に濃度を定量する。試料は 100～1000 倍に希釈し、測定時間 10000 秒で γ 線スペクトルを測定する。

せん断粉末の溶解液及び押し出し洗浄液についても γ 線スペクトル計測法を適用した。各分析は、課内で定める分析品質保証要領書に基づき N=2 で実施し、2 回の分析値の差が 10%以内を管理基準値として分析の品質を管理した。

⑩ 密度測定

再処理工程における水相試料中の密度測定には、高精度、少試料量、短時間で測定が可能な振動式密度測定法を採用している⁸⁾。本法では、試料を振動セルに導入し、その固有振動数から試料の密度を測定する。密度測定は分析セルライン内でマニプレータを用いて操作を行う必要があることから、簡便なボタン操作のみで測定が可能な簡易型の振動式密度計を使用している。

せん断粉末の溶解液及び押し出し洗浄液、濃縮液受槽において保有する洗浄液、分析所の中間貯槽（高放射性廃液貯槽）において保有する分析廃液、分析に伴い発生した分析廃液についても振動式密度測定法を適用した。各分析は、課内で定める分析品質保証要領書に基づき $N=2$ で実施し、2回の分析値の差が10%以内を管理基準値として分析の品質を管理した。

3.1.2 分析処理件数

せん断粉末の取出し等に係る工程管理分析について、分析項目ごとの処理件数と内訳を図2に示す。工程管理分析の主な分析項目はU濃度、Pu濃度、 H^+ 濃度、 OH^- 濃度、全 γ 放射能で、それぞれ75件、55件、65件、74件、76件分析し、その他の分析も含め総分析処理件数は約450件であった。

3.2 計量管理分析

計量管理分析は工程内の核物質の在庫量を正確に把握することを目的としており、主な分析項目にはU濃度、Pu濃度とその同位体組成等がある。表2に各サンプリングポイントにおける分析項目と分析方法を示す。計量管理分析では極めて高い精度と正確性（例えば、再処理運転における使用済燃料溶解液については、ランダム・システムエラーともに約0.5%以下）が求められる。特に核物質管理上重要なせん断粉末の溶解液中のU濃度、Pu濃度の分析は、精密分析法である同位体希釈質量分析法を適用した。

3.2.1 分析方法の選定

せん断粉末の取出し等における計量管理分析で使用した主な分析方法について、その概要と選定理由を以下に示す。また、各試料中のU濃度、Pu濃度とその同位体組成の分析結果、密度測定結果を表3に示す。

① U濃度分析

再処理工程における水相試料中のU濃度分析には、同位体希釈質量分析法（IDMS）、酢酸エチル抽出／DBM吸光光度法等を採用している。IDMSは非常に精密な定量分析が可能であり、核物質量の正確な把握が求められる計量管理において有効である。本法では、スパイクと呼ばれる標準試料（濃度と同位体組成が既知）に試料を添加し、イオン交換分離法等にてUと同重体として干渉する共存成分を分離後、スパイク添加前後の同位体組成を表面電離型質量分析計（TIMS）で測定することで元素濃度を求める。IDMSでは、図3に示す概略フローの通り、乾固されたスパイクの入ったバイアルに試料溶液を添加し、加熱によりスパイクを溶解させ、試料とスパイク

を均一に混合する。試料の添加量は、予想される試料濃度及びスパイクと試料の同位体比から、不確かさが最小となる試料とスパイクの最適混合比（試料／スパイク：2～5）を事前に確認し決定する。本試料を乾固寸前まで加熱濃縮後、硝酸を添加、再溶解し、Pu の陰イオン交換樹脂（Bio-Rad AG1-X2 200－400 メッシュ）への分配係数が最大となる酸濃度へ調整する。本溶液を陰イオン交換樹脂を充填したカラムに通液し、硝酸を用いて核分裂生成物を除去後、希硝酸を用いて U を溶離、回収する。回収した U 溶液は乾固寸前まで加熱濃縮した後、U が 1 μL あたり 100～200 ng となるよう硝酸に溶解し、フィラメントと呼ばれる薄板状の金属にマイクロピペットで塗布して乾燥・固着させ、TIMS にて同位体比を測定し、濃度を算出する。せん断粉末の取出し等では、国際原子力機関 (IAEA) より提供された ^{233}U 、 ^{242}Pu を主成分とするスパイクを使用した。酢酸エチル抽出／DBM 吸光光度法は、IDMS より精度は劣るが簡便な方法であり、工程管理分析と同様に実施する。それぞれの分析法における U の定量下限値は、IDMS が約 1 g/L、酢酸エチル抽出／DBM 吸光光度法が約 0.01 g/L である。

せん断粉末の取出し等においては、試料中の U 濃度が 1 g/L 以上と推測されたせん断粉末の溶解液及び押し出し洗浄液には IDMS、1 g/L 未満と推測された押し出し洗浄液及び分析所の中間貯槽（高放射性廃液貯槽）において保有する分析廃液には酢酸エチル抽出／DBM 吸光光度法を適用した。各分析は、課内の分析品質保証要領書に基づき N=2 で実施し、2 回の分析値の差が IDMS は 0.5% 以内、酢酸エチル抽出／DBM 吸光光度法は 10% 以内を管理基準値として分析の品質を管理した。

② Pu 濃度分析

再処理工程における水相試料中の Pu 濃度分析には、IDMS、スラッジ溶解／硝酸アンモニウムセリウム(IV)酸化／Pu(VI)吸光光度法、TTA キシレン抽出／ α 線計測法等を採用している。IDMS は U 濃度分析と同様のスパイク（U と Pu を 1 つのバイアルに乾固したもの）を用いて図 3 に示すフローに従い実施する。試料中の Pu は Pu(III)、Pu(IV)、Pu(VI)の原子価の状態で存在している可能性があるため、イオン交換分離及び固相抽出分離に先立ち、酸化・還元試薬を添加して Pu の原子価を Pu(IV)に調整する。原子価調整した試料溶液を、陰イオン交換樹脂を充填したカラムに通液し、硝酸を添加しカラムに残留する共存元素を洗浄した後、希硝酸を用いて U を溶離し、最後にアルコールビン酸を用いて Pu を溶離し回収する。回収した Pu 溶液は固相抽出剤（Eichrom TEVA-resin）を充填したカラムに添加して Pu のみを TEVA に抽出し、Pu の同重体として干渉する U と分離する。その後、アルコールビン酸を添加して Pu を還元し、TEVA から Pu を溶離し回収する。回収した Pu 溶液中のアルコールビン酸は、TIMS での測定を妨害する可能性があるため、濃硝酸を添加してこれを分解し、乾固寸前まで加熱濃縮する。次に、Pu が 1 μL あたり 100～200 ng となるように希硝酸に溶解し、U 濃度分析と同様に TIMS を用いて測定する。TTA キシレン抽出／ α 線計測法は、工程管理分析と同様に実施する。スラッジ溶解／硝酸アンモニウムセリウム(IV)酸化／Pu(VI)吸光光度法では、試料に硝酸とフッ化水素酸の混合酸を添加、乾固寸前まで加熱し、スラッジ中の Pu の溶出操作を行う。加熱濃縮した試料については、硝酸を添加して再溶解後ろ過し、工程管理分析と同様に硝酸アンモニウムセリウム(IV)酸化／Pu(VI)吸光光

度法により測定する。

それぞれの分析法における Pu の定量下限値は、IDMS が約 1 g/L、TTA キシレン抽出／ α 線計測法が約 0.05 mg/L、スラッジ溶解／硝酸アンモニウムセリウム(IV)酸化／Pu(VI)吸光光度法が 0.02 g/L である。

せん断粉末の取出し等においては、測定試料中の Pu 濃度が 1 g/L 以上と推測されたせん断粉末の溶解液及び押出し洗浄液には IDMS、1 g/L 未満と推察された押出し洗浄液には TTA キシレン抽出／ α 線計測法を適用した。高放射性廃液蒸発缶から採取した試料については、目視においてはスラッジの混入は確認されなかったが、過去の運転履歴からスラッジの混入の可能性が考えられた。このため、Pu 濃度が 0.02 g/L 以上と推測された試料にはスラッジ溶解／硝酸アンモニウムセリウム(IV)酸化／Pu(VI)吸光光度法を採用し、0.02 g/L 未満と推察された試料には TTA キシレン抽出／ α 線計測法を採用した。また、分析所の中間貯槽（高放射性廃液貯槽）において保有する分析廃液には、TTA キシレン抽出／ α 線計測法を採用した。各分析は、課内で定める分析品質保証要領書に基づき N=2 で実施し、2 回の分析値の差が IDMS は 0.5%、スラッジ溶解／硝酸アンモニウムセリウム(IV)酸化／Pu(VI)吸光光度法は 15%、TTA キシレン抽出／ α 線計測法は 10%以内を管理基準値として分析値の品質を管理した。

③ 同位体組成分析

再処理工程における水相試料中の U、Pu 同位体組成は、TIMS を用いた質量分析法により分析している。本法では、試料溶液を一定量採取、希釈し、イオン交換分離にて核分裂生成物を除去した後 U と Pu を分離し、U についてはそのまま同位体組成を測定する。Pu については、イオン交換分離後の溶液について混入する U を除去するため、さらに固相抽出 (Eichrom TEVA-resin) 分離後、同位体組成を測定する。

調整槽（入量計量槽）から採取したせん断粉末の溶解液及び押出し洗浄液についても質量分析法を適用した。各分析は、課内で定める分析品質保証要領書に基づき N=2 で実施し、2 回の分析値の差が $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ は 0.5%、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ は 0.2%、 ^{238}Pu の重量分率は 1%以内を管理基準値として分析値の品質を管理した。

④ 密度測定

再処理工程における水相試料の密度測定には、振動式密度測定法を採用している。計量管理分析における密度測定では、乾燥空気及び超純水の密度測定後、分析試料の測定に先立ちワーキングスタンダードとして硝酸 Pu 溶液と密度値に近い硝酸セリウムの密度を測定し、装置の健全性を確認する。これらの密度測定は、恒温槽を用いて $31 \pm 0.1^\circ\text{C}$ の精密な温度管理の基で実施する。

調整槽（入量計量槽）から採取したせん断粉末の溶解液及び押出し洗浄液についても振動式密度測定法を適用した。各分析は、課内で定める分析品質保証要領書に基づき N=2 で実施し、2 回の分析値の差が 0.04%以内を管理基準値として分析値の品質を管理した。

3.2.2 分析処理件数

せん断粉末の取出し等に係る計量管理分析について、分析項目ごとの処理件数と内訳を図 4 に示す。計量管理分析の主な分析項目は U 濃度、Pu 濃度、U 同位体比組成、Pu 同位体組成で、それぞれ 39 件、39 件、68 件、85 件分析し、その他の分析も含め総分析処理件数は約 250 件であった。

4. 収去処理

せん断粉末の取出し等の期間中、分析所においては、IAEA の保障措置の要件に対応するため、査察監視下で採取された試料（査察試料）について、IAEA の分析施設及び原子力規制庁から委託を受け国内の保障措置活動を行う核物質管理センター（NMCC）の分析施設へ輸送するための試料前処理（収去処理）を実施した。せん断粉末の溶解液の送液における収去処理の対象は、調整槽（入量計量槽）から送液する全てのバッチと、高放射性廃液蒸発缶から送液するバッチの内 IAEA がランダムに選択したバッチであった。押出し洗浄液の送液における収去処理の対象は、調整槽（入量計量槽）、高放射性廃液蒸発缶ともに、送液するバッチの内 IAEA がランダムに選択したバッチであった。収去処理に係る操作は、全て査察試料の真正性を担保するため、IAEA 及び NMCC の査察官による立会いのもとで実施した（図 5）。査察官非立会い時は収去処理操作を行わず、査察試料は XCAM と呼ばれる監視カメラ下に保管することで、保障措置に関する知識の連続性（COK : Continuity Of Knowledge）を担保した。

表 4 に、せん断粉末の取出し等の期間中に実施した収去処理の件数及びその内訳を示す。収去処理は、せん断粉末の溶解液に対して 11 件、押出し洗浄液に対して 3 件、分析所の中間貯槽（高放射性廃液貯槽）において保有する分析廃液に対して 1 件実施した。

4.1 調整槽（入量計量槽）から採取した試料の収去処理

調整槽（入量計量槽）におけるせん断粉末の溶解液及び押出し洗浄液の収去処理は、せん断粉末の取出し等の開始前に IAEA との協議に基づき決定した図 6 に示すフローに従い、分析所の中放射性分析室の分析セルラインにおいて実施した。

査察試料は、査察官がサインした試料容器に各サンプリングポイントで採取され、分析所へ気送後、収去処理を開始するまでの間は XCAM 監視下で保管した。収去処理では、査察試料を同位体測定用の空バイアルとスパイクバイアル（2 本）にそれぞれ一定量分取した。スパイクバイアルについては、IDMS による濃度導出に試料の分取量が必要となるため正確に秤量した。各バイアルに硝酸を添加し、30 分間加熱してスパイクを溶解させた後、攪拌して試料とスパイクを均一に混合した。次に、先行して実施した工程管理分析による Pu 濃度に基づき、1 ガラスバイアル当たり約 0.10 μg ～12 μg の Pu が存在するよう適宜分取液量を調整し、IAEA 及び NMCC の輸送用ガラスバイアルへそれぞれ分取した。なお、NMCC へ送付する試料については、イオン交換樹脂（Bid-Rad AG-X8 200-400 メッシュ）を用いて核分裂生成物を除去した。

輸送用ガラスバイアルに分取した試料については、加熱乾固し、査察官による乾固状態の確認とバイアルの No.の確認の後、アルミキャップを取り付け、封印シール付き容器である SVSC (Secure Vial Sealing Container) へ封入した。SVSC へ封入した試料は、分析設備からバッグアウトして金庫内に保管し、輸送に係る手続きが終了したものから搬出した。

なお、従来の使用済燃料溶解液の収去処理では、 ^{235}U 、 ^{239}Pu が主成分の U 数十 mg、Pu 数 mg を 1 つのバイアル内に固着させた LSD (Large-Sized Dried) スパイクが用いられていた。しかし、今回のせん断粉末の溶解液は、再処理施設の運転中に対し Pu 濃度が約 100 分の 1 と低く、使用済燃料溶解液の濃度に合わせて調製された LSD スパイクを使用するためには希釈操作が必要となり、分析値の不確かさが増加する要因となる。そのため、今回の収去処理では、低濃度 U、Pu の IDMS 用スパイクとして最適化された、査察試料中に含まれないマイナーな質量数の ^{233}U 、 ^{242}Pu をトレーサーとするスパイクが IAEA より提供された。

4.2 高放射性廃液蒸発缶から採取された試料の収去処理

高放射性廃液蒸発缶におけるせん断粉末の溶解液及び押出し洗浄液の収去処理は、図 7 に示す従来の高放射性廃液の収去処理フローと同様に実施した。査察試料は、同位体測定用の空バイアルとスパイクバイアル (2 本) に、それぞれ一定量分取 (1 次分取) した。本試料には、目視でスラッジの含有は確認されなかったが、念のため、分取した各試料に硝酸とフッ化水素酸の混合酸を添加、乾固寸前まで加熱し、スラッジ中の Pu の溶出操作を行った。加熱濃縮した試料については、硝酸を添加して再溶解後、ろ過した。次に、回収したろ液から一部を分取 (2 次分取) し、硝酸を添加して所定の濃度に希釈調整した。以後の、輸送用バイアルへの分取から搬出までの操作については、調整槽 (入量計量槽) から採取した試料と同様に実施した。

なお、高放射性廃液蒸発缶から採取した試料の収去処理では、スラッジ中の Pu 溶出操作を行うが、Pu 溶出操作を行う設備は分析所の中放射性分析室の分析セルラインではなく、高放射性分析室の分析セルラインに設置していることから、本収去処理は高放射性分析室の分析セルラインにおいて実施した。また、高放射性分析室の分析セルラインでは、試料重量を秤量する天秤が取扱えないため、高放射性廃液蒸発缶から採取された試料の分取操作は、全てピペットによる容量分取とした。

5. 分析装置の校正

分析業務の品質を担保するため、分析装置の校正 (健全性の確認) にあたっては、TRP で定める教育・訓練管理規則に従い教育を実施し、必要な技能及び十分な経験を有する者を校正担当者に指名し、校正を実施した。校正担当者は、図 8 に示す分析装置について、分析品質保証要領書に定める表 5 に示す校正方法、管理基準、実施頻度に従い校正を実施した。一例として、計量管理分析で使用した表面電離型質量分析計の健全性の確認では、1 か月に 1 回の頻度で U 及び Pu 標準溶液中の $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 及び $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ の同位体比を測定し、その測定値と標準溶液の表示値の有意差検定を実施して、有意水準 5%において有意な差があるとは言えないことを確認した。校

正結果については、分析装置の名称、装置番号、設置場所、校正年月日、校正の有効期限、校正方法を記載した台帳を作成し管理した。また、校正結果は校正担当者他、QA コーディネータが第三者として妥当性を評価した。

6. 分析設備

せん断粉末の取出し等において使用した分析所分析設備の概要を図 9 に示す。せん断粉末の取出し等では、分析所の高放射性分析室、中放射性分析室、低放射性分析室、化学準備室、機器分析準備室及び質量分析室に設置されている分析セルライン、グローブボックス（遮へい付グローブボックスを含む）及びヒュームフードを用いて分析作業を実施した。各試料の分析操作については、放射能レベルや放射線量に応じて適切な分析設備を選択して実施した。分離精製工場内の各サンプリングポイントから分析所まで、分析所内における分析セルライン及びグローブボックス間での試料の搬送は、分析所に設置されている気送管設備を用いて行った。分析設備については、せん断粉末の取出し等の開始前及び期間中、必要な点検、保守を実施し¹⁰、せん断粉末の取出し等の期間中、不具合、故障の発生はなかった。

7. 廃棄物発生量

せん断粉末の取出し等の期間内に実施した分析及び関連する保守業務に伴い発生した低放射性固体廃棄物の発生量を表 6 に示す。低放射性固体廃棄物の発生量は約 2660 L（Pu 系廃棄物が約 6%、 $\beta\gamma$ 系廃棄物が約 94%）であり、全て焼却施設へ搬出した。全体のうち可燃性、難燃性廃棄物が約 92%、不燃性廃棄物が約 8%であった。高放射性固体廃棄物は主に分析セルラインから発生し、その発生量は約 60 L（8 型キャスク 3 基分に相当）であった。

また、分析業務に伴い発生した低放射性液体廃棄物は、分析セルライン、グローブボックス系から約 2 m³、化学実験台等から約 11 m³であり、分析所の中間貯槽（低放射性廃液貯槽及び極低放射性廃液貯槽）から低放射性廃液貯蔵工程へ送液した。

8. 教育・訓練

8.1 分析技能認定

せん断粉末の取出し等において実施する分析については、分析結果の品質の維持、向上のため、課内要領書で定める分析技能認定制度に基づき分析技能認定を行い、分析技能認定者によって実施した。実技試験の対象とした分析手法と実施年月、認定者数を表 7 に、分析技能認定の認定試験について表 8 に示す。

8.2 異常時対応訓練

せん断粉末の取出し等にあたっては、分析及び設備の保守、点検における異常時を想定した対応訓練を実施し、作業員の異常発生時の対応技量の向上を図った。実施した訓練の内容を表 9 に示す。

9. まとめ

本報では、2022 年 6 月から同年 9 月に実施したせん断粉末の取出しと、これに合わせて実施したその他の核燃料物質の取出しにおける分析業務及びその関連業務の実績等について整理した。

工程管理分析では、各工程の状況把握のため、調整槽（入量計量槽）、分離第 1 抽出器、高放射性廃液中間貯槽、高放射性廃液蒸発缶から採取したせん断粉末の溶解液及び押出し洗浄液、濃縮液受槽において保有する洗浄液、分析所の中間貯槽（高放射性廃液貯槽）において保有する分析試料の送液、貯蔵に係る分析を実施した。また、オフガス洗浄液及び分析に伴い発生した分析廃液の処理のための分析も実施した。工程管理分析の主な分析項目は U 濃度、Pu 濃度、H⁺濃度、放射能濃度、密度であり、総処理件数は約 450 件であった。計量管理分析では、調整槽（入量計量槽）、高放射性廃液蒸発缶、分析所の中間貯槽（高放射性廃液貯槽）から採取したせん断粉末の溶解液及び押出し洗浄液の送液に係る分析を実施した。計量管理分析の主な分析項目は U 濃度、Pu 濃度とその同位体組成であり、総処理件数は約 250 件であった。各分析は試料採取から測定までの操作を N=2 で実施し、2 回の分析値の差の管理基準値を設定することで分析の品質を管理した。せん断粉末の取出し等の期間中、収去処理は 15 件実施し、査察試料は IAEA 及び NMCC の分析施設へ輸送した。

分析業務の実施にあたっては、校正担当者による分析装置の校正及び校正記録の作成、QA コーディネータによる校正結果の妥当性の評価を実施し、分析値の品質を管理した。また、せん断粉末の取出し等への対応にあたり、適用する分析手法を対象とした分析技能認定、異常時の対応訓練を実施し、分析業務に従事する作業員の技能の維持、向上を図った。これらの結果、せん断粉末の取出し等においては、分析結果や分析設備、装置に係るトラブルの発生はなく、依頼元である分離精製工場等の所掌課からの要求に対して遅滞なく分析データを提供することができた。

せん断粉末の取出し完了後、2022 年度末からは Pu 溶液、ウラン溶液の取出しが予定されており、工程洗浄完了後には、系統除染の実施が計画されている。系統除染完了までは、せん断粉末の取出し等において適用した分析手法による分析が必要となることが想定されるため、現行技術を継承し、必要な分析技能を維持していく。また、せん断粉末の取出し等で使用した分析装置、分析設備についても点検、保守を実施し、運用を継続する。

謝辞

本件に係る分析及び分析設備の維持管理にご協力いただきました株式会社アセンドの方々に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 山本修, 東海再処理工場の軌跡, 日本原子力学会誌 ATOMO Σ, 61 巻, 1 号, 2019, pp.24-25.
- 2) 山村修, 山本隆一, 野村茂雄, 東海再処理工場における保守技術開発に関する分析評価, 日本原子力学会和文論文誌, 6 巻, 4 号, 2007, pp.491-502.
- 3) 中島健太郎, 東海再処理物語, 日本原子力学会誌 ATOMO Σ, 54 巻, 5 号, 2012, pp.349-350.
- 4) 大塔容弘, 日本の再処理の歴史を振り返る, 日本原子力学会誌 ATOMO Σ, 61 巻, 4 号, 2019, pp.311-313.
- 5) 岡野正紀, 秋山和樹, 田口克也, 永里良彦, 大森栄一, 東海再処理施設の廃止措置計画の概要, デコミッシング技報, 57 号, 2018, pp.53-64.
- 6) 古内雄太, 佐藤信二, 谷田部仁史, 横田知, 山田貴史, 矢作文男, 照沼宏隆, 所武司, 高橋晃浩, 飯嶋静香, 鈴木一之, 東海再処理施設における遠隔操作によるせん断粉末等の回収作業への取組みについて, 日本保全学会第 15 回学術講演会要旨集, 2018, pp.496-499.
- 7) 日本原子力研究開発機構, 核燃料サイクル工学研究所 再処理施設に係る廃止措置計画認可申請書, 2022.
- 8) 林允之, 和地勇, 池田久, 廣木俊男, 庄司和弘, 酒井敏雄, 山田敬二, 大沼高志, 稲田聡, 八木正邦, 河野龍明, 古野和夫, 山本明, 山口辰男, 木村好之, 板村進, 山下美知男, 分析マニュアル-1 (工程分析編), PNC TN8520 86-15, 1986, 447p.
- 9) ISO 9463, Nitric acid feed solutions from reprocessing plants-Spectrophotometric determination of plutonium after oxidation to plutonium(VI), First edition, 1990-12-15, 1990.
- 10) 西野紗樹, 岡田純平, 渡邊一樹, 古内雄太, 横田知, 矢田祐士, 草加翔太, 諸角詩央里, 中村芳信, 分離精製工場における使用済燃料せん断粉末の取出し, JAEA-Technology 2023-011, 2023, 39p.

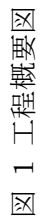


图 1 工程概要图

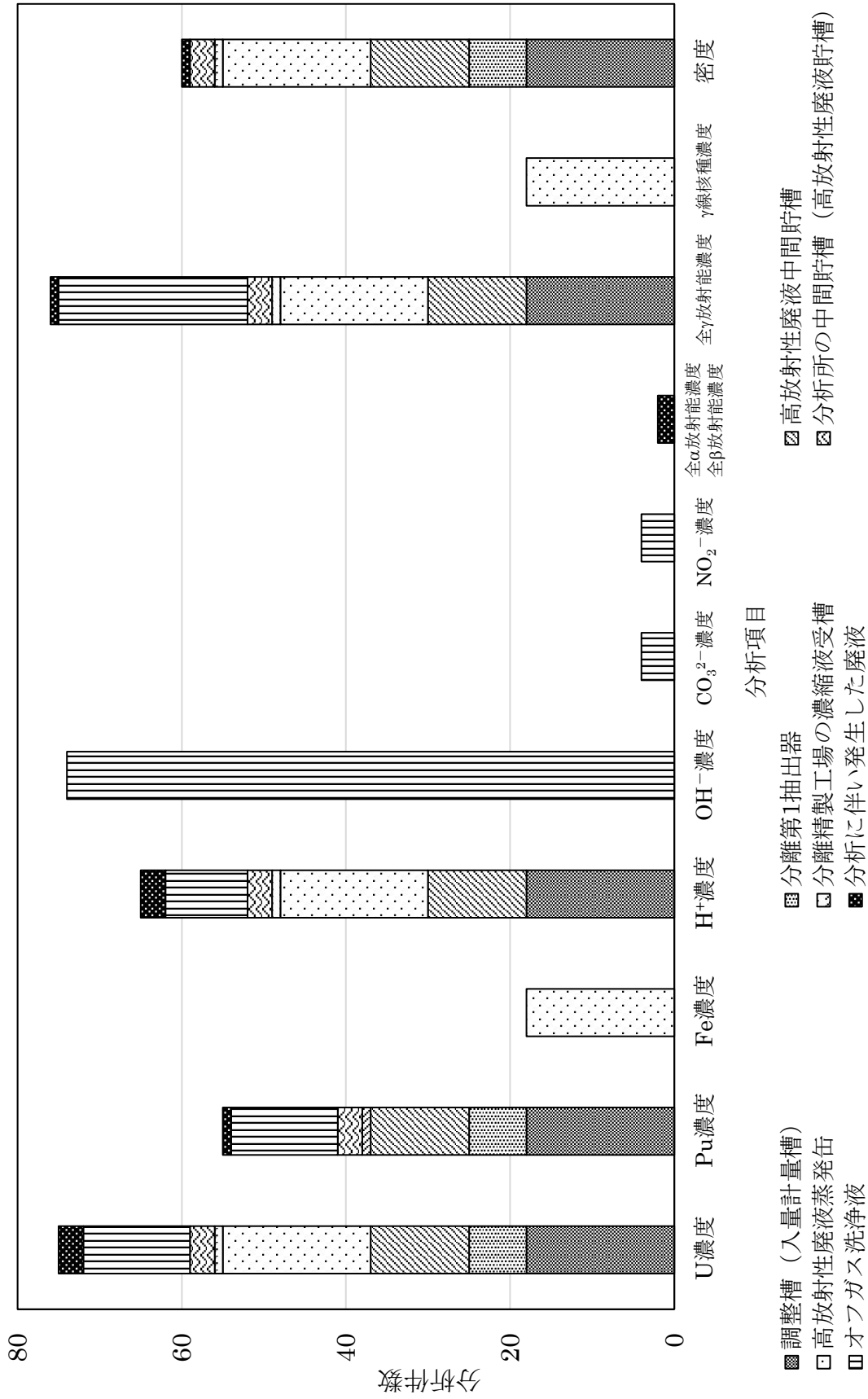


図 2 工程管理分析の分析項目と分析件数

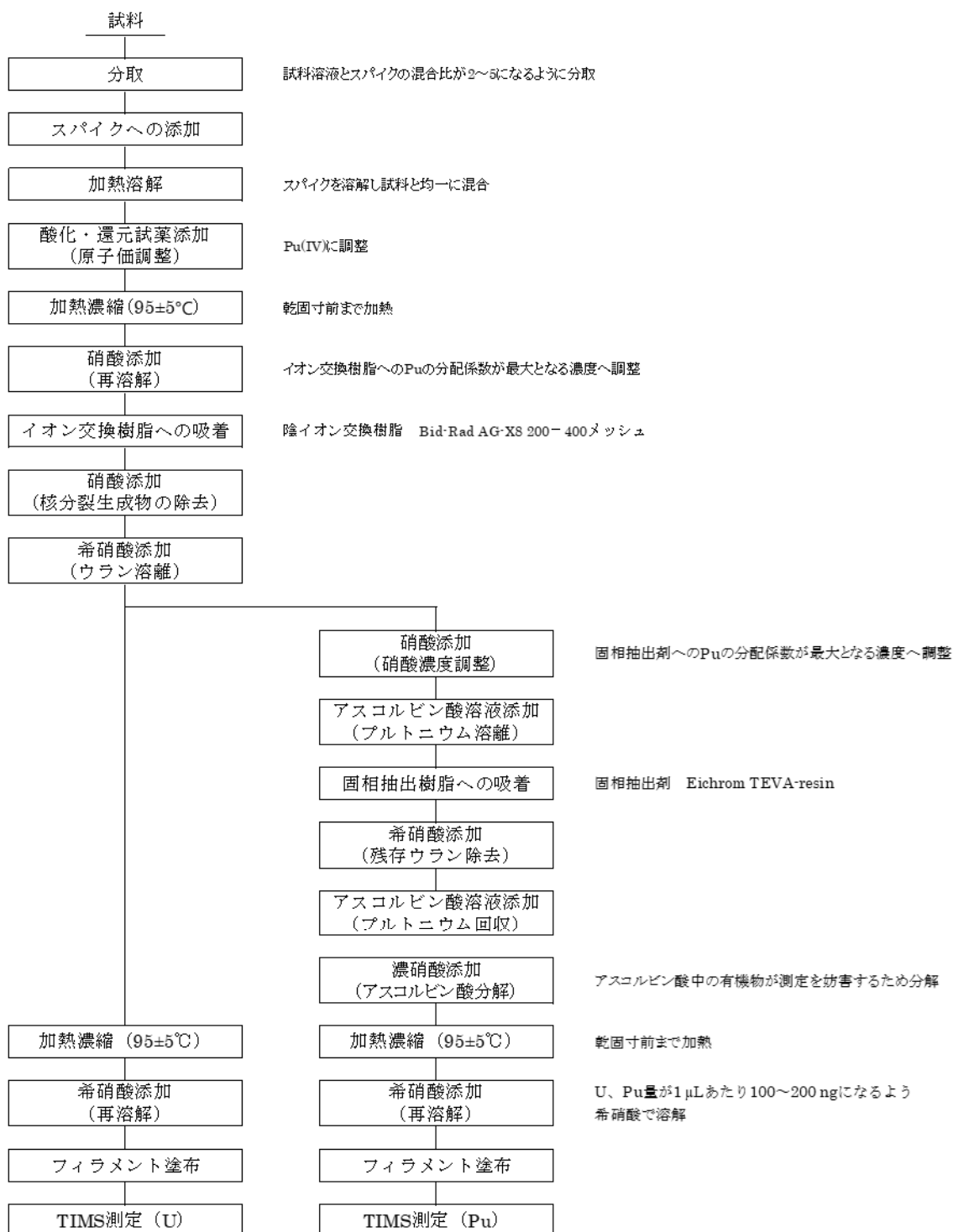


図 3 同位体希釈質量分析法 概略フロー

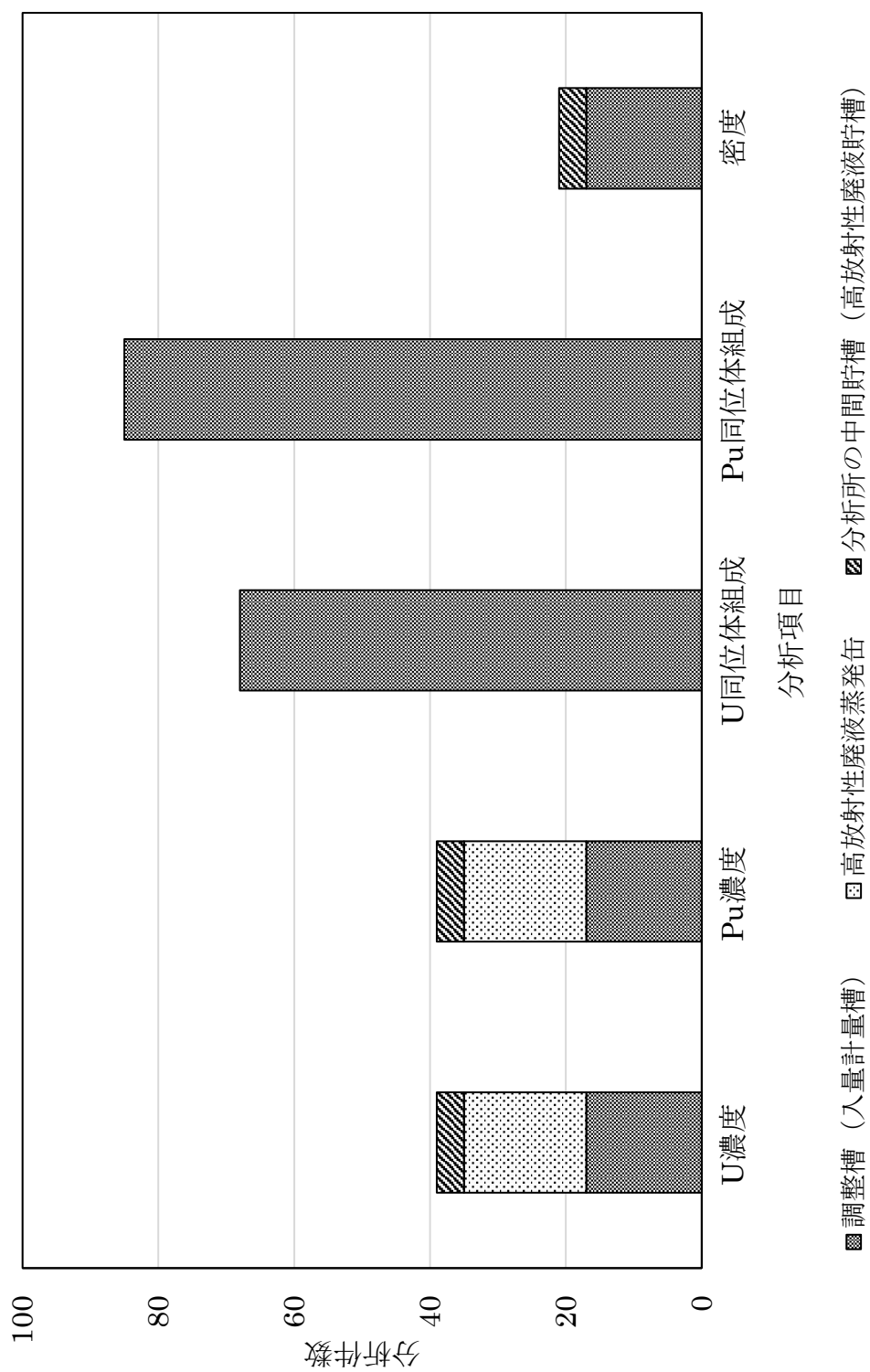


図 4 計量管理分析の分析項目と分析件数



図 1 IAEA による査察の様子

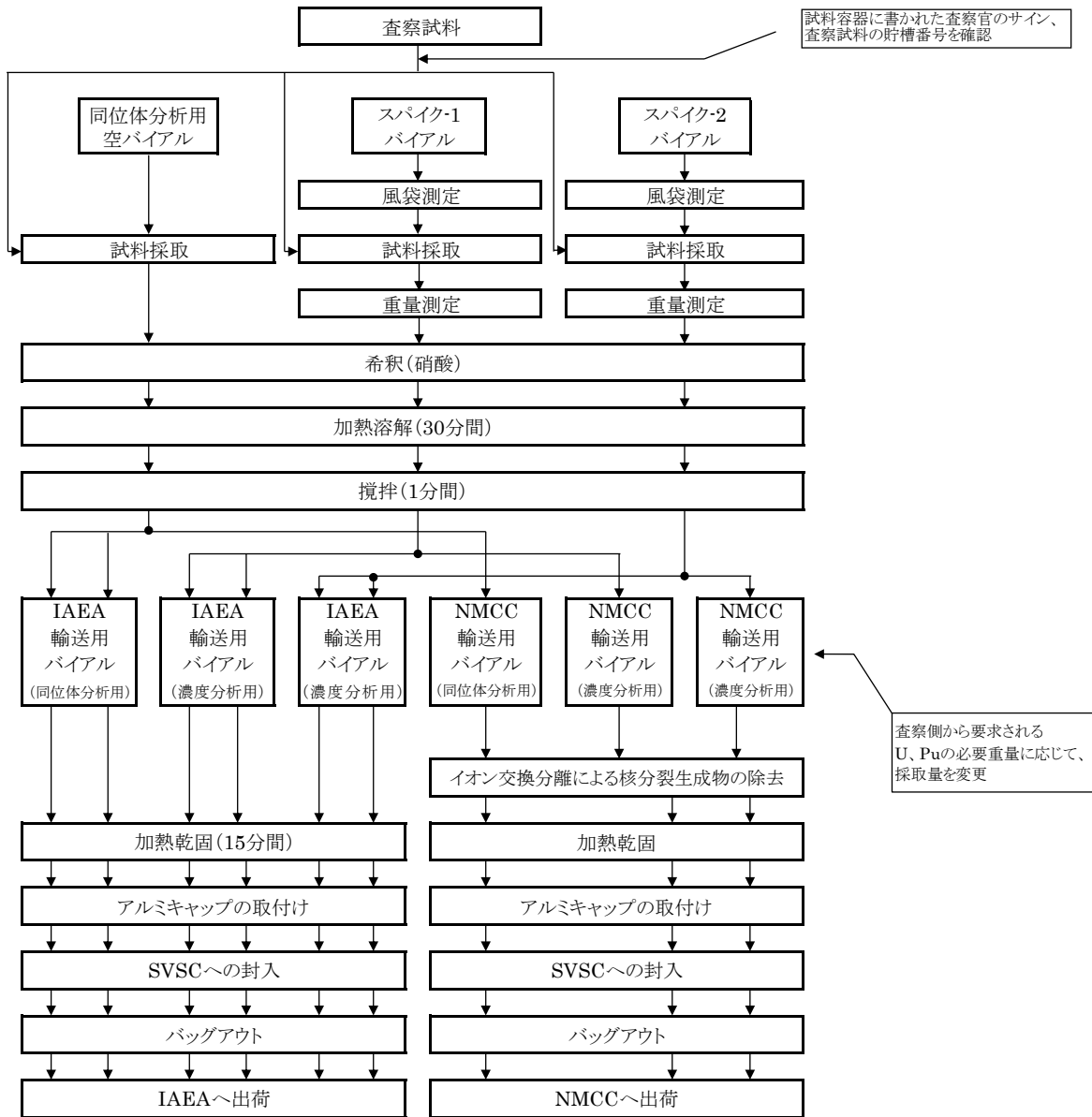


図 6 調整槽（入量計量槽）から採取した試料の収去処理フロー

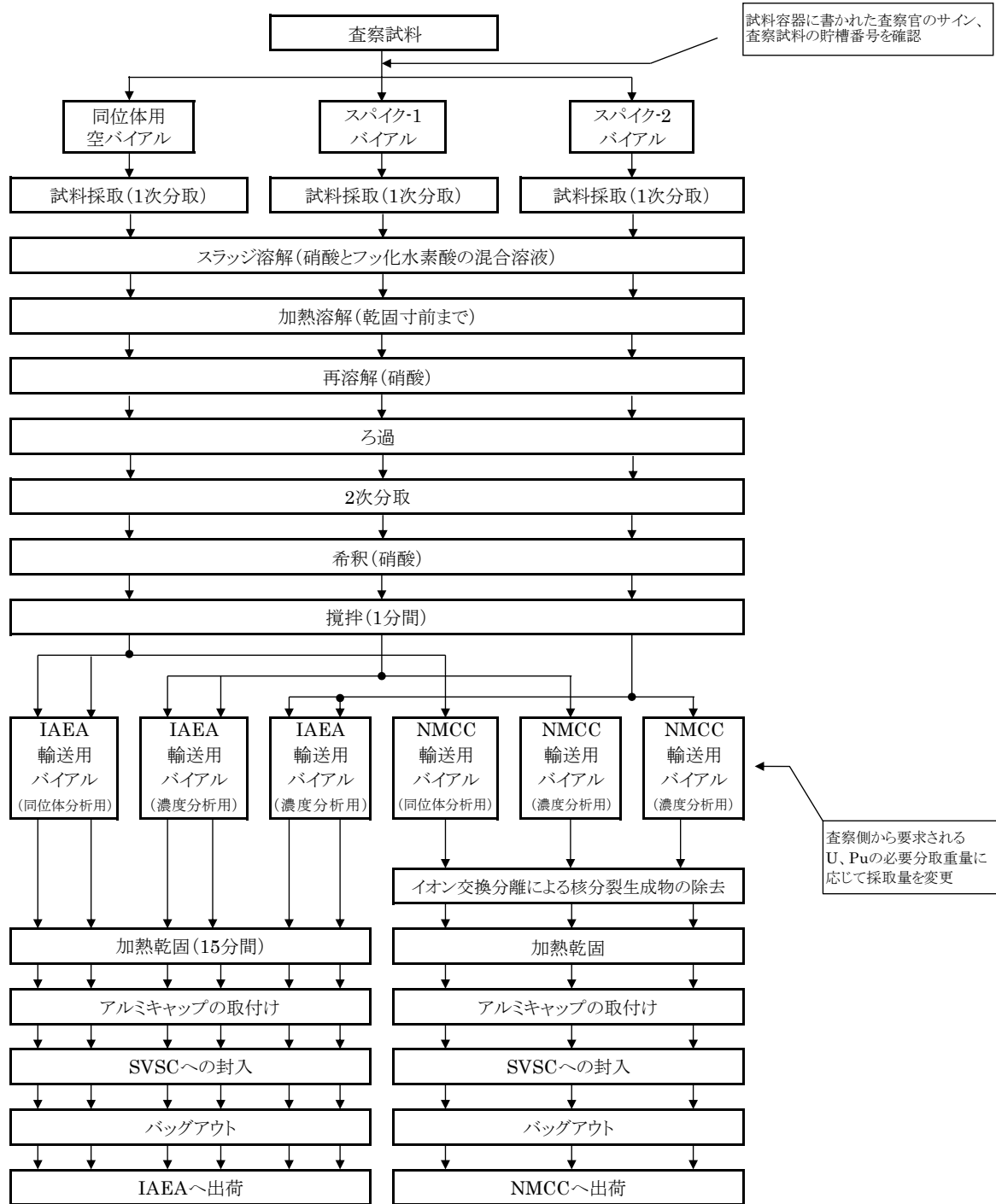
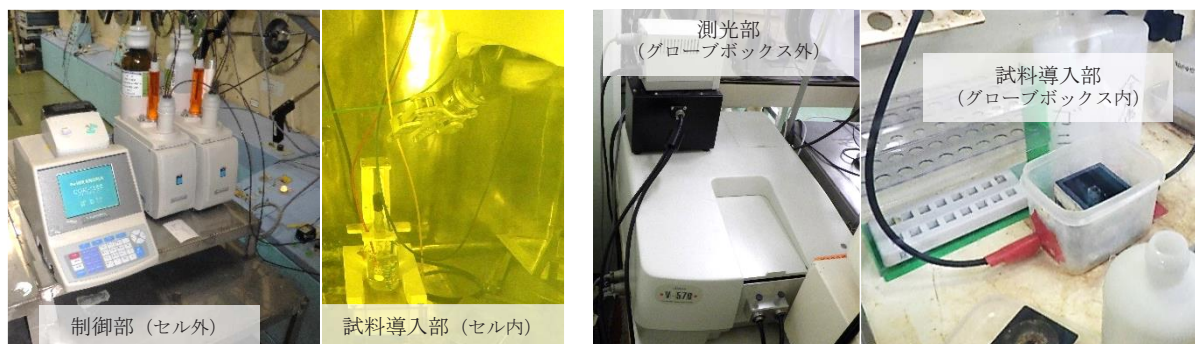


図 7 高放射性廃液蒸発缶から採取した試料の収去処理フロー



遠隔操作型電位差滴定装置

グローブボックス測定仕様型紫外・可視分光光度計



グローブボックス測定仕様型 α 線計測装置

遠隔操作型 γ 線計測装置



グローブボックス測定仕様型
表面電離型質量分析装置

遠隔操作型振動式密度計

図 8 せん断粉末の取出し等において使用した主な分析装置

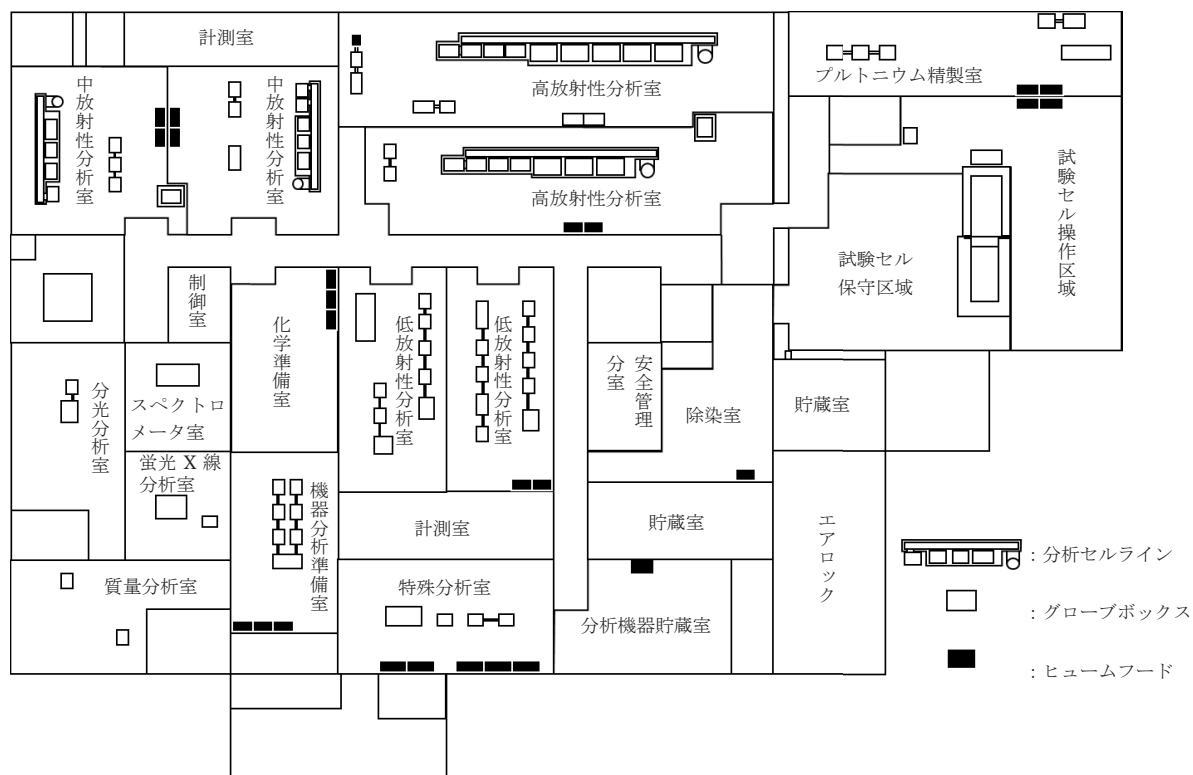


図 9 分析所分析設備の概要

表 1 分析項目と分析方法一覧（工程管理分析）（1/2）

サンプリング ポイント	サンプル	分析項目	分析方法	分析装置
調整槽 (入量計量槽)	せん断粉末の 溶解液 及び 押出し洗浄液	U 濃度	酢酸エチル抽出／DBM*1 吸光光度法	紫外・可視分光光度計
		Pu 濃度	硝酸アンモニウムセリウム(IV)酸化 ／Pu(VI)吸光光度法	紫外・可視分光光度計
			TTA*2・キシレン抽出／α線計測法	α線計測装置 (ZnS(Ag)シンチレーション検出器)
		H ⁺ 濃度	硫酸アンモニウム添加 ／アルカリ中和滴定法	電位差滴定装置
		全γ放射能濃度	全γ線計測法	γ線計測装置 (NaI(Tl)シンチレーション検出器)
		密度	振動式密度測定法	振動式密度計
分離第 1 抽出器	せん断粉末の 溶解液 及び 押出し洗浄液	U 濃度	酢酸エチル抽出／DBM*1 吸光光度法	紫外・可視分光光度計
		Pu 濃度	TTA*2・キシレン抽出／α線計測法	α線計測装置 (ZnS(Ag)シンチレーション検出器)
		密度	振動式密度測定法	振動式密度計
高放射性廃液 中間貯槽	せん断粉末の 溶解液 及び 押出し洗浄液	U 濃度	酢酸エチル抽出／DBM*1 吸光光度法	紫外・可視分光光度計
		Pu 濃度	TTA*2・キシレン抽出／α線計測法	α線計測装置 (ZnS(Ag)シンチレーション検出器)
		H ⁺ 濃度	硫酸アンモニウム添加 ／アルカリ中和滴定法	電位差滴定装置
		全γ放射能濃度	全γ線計測法	γ線計測装置 (NaI(Tl)シンチレーション検出器)
		密度	振動式密度測定法	振動式密度計
高放射性廃液 蒸発缶	せん断粉末の 溶解液 及び 押出し洗浄液	U 濃度	酢酸エチル抽出／DBM*1 吸光光度法	紫外・可視分光光度計
		Fe 濃度	o-フェナントロリン吸光光度法	紫外・可視分光光度計
		H ⁺ 濃度	硫酸アンモニウム添加 ／アルカリ中和滴定法	電位差滴定装置
		全γ放射能濃度	全γ線計測法	γ線計測装置 (NaI(Tl)シンチレーション検出器)
		γ線核種濃度	γ線スペクトル分析法	γ線スペクトル分析装置 (Ge 半導体検出器)
		密度	振動式密度測定法	振動式密度計
分離精製工場の 濃縮液受槽	保有する 洗浄液	U 濃度	酢酸エチル抽出／DBM*1 吸光光度法	紫外・可視分光光度計
		Pu 濃度	TTA*2・キシレン抽出／α線計測法	α線計測装置 (ZnS(Ag)シンチレーション検出器)
		H ⁺ 濃度	硫酸アンモニウム添加 ／アルカリ中和滴定法	電位差滴定装置
		全γ放射能濃度	全γ線計測法	γ線計測装置 (NaI(Tl)シンチレーション検出器)
		密度	振動式密度測定法	振動式密度計

*1 DBM：ジベンゾイルメタン

*2 TTA：2-テノイルトリフルオロアセトン

表 1 分析項目と分析方法一覧（工程管理分析）（2/2）

サンプリング ポイント	サンプル	分析項目	分析方法	分析装置
分析所の 中間貯槽 （高放射性廃液 貯槽）	保有する 分析廃液	U 濃度	酢酸エチル抽出／DBM* ¹ 吸光光度法	紫外・可視分光光度計
		Pu 濃度	TTA* ² ・キシレン抽出／ α 線計測法	α 線計測装置 (ZnS(Ag)シンチレーション検出器)
		H ⁺ 濃度	硫酸アンモニウム添加 ／アルカリ中和滴定法	電位差滴定装置
		全 γ 放射能濃度	全 γ 線計測法	γ 線計測装置 (NaI(Tl)シンチレーション検出器)
		密度	振動式密度測定法	振動式密度計
オフガス 洗浄工程	オフガス 洗浄液	U 濃度	酢酸エチル抽出／DBM* ¹ 吸光光度法	紫外・可視分光光度計
		Pu 濃度	TTA* ² ・キシレン抽出／ α 線計測法	α 線計測装置 (ZnS(Ag)シンチレーション検出器)
		H ⁺ 濃度	硫酸アンモニウム添加 ／アルカリ中和滴定法	電位差滴定装置
		OH ⁻ 濃度	酸中和滴定法	電位差滴定装置
		CO ₃ ²⁻ 濃度	酸中和滴定法	電位差滴定装置
		NO ₂ ⁻ 濃度	N-(1-ナフチル)エチレン ジアミン吸光光度法	紫外・可視分光光度計
		全 γ 放射能濃度	全 γ 線計測法	γ 線計測装置 (NaI(Tl)シンチレーション検出器)
分析所の 中間貯槽 （中放射性廃液 貯槽、極低放射 性廃液貯槽）	分析に伴い 発生した 分析廃液	U 濃度	酢酸エチル抽出／DBM* ¹ 吸光光度法	紫外・可視分光光度計
		Pu 濃度	TTA* ² ・キシレン抽出／ α 線計測法	α 線計測装置 (ZnS(Ag)シンチレーション検出器)
		H ⁺ 濃度	硫酸アンモニウム添加 ／アルカリ中和滴定法	電位差滴定装置
		全 α 放射能濃度	全 α 線計測法	α 線計測装置 (ZnS(Ag)シンチレーション検出器)
		全 β 放射能濃度	全 β 線計測法	β 線計測装置 (GM 計数管)
		全 γ 放射能濃度	全 γ 線計測法	γ 線計測装置 (NaI(Tl)シンチレーション検出器)
		密度	振動式密度測定法	振動式密度計

*1 DBM：ジベンゾイルメタン

*2 TTA：2-テノイルトリフルオロアセトン

表 2 分析項目と分析方法一覧（計量管理分析）

サンプリング ポイント	サンプル	分析項目	分析法	分析装置
調整槽 (入量計量槽)	せん断粉末の 溶解液 及び 押出し洗浄液	U 濃度	同位体希釈質量分析法	表面電離型質量分析計
			酢酸エチル抽出／DBM*1 吸光光度法	紫外・可視分光光度計
		Pu 濃度	同位体希釈質量分析法	表面電離型質量分析計
			TTA*2・キシレン抽出／ α 線計測法	α 線計測装置 (ZnS(Ag)シンチレーション検出器)
		同位体組成	質量分析法	表面電離型質量分析計
		密度	振動式密度測定法	振動式密度計
高放射性廃液 蒸発缶	せん断粉末の 溶解液 及び 押出し洗浄液	U 濃度	酢酸エチル抽出／DBM*1 吸光光度法	紫外・可視分光光度計
		Pu 濃度	スラッジ溶解／硝酸アンモニウム セリウム(IV)酸化／Pu(VI)吸光光度法	紫外・可視分光光度計
			TTA*2・キシレン抽出／ α 線計測法	α 線計測装置 (ZnS(Ag)シンチレーション検出器)
分析所の 中間貯槽 (高放射性廃液 貯槽)	保有する 分析廃液	U 濃度	酢酸エチル抽出／DBM*1 吸光光度法	紫外・可視分光光度計
		Pu 濃度	TTA*2・キシレン抽出／ α 線計測法	α 線計測装置 (ZnS(Ag)シンチレーション検出器)

*1 DBM：ジベンゾイルメタン

*2 TTA：2-テノイルトリフルオロアセトン

表 3 各サンプリングポイントにおける計量管理分析結果 (1/3)

サンプリング ポイント	サンプル	U 濃度		Pu 濃度		U 同位体組成 (%)				Pu 同位体組成 (%)					密度 (g/cm ³)	
		分析法	分析値 (g/L)	分析法	分析値 (mg/L)	²³⁴ U	²³⁵ U	²³⁶ U	²³⁸ U	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu		
調整槽 (入量計量槽)	せん断粉末の溶解液①	同位体希釈 質量分析法	6.91	同位体希釈 質量分析法	同位体希釈 質量分析法	0.030	0.981	0.243	98.746	1.068	64.436	27.272	2.453	4.771	1.10	
	せん断粉末の溶解液②		19.0			328	0.022	1.106	0.255	98.617	1.030	65.274	26.805	2.316	4.575	1.15
	せん断粉末の溶解液③		20.1			272	0.020	1.164	0.253	98.563	1.016	65.695	26.529	2.272	4.488	1.17
	せん断粉末の溶解液④		23.8			239	0.019	1.235	0.247	98.499	1.006	66.131	26.227	2.228	4.408	1.17
	せん断粉末の溶解液⑤		27.1			239	0.020	1.230	0.249	98.501	0.996	66.362	26.089	2.189	4.364	1.17
	せん断粉末の溶解液⑥		30.0			228	0.019	1.213	0.255	98.513	0.978	66.773	25.872	2.109	4.268	1.16
	せん断粉末の溶解液⑦		30.0			218	0.018	1.210	0.256	98.516	0.974	66.899	25.801	2.079	4.247	1.15
	せん断粉末の溶解液⑧		30.0			216	0.018	1.196	0.260	98.526	0.977	66.894	25.785	2.080	4.264	1.14
	せん断粉末の溶解液⑨		28.7			203	0.018	1.202	0.257	98.523	0.977	66.922	25.775	2.071	4.255	1.14
	せん断粉末の溶解液⑩		24.3			173	0.018	1.205	0.252	98.525	0.976	66.776	25.886	2.088	4.274	1.13
	押出し洗浄液①	酢酸エチル 抽出／DBM ^{*1} 吸光度法	7.81	TTA ^{*2} ・キシレン 抽出／α線計測法	0.023	1.145	0.244	98.588	1.052	64.875	27.013	2.377	4.683	1.10		
	押出し洗浄液②		2.74		149	0.034	1.009	0.229	98.728	1.074	64.363	27.311	2.457	4.795	1.08	
	押出し洗浄液③		1.17		37.9	0.024	0.997	0.252	98.727	1.095	64.395	27.232	2.464	4.814	1.06	
	押出し洗浄液④		0.675		14.5	0.020	1.015	0.266	98.699	1.120	64.400	27.123	2.491	4.866	1.06	
	押出し洗浄液⑤		0.265		11.1	0.032	1.134	0.255	98.579	1.279	64.367	26.970	2.514	4.870	1.06	
	押出し洗浄液⑥		0.0834		4.54	0.029	1.099	0.252	98.620	1.151	64.444	26.998	2.531	4.876	1.05	
	押出し洗浄液⑦		0.0532		3.00	0.033	1.131	0.245	98.591	1.155	64.439	27.005	2.527	4.874	1.04	

*1 DBM : ジベンゾイルメタン

*2 TTA : 2-テノイルトリフルオロアセトン

表 3 各サンプリングポイントにおける計量管理分析結果 (2/3)

サンプリング ポイント	サンプル	U 濃度		Pu 濃度		U 同位体組成 (%)				Pu 同位体組成 (%)				密度 (g/cm ³)	
		分析法	分析値 (g/L)	分析法	分析値 (mg/L)	²³⁴ U	²³⁵ U	²³⁶ U	²³⁸ U	²³⁸ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu		
高放射性廃液 蒸発缶	せん断粉末の溶解液①	酢酸エチル 抽出／DBM ¹ 吸光度法	0.251	TTA ² ・キシレン 抽出／α線計測法	10.3										
	せん断粉末の溶解液②		2.09												
	せん断粉末の溶解液③		2.77												
	せん断粉末の溶解液④		4.95												
	せん断粉末の溶解液⑤		5.93												
	せん断粉末の溶解液⑥		9.45												
	せん断粉末の溶解液⑦		10.6												
	せん断粉末の溶解液⑧		15.5	スラッジ溶解 ／硝酸アンモニ ウムセリウム (IV)酸化／Pu (VI)吸光度法	157										
	せん断粉末の溶解液⑨		17.5		152										
	せん断粉末の溶解液⑩		20.3		163										
	せん断粉末の溶解液⑪		25.4		184										
	押出し洗浄液①		18.3		157										
	押出し洗浄液②		7.14		122										
	押出し洗浄液③		3.46		57.0										
	押出し洗浄液④		2.24		39.9										
	押出し洗浄液⑤		1.01		21.0										
	押出し洗浄液⑥		1.02	TTA ² ・キシレン 抽出／α線計測法	19.2										
	押出し洗浄液⑦		0.628		10.1										

*1 DBM : ジベンゾイルメタン、*2 TTA : 2-テノイルトリフルオロアセトン

表 3 各サンプリングポイントにおける計量管理分析結果 (3/3)

サンプリング ポイント	サンプル	U 濃度		Pu 濃度		U 同位体組成 (%)				Pu 同位体組成 (%)					密度 (g/cm ³)
		分析法	分析値 (g/L)	分析法	分析値 (mg/L)	234U	235U	236U	238U	238Pu	240Pu	241Pu	242Pu		
分析所の 中間貯槽 (高放射性廃液 貯槽)	保有する分析廃液	酢酸エチル 抽出／DBM ^{*1} 吸光度法	0.870	TTA ^{*2} ・キシレン 抽出／α線計測法	4.20										
	洗浄液①		0.207		0.123										
	洗浄液②		0.023		<0.05										
	洗浄液③		<0.01		<0.05										

*1 DBM : ジベンゾイルメタン

*2 TTA : 2-テノイルトリフルオロアセトン

表 4 セン断粉末の取出し等の期間中における収去処理の件数とその内訳

サンプリングポイント	サンプル	件数
調整槽（入量計量槽）	せん断粉末の溶解液	10
	押出し洗浄液	2
高放射性廃液蒸発缶	せん断粉末の溶解液	1
	押出し洗浄液	1
分析所の間貯槽 （高放射性廃液貯槽）	保有する分析廃液	1

表 5 分析装置の校正（健全性の確認）方法、管理基準、頻度

分析装置		校正方法	管理基準	頻度
工程管理分析	電位差滴定装置	・ pH 標準溶液を用いた校正 ・ 硝酸標準溶液の測定	・ pH 標準溶液を測定し、測定値と標準溶液の表示値の差が± 0.1以内であること。 ・ 硝酸標準溶液を繰り返し測定し（N=5）、そのデータからχ^2検定を実施し、測定値の平均が標準溶液の表示値と有意な差がないこと。	1 回／6 か月
	紫外・可視分光光度計	・ U、Pu、Fe 及び NO_2^- 標準溶液を用いた検量線の作成 ・ U、Pu、Fe 及び NO_2^- 標準溶液の測定	・ 検量線の相関係数が 0.999 以上であること。 ・ U、Pu、Fe 及び NO_2^- 標準溶液を繰り返し測定し（N=5）、そのデータからχ^2検定を実施し、測定値の平均が標準溶液の表示値と有意な差がないこと。	1 回／6 か月
	α 線計測装置 β 線計測装置	・ プラトー領域の確認 ・ 標準線源の測定	・ 印加電圧を 50 V 間隔で変化させながら標準線源を測定して作成したプラトー曲線のプラトー領域の低い方から 1/3 付近の印加電圧で標準線源を繰り返し測定し（N=5）、測定値と標準線源の表示値の差が 10%以内であること。	1 回／6 か月
	γ 線計測装置	・ 光電子増倍管の電圧応答性の測定 ・ 標準線源の測定	・ 印加電圧を 50 V 間隔で変化させながら標準線源を測定して作成したプラトー曲線のプラトー領域の低い方から 1/3 付近の印加電圧で標準線源を繰り返し測定し（N=5）、測定値と標準線源の表示値の差が 10%以内であること。	1 回／6 か月
	γ 線スペクトル分析装置	・ ^{241}Am、^{137}Cs、^{60}Co 等を含む標準溶液の測定によるエネルギー校正及び計数効率の校正	・ ^{241}Am、^{137}Cs、^{60}Co のトップピークのエネルギーと基準エネルギーの差が± 2 keV 未満であること。 ・ ^{241}Am、^{137}Cs、^{60}Co のトップピークに対応するチャンネルと基準チャンネルの差が± 4 チャンネル未満であること。 ・ 標準溶液を測定し、測定値と標準溶液の表示値の差が 20%以内であること。	1 回／6 か月
	振動式密度計	・ 蒸留水の測定	・ 蒸留水を測定し、測定値と測定温度での蒸留水の密度の差が$\pm 0.001 \text{ g/cm}^3$以内であること。	1 回／6 か月
計量管理分析	表面電離型質量分析計	・ U 及び Pu 標準溶液の同位体比（$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 及び $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$）の測定	・ U 及び Pu 標準溶液の同位体比（$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 及び $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$）を繰り返し測定し（N$\geq 10$）、その相対標準偏差が 0.1%以内であること。 ・ 測定値と表示値の有意差検定を実施し、有意水準 5%において有意差が認められないこと。	1 回／1 か月
	紫外・可視分光光度計	・ U 及び Pu 標準溶液を用いた検量線の作成	・ 検量線の相関係数が 0.999 以上であること。 ・ U 溶液を測定し、測定値と標準溶液の表示値の差が 15%以内であること。 ・ Pu 溶液を測定し、測定値と標準溶液の表示値の差が 6%以内であること。 ・ U 又は Pu 溶液の測定結果と前回の測定結果の変動幅が 5%以内であること。	1 回／6 か月
	α 線計測装置	・ プラトー領域の確認 ・ 標準線源の測定	・ 印加電圧を 50 V 間隔で変化させながら標準線源を測定して作成したプラトー曲線のプラトー長が 150 V 以上且つプラトー傾斜が 5%/100 V 以下であること。 ・ プラトー領域の低い方から 1/3 付近の印加電圧で標準線源を繰り返し測定（N=5）して算出した計数効率が 20%から 40%の範囲内であること。また、前回の計数効率との変動幅が 5%以内であること。	1 回／6 か月
	振動式密度計	・ 乾燥空気及び超純水の測定	・ 乾燥空気及び超純水を繰り返し測定し（N≥ 10）、その相対標準偏差が 0.0005%以下であること。 ・ 乾燥空気及び超純水の測定値に対し、前回の測定値との有意差検定を実施し、有意水準 5%において有意差が認められないこと。	1 回／1 か月

表 6 セン断粉末の取出し等の期間中における廃棄物発生量

燃性	容器	$\beta\gamma$ 系	Pu 系
可燃性固体廃棄物	60L パック	17 個 (1020 L)	—
	15L パック	—	6 個 (90 L)
難燃性固体廃棄物	低放射性難燃物袋 (15kg) *	17 個 (1224 L)	—
	15L パック	5 個 (75 L)	3 個 (45 L)
不燃性固体廃棄物	低放射性難燃物袋 (15kg) *	2 個 (144 L)	—
	15L パック	3 個 (45 L)	1 個 (15 L)

* 低放射性難燃物袋は 72 L として換算

表 7 実技試験の対象とした分析手法、実施年月、認定者数

項目	実技試験対象分析	実施年月	認定者数
工程管理分析	酢酸エチル抽出／DBM ^{*1} 吸光光度法	2020 年 3 月	2
	硝酸アンモニウムセリウム(IV)酸化／Pu(VI)吸光光度法	2020 年 3 月	2
	TTA ^{*2} ・キシレン抽出／ α 線計測法	2020 年 3 月 2021 年 2 月	3 3
	硫酸アンモニウム添加／アルカリ中和滴定法	2020 年 3 月 2021 年 2 月	3 3
	全 γ 線計測法	2021 年 2 月 2022 年 3 月	3 3
	γ 線スペクトル分析法	2022 年 3 月	6
計量管理分析	同位体希釈質量分析法	2020 年 3 月 2022 年 3 月	5 2
	酢酸エチル抽出／DBM ^{*1} 吸光光度法	2020 年 3 月	5
	TTA ^{*2} ・キシレン抽出／ α 線計測法	2020 年 3 月	5
	振動式密度測定法	2020 年 3 月	5

*1 DBM : ジベンゾイルメタン

*2 TTA : 2・テノイルトリフルオロアセトン

表 8 分析技能認定の認定試験

評価項目	筆記試験	実技試験	
		分析操作の以下の項目における技能評価	分析結果の評価
評価項目	分析手法の原理、分析データ評価 手法に関する理解度評価	・分析装置・機器の取扱 ・分析精度に影響する作業(試料の採取等)に対する注意の払い方 ・コンタミネーションに対する注意の払い方 ・分析作業の正確さ ・分析作業後の後片付け ・その他必要とする項目	分析結果の評価
評価方法	筆記試験の正答率	審査者が受検者の分析操作を観察し、3段階で評価 A (手際が良く正確かつ迅速に行える) B (作業の良さは目立たないが確実に行える) C (作業の仕方に不安定さがみられる)	受験者全員の分析値から母集団の平均値及び標準偏差を算出するとともに、統計、z スコアにより評価
合否判定	8 割以上の正解	総合評価 B 以上	z スコア評価 $-2 \leq z \text{ スコア} \leq 2$
有効期間	認定日から 3 年間		

表 9 実施した訓練一覧

	訓練名称	実施日時	実施内容
(1)	化学物質取扱い異常時対応訓練	2021 年 10 月 29 日 (金)	2021 年度 分析課 保安教育・訓練計画に従い、化学物質管理規則に基づく異常時対応訓練並びに炉規法及び RI 法に基づく管理区域内火災対応訓練を実施し、乗傷及び火災事象発生時の対処方法について確認した。
(2)	負傷、汚染時対応訓練	2021 年 6 月 29 日 (火)	2021 年度 分析課 保安教育・訓練計画に従い、炉規法及び RI 法に基づいた身体汚染時対応訓練及びグリーンハンハウス設置訓練を実施し、負傷及び汚染事象発生時の対処方法について確認した。
(3)	分析セルライコンベア異常発生時の対応訓練 (運転操作訓練)	2022 年 3 月 23 日 (水)	分析セルラインでの分析作業時に分析セルラインの試料運搬に使用するベルトコンベアが故障により停止し、高放射性試料をコンベアで運搬できなくなること を想定した代替操作について確認した。

